

Федеральный исследовательский центр
«Кольский научный центр Российской академии наук»

Институт химии и технологии редких элементов
и минерального сырья им. И.В. Тананаева
(ИХТРЭМС КНЦ РАН)

Н.В. Сидоров, О.Ю. Пикуль,
Н.А. Теплякова, М.Н. Палатников

**ЛАЗЕРНАЯ КОНОСКОПИЯ И
ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ
РАССЕЯНИЕ СВЕТА В
ИССЛЕДОВАНИЯХ СВОЙСТВ
НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКОГО
КРИСТАЛЛА НИОБАТА ЛИТИЯ**

Москва
2019

УДК 681.723.284:546.34

ББК 22.338:24.121

Л17

Авторы:

Сидоров Н.В., Пикуль О.Ю., Теплякова Н.А., Палатников М.Н.

Рецензенты:

доктор физико-математических наук, профессор А. А. Аникьев,
доктор физико-математических наук, профессор В.В. Криштоп.

Л17 Лазерная коноскопия и фотоиндуцированное рассеяние света в исследованиях свойств нелинейно-оптического кристалла ниобата лития / Н.В. Сидоров, О.Ю. Пикуль, Н.А. Теплякова, М.Н. Палатников – М.: РАН, 2019. – 350 с.: ил.

ISBN 978-5-907036-49-9

В монографии приведены результаты многолетних исследований авторов методами фотоиндуцированного рассеяния света и лазерной коноскопии в широкоапертурных пучках лазерного излучения оптических свойств монокристаллов ниобата лития, как номинально чистых, так и легированных широким спектром элементов, полученных по разным технологиям. Рассмотрены тонкие особенности структуры, влияние особенностей приготовления шихты на качество монокристаллов разного состава. Подробно рассмотрены наиболее общие вопросы формирования коноскопических картин одноосных гиротропных и негиротропных кристаллов, изменение поляризации излучения в коноскопическом методе, необходимые для понимания оригинального материала. Приведены использованные авторами схемы экспериментальных установок для исследований кристаллов методами лазерной коноскопии, фотоиндуцированного рассеяния света и кинетических зависимостей фоторефрактивного эффекта в электрооптических кристаллах. Проанализированы коноскопические картины, описаны фоторефрактивный эффект и фотоиндуцированное рассеяние света в реальных кристаллах ниобата лития разного состава.

Книга предназначена для научных сотрудников, аспирантов, преподавателей и специалистов в области физического материаловедения, синтеза и исследования строения монокристаллических сегнетоэлектрических материалов электронной техники.

ISBN 978-5-907036-49-9

© Сидоров Н.В., Пикуль О.Ю.,
Теплякова Н.А., Палатников М.Н.

Federal Research Centre
«Kola Science Centre of the
Russian Academy of Sciences»

Tananaev Institute of Chemistry
(ICT KSC RAS)

**N.V. Sidorov, O.Yu. Pikoul',
N.A. Teplyakova, M.N. Palatnikov**

**LASER CONOSCOPY AND
PHOTOINDUCED LIGHT SCATTERING
IN RESEARCH OF PROPERTIES OF
OPTICALLY NONLINEAR LITHIUM
NIOBATE CRYSTAL**

Moscow
2019

UDC 681.723.284:546.34
LBC 22.338:24.121
L17

Авторы:

N.V. Sidorov, O.Yu. Pikoul', N.A. Teplyakova, M.N. Palatnikov

- L17 Laser conoscopy and photoinduced light scattering in research of properties of optically nonlinear lithium niobate crystal / Sidorov N.V., Pikoul' O.Yu., Teplyakova N.A., Palatnikov M.N. – Moscow: RAS, 2019. – 350 p.: ill.

ISBN 978-5-907036-49-9

The monograph contains results of long-term studies by photoinduced light scattering and laser conoscopy in wide-aperture laser beams of optical properties of lithium niobate single crystals, both nominally pure and doped by a wide range of elements, obtained due to different technologies. Thin particularities of structure, influence of charge preparation on crystals of different composition quality were considered. The most general questions were considered in detail for forming of conosopic patterns of single-axis gyrotropic and non-pyrotropic crystals, change of radiation polarization in conosopic method necessary for understanding of original data. The experimental setup diagrams are described for equipment that authors used to study crystals by laser conoscopy. Photoinduced light scattering, and kinetic dependences of photorefractive effect in electrooptical crystals. Conosopic patterns are analyzed; photorefractive effect and photoinduced light scattering are described in real crystals of lithium niobate of different composition

The book is intended for researchers, post-graduate students, teachers and specialists in the field of physical materials science, synthesis and research of structure of single crystal ferroelectric materials of electron technics.

ISBN 978-5-907036-49-9

Sidorov N.V., Pikoul' O.Yu.,
© Teplyakova N.A., Palatnikov M.N.

СОДЕРЖАНИЕ

Введение.....	11
Глава 1 ВЫРАЩИВАНИЕ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ МЕТОДОМ ЧОХРАЛЬСКОГО.....	14
1.1 Приготовление шихты для выращивания кристаллов ниобата лития	14
1.2 Выращивание номинально чистых и легированных кристаллов ниобата лития из расплава конгруэнтного состава.....	20
1.3 Выращивание кристаллов ниобата лития стехиометрического состава.....	22
1.4 Послеростовая термическая и электротермическая обработка кристаллов ниобата лития.....	24
Глава 2 СТРУКТУРА КРИСТАЛЛА НИОБАТА ЛИТИЯ.....	30
2.1 Особенности структуры ниобата лития.....	30
2.2 Дефекты в кристаллах ниобата лития.....	33
2.3 «Нефоторефрактивные» примеси в решетке ниобата лития.....	44
Глава 3 КОНОСКОПИЧЕСКИЙ МЕТОД ИССЛЕДОВАНИЯ КРИСТАЛЛОВ.....	48
3.1 Общие сведения о коноскопических картинах кристаллов	48
3.2 Практические приложения коноскопического метода исследования кристаллов	55
3.3 Характерные особенности оптической системы для создания коноскопических картин больших размеров.....	59
3.4 Световые пучки, прошедшие через плоскопараллельную кристаллическую пластинку.....	61
Глава 4 ФОРМИРОВАНИЕ КОНОСКОПИЧЕСКИХ КАРТИН ОДНООСНЫХ ОПТИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛОВ.....	65
4.1 Распределение интенсивности излучения в коноскопической картине кристалла.....	65
4.2 Особенности формирования «мальтийского креста».....	75
4.3 Влияние углового распределения интенсивности излучения на коноскопическую картину кристалла.....	79
4.4 Одновременное наблюдение двух коноскопических картин (при отражении от анализатора).....	80
4.5 Определение оптического знака кристалла коноскопическим методом в системе из двух кристаллических пластинок.....	82
4.5.1 Определение оптического знака кристалла при повороте компенсатора с известным оптическим знаком.....	82
4.5.2 Определение оптического знака кристалла коноскопическим методом в системе из двух неподвижных кристаллических пластинок.....	89
Глава 5 ИЗМЕНЕНИЕ ПОЛЯРИЗАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ В КОНОСКОПИЧЕСКОМ МЕТОДЕ.....	94
5.1 Поляризационные характеристики излучения.....	94
5.2 Преобразование состояния поляризации излучения.....	98
5.3 Визуализация форм поляризации излучения.....	101

5.4 Влияние фазового сдвига оптического излучения на коноскопические картины кристаллов.....	108
5.5 Сравнительный анализ поляризационных свойств фазовой пластинки $\lambda/4$ при повороте ее вокруг нормали к входной грани и повороте поляризатора	115
5.6 Преобразование поляризации излучения нетрадиционным поворотом фазовой пластинки $\lambda/4$	121
5.7 Определение расположения оптической оси в плоскости входной грани фазовой пластинки $\lambda/4$	129
5.8 Сравнительный анализ поляризационных свойств кристаллических пластинок с различным расположением оптической оси.....	131
5.9 Использование оптических свойств системы из двух кристаллических пластинок для управления поляризацией излучения.....	137
5.10 Влияние схемы наблюдения на коноскопические картины оптических кристаллов.....	148

Глава 6 КОНОСКОПИЧЕСКИЕ КАРТИНЫ ОПТИЧЕСКИ АКТИВНЫХ КРИСТАЛЛОВ.....153

6.1 Волны гириации в оптически активных кристаллах.....	153
6.2 Способ определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла	155
6.3 Интерференционный способ определения поляризационных свойств волны гириации.....	160
6.4 Способ определения направления вращения плоскости поляризации излучения и оптического знака по спиралевидной структуре в коноскопических картинах оптически активных кристаллов	163
6.5 Особенности коноскопических картин кристаллических пластинок различной толщины.....	170
6.6 Способ определения дефектов двулучепреломляющей кварцевой линзы по ее коноскопической картине.....	174
6.7 Спирали Эйри. Интерференционные явления в системе из нескольких оптических элементов.....	180
6.8 Применение лазерной коноскопии для количественной оценки механических напряжений в одноосных кристаллах.....	184

Глава 7 КОНОСКОПИЧЕСКИЕ КАРТИНЫ РЕАЛЬНЫХ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ.....186

7.1 Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 конгруэнтного состава.....	187
7.2 Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 стехиометрического состава.....	196
7.3 Коноскопические картины легированных кристаллов LiNbO_3 к онгруэнтного состава.....	200
7.3.1 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$	201
7.3.2 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	202
7.3.3 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}:\text{Fe}$	212
7.3.4 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}:\text{Mg}$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Ta}:\text{Mg}$	216
7.3.5 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$	219
7.3.6 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$	238

7.3.7 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$	242
7.3.8 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Y}$, $\text{LiNbO}_3:\text{Y}:\text{Mg}$	244

Глава 8 ФОТОРЕФРАКТИВНЫЙ ЭФФЕКТ

И ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ

НИОБАТА ЛИТИЯ	248
8.1 Эффект фоторефракции в кристаллах ниобата лития	248
8.2 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах ниобата лития.....	259
8.3 Регистрация фотоиндуцированного рассеяния света.....	266
8.4 Установка для определения кинетических зависимостей фоторефрактивного эффекта в электрооптических кристаллах.....	268

Глава 9 ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА

В РЕАЛЬНЫХ КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА ЛИТИЯ.....

9.1 Распространение лазерного излучения в кристаллах ниобата лития стехиометрического состава	270
9.2 Фотоиндуцированное рассеяние света в номинально чистых кристаллах ниобата лития стехиометрического и конгруэнтного составов	274
9.2.1 Асимметрия индикатрисы фотоиндуцированного рассеяния света в номинально чистых кристаллах ниобата лития стехиометрического состава.....	279
9.2.2 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах LiNbO_3 конгруэнтного состава, выращенных из разной шихты.....	280
9.3 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$	282
9.4 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	289
9.5 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0.009):\text{Mg}(5.04)$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0.02):\text{Zn}(4.34)$ мол. %.....	296
9.6 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{B}$	301
9.6.1 Особенности проявления двулучепреломления в кристалле ниобата лития $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0.83 мол. % B_2O_3 в шихте) при фотоиндуцированном рассеянии света.....	304
9.7 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0.002-0.05 вес. %)	309
9.8 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0.46 \text{ вес. } \%),$ $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0.24):\text{Mg}(0.63 \text{ вес. } \%)$	313
9.9 Сравнительные исследования фотоиндуцированного рассеяния света в легированных кристаллах LiNbO_3	316
9.10 Фотоэлектрические параметры ФИРС.....	318
Список литературы.....	324

TABLE OF CONTENTS

INTRODUCTION.....	11
Chapter 1 GROWTH OF LITHIUM NIOBATE CRYSTALS BY CZOCHRALSKI.....	14
1.1 Preparation of charge for growth of lithium niobate crystals.....	14
1.2 Growth of nominally pure and doped lithium niobate crystals from a congruent melt.....	20
1.3 Growth of lithium niobate crystals of a stoichiometric composition.....	22
1.4 After-growth thermal and electro-thermal treatment of lithium niobate crystals.....	24
Chapter 2 STRUCTURE OF LITHIUM NIOBATE CRYSTALS.....	30
2.1 Particularities of lithium niobate structure.....	30
2.2 Defects in lithium niobate crystals.....	33
2.3 “Non-photorefractive” dopants in lithium niobate lattice.....	44
Chapter 3 CONOSCOPIC METHOD FOR CRYSTALS RESEARCH.....	48
3.1 General information about conoscopic patterns of crystals	48
3.2 Application of conoscopic method of crystals research	55
3.3 Characteristic particularities of optical system for obtaining of big conoscopic patterns.....	59
3.4 Light beams that pass through a plane-parallel crystal plate.....	61
Chapter 4 FORMATION OF CONOSCOPIC PATTERNS OF SINGLE AXIS OPTICAL CRYSTALS.....	65
4.1 Distribution of radiation intensities in a conoscopic pattern of crystals.....	65
4.2 Particularities of formation of a “Maltese cross”.....	75
4.3 Influence of angular distribution of radiation intensities on conoscopic pattern of a crystal.....	79
4.4 Simultaneous observation of two conoscopic patterns (at reflection from analyzer).....	80
4.5 Determination of optical sign of a crystal by conoscopic method in a system of two crystal plates.....	82
4.5.1 Determination of optical sign of a crystal at a turn of a compensator with a known optical sign.....	82
4.5.2 Determination of optical sign of a crystal by conoscopic method in a system of two immobilized crystal plates.....	89
Chapter 5 CHANGE OF RADIATION POLARIZATION IN CONOSCOPIC METHOD.....	94
5.1 Polarization characteristics of radiation.....	94
5.2 Conversion of polarization state of radiation.....	98
5.3 Visualization of radiation polarization forms.....	101
5.4 Influence of phase shift of an optical radiation on conoscopic patterns of crystals.....	108
5.5 Comparative analysis of polarization properties of a quarter-wave plate $\lambda/4$ when turning it around the normal to the entrance face and turning of a polarizer.....	115

5.6 Conversion of radiation polarization by an inconvenient turn of a quarter-wave plate $\lambda/4$	121
5.7 Determination of optical axis location in the plane of the entrance face of a quarter-wave plate $\lambda/4$	129
5.8 Comparative analysis of polarization properties of crystal plates with different location of an optical axis.....	131
5.9 Application of optical properties of a system made of two crystal plates to control the polarization of radiation.....	137
5.10 Influence of the surveillance scheme on conoscopic patterns of optical crystals.....	14

Глава 6 CONOSCOPIC PATTERNS OF OPTICALLY ACTIVE CRYSTALS.....153

6.1 Waves of gyration in optically active crystals.....	153
6.2 A methods of determination of angular aperture characteristics of optical activity of a crystal	155
6.3 Interference method to determine polarization properties of waves of gyration.....	160
6.4 A method for determination of rotation direction of the polarization plane according to a spiral structure in conoscopic patterns of optically active crystals	163
6.5 Particularities of conoscopic patterns of crystal plates with a different thickness	170
6.6 A method for determination of defects in biaxial quartz lens due to its conoscopic pattern.....	174
6.7 Airy spirals. Interference phenomena in a system made of several optical elements.....	180
6.8 Application of laser conoscopy for quantitative evaluation of mechanical stresses in single-axis crystals.....	184

Chapter 7 CONOSCOPIC PATTERNS OF REAL LITHIUM NIOBATE CRYSTALS.....186

7.1 Conoscopic patterns of congruent LiNbO_3 crystals.....	187
7.2 Conoscopic patterns of stoichiometric LiNbO_3 crystals.....	196
7.3 Conoscopic patterns of doped congruent LiNbO_3 crystals.....	200
7.3.1 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ crystals.....	201
7.3.2 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ crystals.....	202
7.3.3 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}:\text{Fe}$ crystals.....	212
7.3.4 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}:\text{Mg}$ and $\text{LiNbO}_3:\text{Ta}:\text{Mg}$ crystals.....	216
7.3.5 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ crystals.....	219
7.3.6 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ crystals.....	238
7.3.7 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ crystals.....	242
7.3.8 Conoscopic patterns of $\text{LiNbO}_3:\text{Y}$, $\text{LiNbO}_3:\text{Y}:\text{Mg}$ crystals.....	244

Chapter 8 PHOTOREFRACTIVE EFFECT AND PHOTOINDUCED LIGHT SCATTERING IN LITHIUM NIOBATE CRYSTALS.....248

8.1 Photorefractive effect in lithium niobate crystals	248
8.2 Photoinduced light scattering in lithium niobate crystals.....	259
8.3 Registration of photoinduced light scattering.....	266
8.4 Installation for determination the kinetic dependencies of photorefractive effect in electro-optical crystals.....	268

Chapter 9 PHOTOINDUCED LIGHT SCATTERING IN REAL LITHIUM NIOBATE CRYSTALS.....	270
9.1 Propagation of laser radiation in stoichiometric lithium niobate crystals	270
9.2 Photoinduced light scattering in nominally pure stoichiometric and congruent lithium niobate crystals.....	274
9.2.1 Asymmetry of photoinduced light scattering indicatrix in nominally pure stoichiometric lithium niobate crystals.....	279
9.2.2 Photoinduced light scattering in congruent LiNbO_3 crystals grown from a different charge.....	280
9.3 Photoinduced light scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ crystals.....	282
9.4 Photoinduced light scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ crystals.....	289
9.5 Photoinduced light scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe(0.009):Mg(5.04)}$ and $\text{LiNbO}_3\text{:Fe(0.02):Zn(4.34)}$ mol % crystals.....	296
9.6 Photoinduced light scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:B}$ crystals	301
9.6.1 Particularities of birefringence in a $\text{LiNbO}_3\text{:B}$ (0.83 mol % B_2O_3 in the charge) crystal at photoinduced light scattering.....	304
9.7 Photoinduced light scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}$ (0.002-0.05 wt %) crystal	309
9.8 Photoinduced light scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:Y(0.46 wt \%)}$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y(0.24):Mg(0.63 wt \%)}$ crystals.....	313
9.9 A comparative research of photoinduced light scattering in LiNbO_3 crystals with a different composition.....	316
9.10 Photoelectric parameters of PILS.....	318
REFERENCES.....	324

ВВЕДЕНИЕ

Нелинейно-оптический фоторефрактивный кристалл ниобата лития (LiNbO_3) относится к числу важнейших материалов акусто- и оптоэлектроники, интегральной, лазерной и нелинейной оптики. Диапазон его применений обширен: преобразователи частоты лазерного и широкополосного излучения, параметрические генераторы света, оптические сенсоры, амплитудно-фазовые и фазовые модуляторы световых пучков, дефлекторы и т.д. Разработка все новых оптических устройств и серьезная конкуренция на мировом рынке постоянно стимулируют фундаментальные исследования, направленные на модифицирование и создание новых материалов на основе монокристалла LiNbO_3 . Ниобат лития – фаза переменного состава с широкой областью гомогенности на фазовой диаграмме, что позволяет регулировать физические характеристики кристалла изменением стехиометрии и легированием. Кристалл любого состава характеризуется широким спектром дефектов различной природы, создающих в нем сложный и трудно моделируемый беспорядок. Роль точечных и пространственных дефектов, особенностей упорядочения структурных единиц катионной подрешетки является определяющей в формировании сегнетоэлектрических, нелинейно-оптических и фоторефрактивных характеристик, структурной и оптической однородности кристалла LiNbO_3 .

Коноскопический метод исследования и контроля оптических свойств и структурных особенностей кристаллов, возникший вначале как метод исследования минералов, развивается уже более 100 лет. Метод наблюдения в сходящемся (или расходящемся) поляризованном излучении (коноскопический метод) позволяет получать информацию об основных оптических характеристиках анизотропных кристаллов: двулучепреломлении, количестве оптических осей и их ориентации, вращении плоскости поляризации, дихроизме, а также об оптических аномалиях и дефектах кристаллов. Качественно другой уровень коноскопический метод получил с появлением лазеров, компьютеров с мощным программным обеспечением, в связи с современными достижениями нелинейной оптики и оптики фоторефрактивных кристаллов, а также в связи с потребностью в оптических материалах высокого качества для голографии, лазерных сред и преобразования излучения. Достоинства, приобретенные коноскопическим методом в связи с появлением лазеров, проявились, прежде всего, в возможности наблюдать на большом экране и исследовать коноскопические картины значительной апертуры, высокой контрастности и разрешения, а также математически обрабатывать их. Особую информативность лазерная коноскопия приобрела для исследований тонких структурных искажений как собственных, так и наведенных лазерным излучением в фоторефрактивных нелинейно-оптических кристаллах. Стало возможным использовать лазерную коноскопию для исследований тонких особенностей структуры, эффекта фоторефракции, нелинейно-оптических эффектов в комплексе с другими методами исследования: комбинационным (рамановским) рассеянием света, фотоиндуцированным (фоторефрактивным) рассеянием света, электронной спектроскопией и др., существенно дополняя данные этих методов.

Эффект фоторефракции и сопутствующее ему фотоиндуцированное рассеяние света (ФИРС) обуславливают сильную деструкцию лазерного луча в кристалле LiNbO_3 и являются мешающими факторами для голографической записи информации и преобразования излучения кристаллом. В этой связи актуальны исследования, направленные на понимание природы структурных перестроек и оптических процессов, происходящих при взаимодействии лазерного излучения с фоторефрактивным кристаллом, на оптимизацию структуры и фоторефрактивных свойств, на создание высокосовершенных кристаллов LiNbO_3 с предельно низким эффектом фоторефракции и ФИРС.

Существенно понизить фоторефрактивный эффект в кристалле LiNbO_3 можно путем его легирования «нефоторефрактивными» катионами Mg^{2+} , Zn^{2+} , Gd^{3+} , V^{3+} и др. Однако легирование, особенно при высоких концентрациях легирующих примесей, близких к пороговым, приводит к изменению структуры и состояния дефектности кристалла, к появлению в нем микрообластей, кластеров и других пространственных дефектов, существенно ухудшающих качество оптических материалов. В этой связи актуальной научной задачей большой практической значимости является обнаружение изменений структуры, возникающих при изменении отношения Li/Nb и легировании, дефектов (собственных, примесных и лазерно-индуцированных), структурной и оптической однородности кристаллов LiNbO_3 , выращенных из шихты разного генезиса. Такие исследования чрезвычайно важны также для корректировки технологических режимов выращивания крупногабаритных кристаллов заданного состава с заданными свойствами.

Книга состоит из девяти глав. В главе 1 описаны особенности приготовления шихты, а также способы выращивания монокристаллов LiNbO_3 разного состава методом Чохральского. В главе 2 рассмотрены особенности дефектной структуры монокристаллов LiNbO_3 , как фазы переменного состава, особенности локализации в структуре основных (Li^+ и Nb^{5+}) и примесных катионов, вакансионные сплит-модели описания структурного беспорядка. Особое внимание уделено анализу влияния на фоторефрактивные свойства кристалла LiNbO_3 примесных катионов и собственных дефектов с локализованными электронами. В главе 3 даны общие сведения о коноскопическом методе исследования кристаллов. Подробно описаны практические приложения метода, а также характерные особенности оптической системы для создания коноскопических картин больших размеров. Рассмотрены световые пучки, прошедшие через плоскопараллельную кристаллическую пластину. Глава 4 посвящена описанию формирования коноскопических картин одноосных оптических кристаллов. В ней исследовано распределение интенсивности излучения в коноскопической картине кристаллов, особенности формирования «мальтийского креста», рассмотрено влияние углового распределения интенсивности излучения на коноскопическую картину, методы одновременного наблюдения двух коноскопических картин и методы определения оптического знака кристалла. В главе 5 описаны исследования изменения поляризации излучения в коноскопическом методе. Подробно рассмотрены поляризационные характеристики излучения, преобразование состояния поляризации излучения, визуализация форм

поляризации излучения, влияние фазового сдвига оптического излучения на коноскопические картины, использование оптических свойств системы из двух кристаллических пластин для управления поляризацией излучения, а также сравнительный анализ поляризационных свойств фазовых пластин с различным расположением оптической оси. Глава 6 посвящена анализу коноскопических картин оптически активных кристаллов. В ней описаны волны гирации в оптически активных кристаллах, интерференционный способ определения поляризационных свойств волны гирации, способ определения угловой апертурной характеристики, способ определения направления вращения плоскости поляризации, особенности коноскопических картин кристаллических пластинок разной толщины, способы определения дефектов двулучепреломляющей линзы, рассмотрены интерференционные явления в системе из нескольких оптических элементов. В главе 7 приведены коноскопические картины реальных кристаллов ниобата лития разного состава номинально чистых и легированных широким спектром катионов: Mg, Zn, Gd, B, Cu, Y, кристаллов двойного легирования: $\text{LiNbO}_3\text{:Y:Mg}$, $\text{LiNbO}_3\text{:Gd:Mg}$, $\text{LiNbO}_3\text{:Ta:Mg}$, $\text{LiNbO}_3\text{:Mg:Fe}$, полученным как по единой, так и по разным технологиям изготовления шихты для выращивания кристаллов. Приводятся результаты исследований коноскопических картин кристаллов, полученных при использовании возбуждающего лазерного излучения с разной длиной волны и разной мощности с целью проследить проявление фоторефрактивного эффекта в коноскопических картинах. Глава 8 посвящена описанию природы фоторефрактивного эффекта и ФИРС в монокристаллах LiNbO_3 . В главе 9 представлены результаты оригинальных исследований оптической однородности кристаллов LiNbO_3 в зависимости от состава методом ФИРС. Рассмотрены особенности прохождения лазерного луча через кристаллы LiNbO_3 разного состава. Выполнена классификация всех исследованных кристаллов по их фоторефрактивным свойствам. Рассмотрены фотоэлектрические параметры ФИРС.

Главная задача, которая ставилась при написании книги, показать возможности методов лазерной коноскопии и фотоиндуцированного рассеяния света для исследований структурной и оптической однородности, структурных несовершенств монокристаллических оптических материалов, уделив особое внимание монокристаллу ниобата лития.

Глава 1 ВЫРАЩИВАНИЕ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ МЕТОДОМ ЧОХРАЛЬСКОГО

1.1 Приготовление шихты для выращивания кристаллов ниобата лития

Шихта для выращивания номинально чистых и легированных кристаллов ниобата лития, исследованных в данной работе, была получена как методом высокотемпературного синтеза по традиционной технологии [1-3] (при этом легирующие катионы вводились непосредственно в расплав), так и по новой, разработанной в ИХТРЭМС КНЦ РАН оригинальной технологии получения шихты ниобата лития, синтезированной с использованием твердых прекурсоров $\text{Nb}_2\text{O}_5:\text{Me}$ ($\text{Me}=\text{Mg}, \text{Zn}, \text{B}, \text{Fe}, \text{Gd}$ и др.), полученных путем гомогенного легирования резектракта на стадии экстракционного выделения Nb_2O_5 [4].

Приготовление шихты, особенно для выращивания кристаллов с низким эффектом фоторефракции, является чрезвычайно важной, кропотливой и трудоемкой задачей, поскольку от её качества во многом зависит структурная и оптическая однородность монокристалла, его соответствие конкретным требованиям, предъявляемым предполагаемой областью применения. Главной проблемой при получении шихты ниобата лития любым способом является реализация методов синтеза, позволяющих получить высокочистый однофазный продукт с высокой степенью химической однородности и структурного совершенства, точно заданным соотношением основных компонентов, высоким насыпным весом и однородным составом [1, 4, 5].

Основными способами получения шихты ниобата лития в настоящее время является твердофазный синтез при высоких температурах [4] и низкотемпературный синтез из водных растворов электролитов, который в промышленности не применяется. Твердофазный синтез является наиболее распространенным способом получения шихты ниобата лития. Синтез происходит в результате твердофазного взаимодействия пентаоксида ниобия (Nb_2O_5) с карбонатом лития (Li_2CO_3) при нагревании в интервале температур 600-1100°C [4]. Недостаток этого метода заключается в сложности получения строго монофазной шихты с абсолютно воспроизводимым отношением Li/Nb . При твердофазном синтезе может иметь место неконтролируемое изменение величины $R=\text{Li}/\text{Nb}$ в конечном продукте, что обусловлено, в частности, неконтролируемой стехиометрией пентаоксида ниобия по кислороду. Полнота протекания реакции, степень однофазности и состав конечного продукта при этом зависят от величины зерен, однородности смеси, пассивации тех или иных частиц продуктами реакции. Кроме того, присутствие микроколичеств примесных фаз в шихте вызывает образование микроструктур и неоднородностей плотности кластерного типа в монокристаллах, что приводит к ухудшению физических характеристик, особенно оптических [1, 3, 4].

Важным условием получения шихты ниобата лития с хорошо воспроизводимыми физическими характеристиками, пригодной для выращивания монокристаллов и хорошего оптического качества, является высокая чистота исходных компонентов: Li_2CO_3 и Nb_2O_5 . Требования к шихте, позволяющей выращивать монокристаллы высокого оптического качества допускают содержание катионных примесей на уровне 10^{-3} вес. % [1, 5]. При этом содержание многозарядных катионов переходных металлов ($\text{Fe}^{2+/3+}$, $\text{Cu}^{+/2+}$) значительно влияющих на фоторефрактивный эффект, катионов $\text{Cr}^{2+/3+/6+}$, которые отвечают за образование центров окраски, а также катионов $\text{Si}^{4-/2+/4+}$, Ca^{2+} , Al^{3+} , которые ответственны за образование центров рассеяния и появления различных макродефектов (ячеистой структуры, блоков, двойников, трещин) в кристаллах должно быть снижено на самых начальных этапах приготовления компонентов и шихты в той степени, насколько это максимально возможно [4, 6, 7, 8–18].

Важнейшим фактором в создании высококачественной шихты является процедура гранулирования [1, 5]. Гранулирование приводит к определенной «стандартизации» свойств шихты различного происхождения. Чем более мелкодисперсна шихта, тем более развита ее поверхность. За счет адсорбирующих поверхностно активных примесей и газов, увеличивается вероятность появления газовых включений в расплаве и двойников в кристалле. Процедура высокотемпературного гранулирования во всех случаях приводит к получению однофазного, гомогенного, химически однородного продукта с однородным грансоставом. Необходимость получения гранулированной шихты для производства монокристаллов ниобата лития обусловлена двумя основными факторами:

1. Возможностью неполного прохождения твердофазного взаимодействия даже при прокаливании шихты при температуре 1060–1100°C, особенно в случае синтеза больших количеств исходной смеси в замкнутом объеме (смесь «подпрессованная» в тигель), когда газоотвод из реакционной зоны затруднен. При этом в шихте наблюдается, например, появление примесных фаз, обогащенных по ниобию (LiNb_3O_8) и, соответственно, остается некоторое количество непрореагировавшего щелочного компонента. Последнее приводит к коррозии платинового тигля в процессе наплавления и появлению в расплаве платины (до 0,03 мас. %). Расплав при этом чернеет. Процедура высокотемпературной грануляции во всех случаях приводит к получению однофазного, гомогенного (вследствие интенсификации диффузионных процессов в температурной области предплавления) продукта с однородным грансоставом. Образование в шихте крупных (до 1 мм), отделенных друг от друга гранул снимает проблему газоотвода из реакционной зоны, и синтез проходит наиболее полно. Кроме того, было отмечено, что процедура грануляции приводит к определенной «стандартизации» свойств шихты различного происхождения (за исключением, разумеется, примесного состава по катионной составляющей). В то же время высокотемпературный отжиг шихты (~ 1250°C) не приводит к заметному испарению лития. Состав гранулированной шихты, определяемый по T_k (измеренной методом ДТА) в пределах ошибки измерения соответствовал составу исходной порошковой шихты.

2. Вторым фактором является экономическая целесообразность использования гранулированной шихты, вследствие ее высокого насыпного веса по сравнению с порошковой шихтой. Так, для подготовки цилиндрического тигля диаметром 120 мм к выращиванию монокристалла при использовании порошковой шихты требуется 4 наплавления. Для пополнения убыли расплава после выращивания кристалла требуется 2 наплавления. Таким образом, в технологически приемлемом цикле выращивания семи кристаллов из данной загрузки общее число наплавлений составляет шестнадцать. Помимо ускоренной амортизации платины, затрат на электроэнергию и дополнительных потерь времени это приводит к необходимости увеличения количества платиновой оснастки, используемой в процессе выполнения определенной производственной программы. Подобная ситуация с экономической точки зрения является неприемлемой. С целью оптимизации технологии кристаллов ниобата лития были подробно исследованы закономерности получения гранулированной шихты с высоким насыпным весом. Сама возможность ее получения обусловлена реологическими закономерностями спекания порошковых компактов, которые определяют температурные области уплотнения заготовок и перекристаллизации зерен, сопровождающейся резким увеличением их размеров. Для ниобата лития температура аномальной рекристаллизации находится в температурной области предплавления (1240–1250°C). Эксперименты проводились с целью определения температурных и временных режимов процесса, а также с целью определения условий получения гранулированной шихты с максимальным насыпным весом. Всего было проведено порядка 40 экспериментов по грануляции. Было установлено, что максимальный насыпной вес гранулированной шихты, больший в 2,5 раза насыпного веса порошковой шихты, получается при грануляции спеченных керамических таблеток ниобата лития. Насыпной вес такой шихты составляет ~ 3,6 г/см³. При грануляции предварительно синтезированной порошковой шихты ниобата лития насыпной вес гранулированной шихты был в 2,35–2,4 раза выше, чем у исходной порошковой. И, наконец, при получении гранулированной шихты из смеси $\text{Li}_2\text{CO}_3\text{-Nb}_2\text{O}_5$ в едином цикле синтез-грануляция ее насыпной вес оказался только в 2,15–2,25 раза выше, чем у порошковой шихты. Таким образом, максимальный насыпной вес гранулированной шихты может быть достигнут при использовании таблеток ниобата лития, а наименьший в цикле синтез-грануляция из смеси $\text{Li}_2\text{CO}_3\text{-Nb}_2\text{O}_5$.

Температура грануляции во всех случаях находится в области предплавления и составляет 1240–1250°C. Время выдержки при максимальной температуре при грануляции таблеток - 3 часа, порошковой шихты - 4 часа, и смеси пентаоксида ниобия и карбоната лития - 5 часов.

Для выращивания значительной части номинально чистых и легированных монокристаллов ниобата лития использовалась гранулированная шихта (ТУ 0.027.039), синтезированная в ИХТРЭМС КНЦ РАН. Приготовление шихты подробно описано в работах [1, 2]. Состав шихты соответствовал составу конгруэнтного плавления (48,6 мол. % Li_2O) при содержании катионных примесей на уровне 10^{-4} вес. %. Примесный состав шихты дан в табл. 1.1. При этом легирующие катионы вводились непосредственно в расплав в виде соответствующих оксидов.

Таблица 1.1 – Концентрация посторонних примесей в шихте ниобата лития (ТУ 0.027.039) (вес. $\% \times 10^{-4}$), синтезированной в ИХТРЭМС КНЦ РАН

Mn	Mg	Pb	Sn	Ni	Cr	V	Cu	Co	Bi
1	1	1	1	1	1	1	1	4	4
Mo	Ti	Si	Ca	Fe	Sb	Al	Te	Zr	
4	5	10	10	10	10	10	10	30	

Содержание катионных примесей в шихте определялось методом спектрального анализа. Контроль отклонения шихты ниобата лития от конгруэнтного состава и определение значения R осуществлялся на основе концентрационных зависимостей температуры Кюри, определяемых методом дифференциально-термического анализа (ДТА) [1, 2, 19].

Анализируя данные РФА, ДТА, ТГ, ИК-спектроскопии, а также результаты обработки кинетики реакций с помощью формально-кинетической процедуры с учетом того, что добавление в реакционную смесь примеси в количестве нескольких мольных процентов существенно не изменяет ход твердофазного взаимодействия, предложены следующие режимы синтеза однофазной, химически однородной шихты ниобата лития [20]:

Отжиг пентаоксида ниобия при температуре 1150°C в течение 2 часов. Это позволит существенно понизить концентрацию технологических примесей в пентаоксиде (F^- или Cl^- в зависимости от способа производства пентаоксида). Кроме того, при высокотемпературном отжиге происходит стабилизация пентаоксидов в высокотемпературной полиморфной модификации, что сводит погрешность при взвешивании исходной реакционной смеси ($Li_2CO_3:Nb_2O_5:MeO$), связанную с дефицитом кислорода в Nb_2O_{5-x} к небольшой постоянной систематической ошибке.

Просушивание исходного карбоната лития до постоянного веса, путем прокаливании в сушильном шкафу при 250°C в течение 2 часов.

Взвешивание исходной реакционной смеси ($Li_2CO_3:Nb_2O_5:MeO(Me_2O_3)$), с концентрацией $[Li_2O] = 48,6$ мол. %, что соответствует составу конгруэнтного плавления.

Смешение и гомогенизация реакционной смеси в смесителе «пьяная бочка».

Легкое «подпрессовывание» смеси в тигель при помощи пуансона из органического стекла.

Синтез шихты в следующем температурном режиме:

а) нагрев от $T_{комн.}$ до 1100°C в течение 3 часов;

б) выдержка при 1100°C в течение 2 часов. При этой температуре завершается синтез и происходит компактирование монофазной шихты ниобата лития.

Грануляция шихты ниобата лития, включающая в себя нагрев от 1100°C до области предплавления (1250°C) в течение 0,5 часа и выдержку при этой температуре в течение 5 часов.

Таким образом, при твердофазном легировании смесь $Li_2CO_3:Nb_2O_5$ ($Li/Nb = 0,946$) и $MeO(Me_2O_3)$ в необходимых весовых соотношениях длительное время (в течение 24 часов) тщательно перемешивают в смесителе

«пьяная бочка». Полученная смесь $\text{Li}_2\text{CO}_3\text{:Nb}_2\text{O}_5\text{:MeO}(\text{Me}_2\text{O}_3)$ за три часа нагревается до 1100°C , выдерживается два часа, за $0,5$ часа нагревается до температуры $T \sim 1250^\circ\text{C}$ и подвергается грануляции в течение 5-ти часов. Полученная гранулированная шихта $\text{LiNbO}_3\text{:Me}$ имеет насыпную плотность $\sim 3,4 \text{ г/см}^3$ и используется для выращивания монокристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Me}$. Следовательно, в этом случае синтез, легирование и грануляция шихты ниобата лития происходят в едином технологическом цикле: твердофазный синтез смеси ($\text{Li}_2\text{CO}_3\text{:Nb}_2\text{O}_5\text{:MeO}(\text{Me}_2\text{O}_3)$) – грануляция легированной шихты ниобата лития.

Основным недостатком метода прямого легирования шихты являются возможность появления полос роста и растрескивания кристаллов ниобата лития из-за возникающих послеростовых термических напряжений. Наличие дефектности и неоднородности ведет к отбраковке отдельных участков кристаллов при изготовлении из них оптических устройств.

Состояние дефектности структуры легированных кристаллов ниобата лития можно существенно улучшить за счет достижения максимальной степени химической гомогенности исходных компонентов при синтезе шихты ниобата лития [2]. С этой целью легирующие катионы целесообразно вводить не в расплав в процессе выращивания монокристалла (так как это описано выше), а непосредственно в пентаоксид ниобия Nb_2O_5 на стадии реэкстракции, который так же, как и кристалл ниобата лития, имеет кислородно-октаэдрическую структуру и является фазой переменного состава. Предварительные результаты, полученные в работах [4], показывают, что при таком способе синтеза достигается существенное повышение химической гомогенности шихты LiNbO_3 , а, следовательно, возможно уменьшение в кристалле количества дефектов с локализованными электронами, повышение структурной и оптической однородности кристалла, сдвиг края поглощения в коротковолновую область, а также снижение эффекта фоторефракции и повышения стойкости к оптическому повреждению [4, 21, 22]. Этот способ создания легированных кристаллов ниобата лития начал применяться лишь в последние годы и в литературе совершенно не исследован. С использованием данного метода легирования были получены исследованные в данной работе монокристаллы $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}^{2+}(0,078 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}^{3+}(0,51 \text{ вес. \%})$, и дважды легированный $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}(0,0036)\text{:Mg}(0,09 \text{ вес. \%})$. Получение легированного пентаоксида ниобия и способы введения различных легирующих катионов подробно описаны в [4, 23, 24]. При этом сырьем для получения пентаоксида ниобия являлись отходы от номинально чистых кристаллов ниобата лития [23, 24]. Пентаоксиды ниобия, полученные легированием в реэкстракт, по содержанию регламентированных примесей соответствовали техническим нормам, предъявляемым для получения шихты ниобата лития оптического качества.

Метод гомогенного легирования основан на том, что легирующая добавка вводится в пентаоксид ниобия на стадии его выделения из высокочистых ниобийсодержащих растворов. Полученный при этом легированный пентаоксид ниобия ($\text{Nb}_2\text{O}_5\text{:Me}$) используется как прекурсор при синтезе шихты ниобата лития. Затем из легированной шихты методом Чохральского выращивают легированные кристаллы $\text{LiNbO}_3\text{:Me}$. В работе [25] впервые была сформулирована идея технологии гомогенного легирования, осуществляе-

мая путем добавления легирующей примеси в высокочистый ниобийсодержащий раствор (реэкстракт), получаемый при экстракционной переработке редкометалльного сырья. При этом в кристаллах LiNbO_3 , выращенных из шихты, синтезированной с использованием твердого прекурсора $\text{Nb}_2\text{O}_5\cdot\text{B}$, отсутствовали микродефекты, что, в свою очередь, свидетельствует о высокой оптической их однородности и стойкости к оптическому повреждению. Предлагаемая технологическая схема позволяет ввести в расплав ниобата лития примесь бора в концентрации не превышающей 0,01 %. При этом в кристалле примесь неметаллического элемента бора отсутствует. Но элемент бор структурирует расплав таким образом, что оптические свойства и композиционная однородность кристалла заметно улучшаются.

Способ гомогенного легирования получил дальнейшее развитие и был использован нами для введения металлических нефоторефрактивных примесей Mg, Zn, Fe, TR (TR = La, Pr, Nd, Sm, Gd, Dy, Er), B в пентаоксид ниобия, выделяемый на стадии экстракционной переработки сырья редких металлов [23–33]. Исследования показали, что для достижения в кристаллах ниобата лития «пороговых» и более высоких концентраций примеси, легирование Nb_2O_5 магнием, железом следует осуществлять путем введения примеси в высокочистый ниобийсодержащий раствор. В то же время, введение примеси цинка, редкоземельных элементов и бора следует проводить в высокочистый гидроксид ниобия, получаемый путем его аммиачного осаждения из ниобийсодержащего раствора.

При получении прекурсора $\text{Nb}_2\text{O}_5\cdot\text{B}$ [33] примесь бора вводится в виде борной кислоты H_3BO_3 в высокочистый гидроксид ниобия с последующей упаркой образующейся суспензии и ее прокалкой. В работе [33] показано, что монофазная шихта $\text{LiNbO}_3\cdot\text{B}$ получается при содержании бора в ней менее 2 мас. %. На основе проведенных исследований авторы определили условия, позволившие синтезировать химически однородную шихту $\text{LiNbO}_3\cdot\text{B}$ заданного состава.

При использовании метода гомогенного легирования примесями Mg, Zn, Fe, B, TR шихты LiNbO_3 конгруэнтного состава установлено, что температура грануляции зависит от вводимой примеси и ее концентрации и в каждом случае выбирается из результатов дифференциально термического анализа.

По данным химического анализа состав шихты соответствовал области конгруэнтного плавления и составлял, мас. %: Nb 62,28–62,9, Li 4,40–4,46. Средний размер гранул легированной шихты ниобата лития находился в пределах 1,2–1,4 мм. По данным рентгенофазового анализа все исследуемые образцы были монофазны. Индивидуальное содержание микропримесей в шихте составляло, мас. %: Pb, Ni, Cr, Co, V, Ti, Fe, Al менее $2 \cdot 10^{-4}$, Ca, Si менее $1 \cdot 10^{-3}$, Ta менее $1 \cdot 10^{-2}$, F менее $1 \cdot 10^{-4}$, что соответствует техническим условиям на использование шихты для выращивания монокристаллов ниобата лития.

Кристаллы $\text{LiNbO}_3\cdot\text{Mg}$ с концентрациями легирующих примесей в области «пороговых» составов характеризуются большой композиционной неоднородностью. Как показали наши исследования, существенное влияние на однородность распределения примеси и оптическое качество кристаллов ниобата лития может оказывать генезис исходных компонентов на стадии формирования легированной шихты. В работах [4, 23, 24, 26–28] описан

метод гомогенного легирования магнием кристаллов ниобата лития и проведено сравнительное исследование структурной и оптической однородности кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$, полученных методами гомогенного и прямого легирования шихты. Показано, что структурная и оптическая однородность кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$, полученных из шихты, синтезированной с использованием гомогенных прекурсоров $\text{Nb}_2\text{O}_5:\text{Mg}$, существенно выше, чем у кристаллов полученных с использованием метода прямого легирования шихты ниобата лития.

Установлено, что при использовании методов гомогенного легирования в отличие от метода прямого легирования коэффициент распределения K_p близок к единице. То есть, метод гомогенного легирования позволяет ввести существенно большую концентрацию примесного элемента в кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$, чем метод прямого легирования шихты при одинаковой концентрации примеси в исходной шихте.

В работе [34] отмечено, что при обеспечении стабильных тепловых условий роста монокристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ из гомогенно легированной шихты можно получить практически бездефектные кристаллы, которые обладают более высокой степенью оптической однородности по сравнению с кристаллами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$, выращенными по методу прямого легирования.

Технологический подход, связанный с введением легирующей примеси гадолиния в пентаоксид ниобия и дальнейшим использованием гомогенно легированного прекурсора в синтезе шихты $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ подтвердил возможность получения из нее оптически совершенных кристаллов ниобата лития с однородным распределением примеси Gd [35].

Таким образом, использование метода гомогенного легирования для получения шихты ниобата лития позволяет выращивать из нее кристаллы, в которых отсутствуют полосы роста и другие макро- и микродефекты. Легированные монокристаллы ниобата лития характеризуются улучшенными оптическими характеристиками.

1.2 Выращивание номинально чистых и легированных кристаллов ниобата лития из расплава конгруэнтного состава

Номинально чистые и легированные ионами Zn^{2+} , Cu^{2+} , Mg^{2+} , B^{3+} , Gd^{3+} , Y^{3+} , Ta^{5+} кристаллы LiNbO_3 выращивались в воздушной атмосфере методом Чохральского на установке «Кристалл-2», снабженной системой автоматического весового контроля, позволяющей поддерживать постоянные условия в процессе кристаллизации различных образцов и, следовательно, выращивать их с достаточно воспроизводимыми характеристиками.

Выращиванию кристаллов LiNbO_3 методом Чохральского посвящено много работ, которые систематизированы в диссертациях и монографиях [5, 19, 21, 36, 37, 38]. Тем не менее, есть необходимость пояснить некоторые особенности выращивания, имеющие непосредственное отношение к кристаллам, исследованным в данной работе. Все монокристаллы, исследованные в данной работе, выращивались в направлении полярной оси (Z - срез)

при скорости вращения 16 об./мин и скорости перемещения 0,8 мм/час. Скорость роста при этом составляла 1,08 мм/час. Процесс заканчивали при достижении массы кристалла ~ 130 г, при этом кристаллизовалось не более 15 % массы расплава. Параметры кристаллов были следующими: длина конуса – 17 мм, длина цилиндрической части – 30 мм, диаметр кристалла – 30 мм, длина обратного конуса – 5 мм [1, 37].

Выращивание проводилось из платиновых тиглей диаметром 80–120 мм на воздухе в условиях малого (~ 2 град/см) осевого температурного градиента. Непосредственно перед выращиванием кристалла расплав подвергался перегреву и выдерживался в течение двух часов при температуре, значительно (~ на 200°C) превышающей температуру плавления, с целью повышения гомогенности расплава и исключения газовых включений. Перегрев расплава способствует разрушению ассоциативных связей, что, в свою очередь, позволяет достичь необходимой однородности монокристалла. Исследования [1, 5, 19, 37] показали, что отсутствие перегрева расплава перед выращиванием неизбежно приведет к присутствию нежелательных микровключений в структуре выращенного кристалла. Затем расплав постепенно охлаждался до температуры затравливания. Затравливание кристалла производилось не раньше, чем через 5–7 часов после получения расплава. В зависимости от температурных условий и скорости роста монокристалла, которая в наших условиях составляла 1,0–1,1 мм/час, скорость вращения кристалла составляла, соответственно, 14–16 об./мин. Осевого температурного градиента непосредственно над расплавом составлял 2 град/мм.

В зоне послеростового отжига кристалла была сформирована практически изотермическая область с температурой 1205 °C. При этой температуре кристалл выдерживался в течение двух часов. Этого времени достаточно, чтобы снять термоупругие напряжения в кристалле и обеспечить его последующую обработку. Следующим этапом было охлаждение кристалла до комнатной температуры со скоростью 50 град/час [1, 2, 37].

Выращенный кристалл подвергался дополнительному отжигу в печи сопротивления «Лантан» при 1200 °C, после чего производилось его охлаждение со скоростью 20 град/час до температуры 1000 °C. При этом в процессе охлаждения к кристаллу прикладывалось постоянное напряжение с целью его монодоменизации. Монодоменность кристаллов контролировали электроакустическим методом, основанным на измерении электрического импеданса.

Условия роста легированных кристаллов ниобата лития отличаются от условий выращивания номинально чистых кристаллов по причине того, что при добавлении примеси к «чистому» расплаву температура плавления расплава либо повышается, либо понижается. Особенно это касается высоких концентраций легирующих элементов – более 1 вес. %. Существенным образом отличается и процесс подготовки расплава для выращивания легированных монокристаллов перед затравливанием. Для полной гомогенизации расплава перегрев для каждой серии легированных кристаллов составлял от 110 до 180°C выше температуры получения расплава. При этом расплав в перегретом состоянии выдерживался не менее двух часов с целью увеличения степени однородности состава и более эффективного удаления газовых включений. Затем, уменьшив мощность нагревателей до температуры

затравливания, расплав выдерживался еще в течение часа с целью стабилизации его свойств.

Оптическое качество монокристаллов ниобата лития оценивалось по средней плотности центров рассеяния (микродефектов) в объеме кристалла при прохождении через него лазерного луча, а также методом лазерной коноскопии и фотоиндуцированного рассеяния света. Однородность состава по основным компонентам контролировалась по значению температуры Кюри (T_K), измеренной методом ДТА для пластин, срезанных с верхней и нижней части монокристаллической були. В таблице 1.2 указаны следовые количества катионных примесей в исследованных в данной работе кристаллах ниобата лития конгруэнтного состава, определенные методом спектрального анализа. Видно, что кристаллы отличаются высокой однородностью вдоль оси роста по составу примесей и основных компонентов, о чем свидетельствует также совпадение температур Кюри верхней и нижней частей були, таблица 1.2. Аналогичные результаты по концентрациям соответствующих примесей были получены и для легированных кристаллов ниобата лития.

Таблица 1.2 – Результаты спектрального анализа пластин, срезанных с верхней и хвостовой части кристалла ниобата лития

Примесь	Содержание примеси, мас. %	
	Верх	низ
Zr	$<1 \cdot 10^{-2}$	$<1 \cdot 10^{-2}$
Mo	$<1 \cdot 10^{-3}$	$<1 \cdot 10^{-3}$
Ca	$<5 \cdot 10^{-3}$	$<5 \cdot 10^{-3}$
Fe	$<1 \cdot 10^{-3}$	$<1 \cdot 10^{-3}$
Ti	$<1 \cdot 10^{-3}$	$<1 \cdot 10^{-3}$
Si	$<1 \cdot 10^{-3}$	$<1 \cdot 10^{-3}$
Pb, Ni, Cr, Co	$<1 \cdot 10^{-3}$	$<1 \cdot 10^{-3}$
Al	$<5 \cdot 10^{-4}$	$<5 \cdot 10^{-4}$
Cu	$<5 \cdot 10^{-4}$	$<5 \cdot 10^{-4}$
Mn, V, Mg, Sn	$<5 \cdot 10^{-4}$	$<5 \cdot 10^{-4}$
$T_K, ^\circ\text{C}$	1145,0	1145,0

1.3 Выращивание кристаллов ниобата лития стехиометрического состава

Выращивание кристаллов стехиометрического состава вследствие особенностей фазовой диаграммы ниобата лития представляет собой достаточно сложную техническую задачу. Из фазовой диаграммы следует, что конгруэнтный состав (48,6 мол. % Li_2O) не соответствует стехиометрическому соотношению составных компонентов этого соединения. Только в единственной (дистектической) точке, отвечающей указанному составу с максимальной температурой плавления, составы расплава и выращенного из него кристалла идентичны. Кристаллы стехиометрического состава могут быть выращены из расплава, содержащего $\sim 58\% \text{Li}_2\text{O}$, т.е., фактически из рас-

твора в расплаве, где растворителем является Li_2O . Значительное различие в составах расплава и кристалла обуславливает необходимость существенно (на несколько порядков) уменьшения скорости (V) выращивания по сравнению с конгруэнтными кристаллами для подавления концентрационного переохлаждения, приводящего к заметным изменениям состава кристалла на различных стадиях процесса. Поэтому, даже при очень малой скорости вытягивания (гораздо меньше $V < 0,1$ мм/ч) из 200 г расплава может быть выращен кристалл диаметром 10 мм и длиной всего 4 мм с однородностью по Δn (n – показатель преломления), сравнимой с таковой для конгруэнтных кристаллов ($\Delta n \sim 2 \cdot 5 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$), выращиваемых обычно при 3–5 мм/ч и более для таких диаметров [37]. На практике данным методом невозможно выращивать монокристаллы стехиометрического состава большого диаметра, необходимые для изготовления оптических элементов, используемых в оптическом приборостроении, квантовой электронике и т.п.

В этой связи несомненный интерес представляет выращивание кристаллов ниобата лития из расплава стехиометрического состава в присутствии щелочного растворителя – примеси K_2O [1, 37]. Присутствие в расплаве щелочного растворителя K_2O позволяет выращивать крупногабаритные кристаллы ниобата лития стехиометрического состава из расплава конгруэнтного состава. Образцы, выращенные данным методом, не уступают по оптическим характеристикам конгруэнтным кристаллам [22, 37, 39, 40]. При этом содержание примеси калия в выращенном кристалле не превышает 0,01–0,02 вес. %.

Среди отличительных особенностей примеси K_2O в сравнении с другими растворителями обращают на себя внимание практически одинаковые кривые ликвидуса для расплавов ниобата лития, содержащих от 48,6 до 58 мол. % Li_2O и конгруэнтных расплавов, содержащих 0–6 вес. % K_2O [37]. Если учесть, к тому же, что 6 вес. % K_2O составляют в пересчете около 9,3 мол. %, то приведенные выше совпадения оказываются неслучайными, поскольку в этом случае мы имеем почти 58 %-ое суммарное содержание в расплаве родственных щелочных компонентов (48,6 мол. % Li_2O + 9,3 мол. % K_2O = 57,9 мол. %), определяющее, на наш взгляд, химическую природу и структуру расплава [22, 37]. При выращивании кристаллов ниобата лития с добавлением щелочного флюса K_2O из расплавов, в которых отношение Li/Nb соответствует составу конгруэнтного плавления, кристалл с $\text{Li/Nb} = 1$ может быть получен, если содержание K_2O в расплаве составляет ~ 6 вес. %. При большем содержании K_2O происходит кристаллизация двух фаз, а при меньшем – кристаллизуется LiNbO_3 , дефицитный по литию по отношению к стехиометрическому ($0,946 < \text{Li/Nb} < 1$), то есть получается монокристалл промежуточного состава между конгруэнтным и стехиометрическим. Процесс получения кристаллов с разным отношением Li/Nb можно эффективно контролировать методом спектроскопии КРС по интенсивности линии с частотой 120 см^{-1} , соответствующей двухчастичным состояниям акустических фононов [22, 24, 39, 41, 42].

Отсутствие же калия в кристаллах, выращенных таким способом, становится очевидным из сравнения ионных радиусов Li^+ и K^+ (0,68 и 1,38 Å, соответственно), поскольку при столь значительном (более чем в два раза) различии ионных радиусов изоморфное замещение родственных элементов

щелочной группы (лития калием) в катионной подрешетке кристалла представляется маловероятным. Согласно результатам атомно-абсорбционного анализа, содержание калия в исследованных в данной работе кристаллах LiNbO_3 стехиометрического состава и составов, близких к стехиометрическому, выращенных из конгруэнтных расплавов с различной концентрацией K_2O (1,0-6,0 вес. %), пренебрежимо мало и не превышало 10^{-2} - 10^{-3} вес. % [37]. Принадлежность этих кристаллов к указанным составам подтверждают также измерения температуры 90° -ного синхронизма (при генерации второй гармоники) на YAG:Nd^{3+} , $\lambda = 1,06$ мкм ($191,3^\circ\text{C}$), температуры стирания наведенной оптической неоднородности (110°C), параметров решетки ($a = b = 5,1500$ и $5,1484$ Å и $c = 13,8632$ и $13,8591$ Å) соответственно для конгруэнтного и стехиометрического составов, а также результаты химического, рентгенофлуоресцентного и электронно-микроскопического анализов, ЭПР и ЯМР и измерений параметров решетки [37].

Помимо этого, необходимо отметить, что расплавы, содержащие 58 мол. % Li_2O и 9,3 мол. % (6 вес. %) K_2O , из которых выращивались исследованные в данной работе монокристаллы LiNbO_3 стехиометрического и близкого к таковому составов, обладают равными температурами плавления [37, 39].

1.4 Послеростовая термическая и электротермическая обработка кристаллов ниобата лития

Выращенный кристалл ниобата лития не обладает совершенной монокристаллической структурой, содержит большое количество разнообразных структурных макро- и микродефектов и разбит на сегнетоэлектрические домены – области кристалла с противоположным направлением вектора спонтанной поляризации. Поэтому монокристаллы ниобата лития, перед тем как приступать к их механической обработке с целью создания устройств электронной и лазерной техники, необходимо подвергнуть нескольким термическим и электротермическим операциям обработки. Перечислим операции получения кристалла:

1. Выращивание кристаллов ниобата лития в ростовых установках.
2. Послеростовой отжиг (ПО), проводящийся непосредственно в ростовой камере после отрыва кристалла от расплава.
3. Послеростовой термический отжиг (ТО) кристаллов в печах сопротивления.
4. Высокотемпературный электродиффузионный отжиг (ВТЭДО) в установке «Лантан».

Монодоменизация или ВТЭДО является последней и самой ответственной послеростовой электротермической операцией. Ее проводят не только с целью формирования монодоменного состояния кристалла, но и для максимально возможного избавления от макро-, мезо- и микродефектной структуры кристаллов ниобата лития.

Подробное описание ВТЭДО нелегированных кристаллов ниобата лития приведены в работе [1]. Перед ВТЭДО проводится шлифовка торцов були, затем ее устанавливают хвостовой частью в Pt-чашу на слой шихты ниобата

лития, которая служит одним из электродов. На конусную часть кристалла через слой микрокристаллического порошка, полученного длительным размолотом кристаллического ниобата лития в шаровой мельнице с халцедоновой оснасткой, устанавливаются пластины ниобата лития, затем - проволочный Pt-электрод. Таким образом, образец включается в электрическую цепь и через него проходит постоянный ток, значение которого рассчитывается так, чтобы плотность тока на контактной поверхности не превышала $\sim 1\text{--}2$ мА/см². Напряжение источника питания подбирается таким образом, чтобы на начальном этапе процесс проходил в режиме стабилизации тока.

Технологическая процедура режима ВТЭДО номинально чистых кристаллов ниобата лития конгруэнтного состава состоит из нескольких этапов:

Нагрев до температуры $\sim 1180^\circ\text{C}$;

Выдержка ~ 1 час при температуре $\sim 1180^\circ\text{C}$;

Подключение электрического напряжения и выдержка образца под током в течение ~ 30 минут;

Охлаждение под напряжением со скоростью 20 град/час до температуры $\sim 1100^\circ\text{C}$;

Отключение напряжения и продолжение охлаждения со скоростью 50 град/час до температуры $\sim 500^\circ\text{C}$;

Отключение печи по достижении $\sim 500^\circ\text{C}$ и начало естественного охлаждения кристалла.

Перед ВТЭДО сильно легированных кристаллов ниобата лития, например кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$, как и для случая номинально чистого кристалла LiNbO_3 , проводится шлифовка торцов були, затем ее устанавливают хвостовой частью в Pt-чашу на слой шихты ниобата лития, которая служит одним из электродов. При монодоменизации кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ также использовались платиновые электроды, подающие электрическое напряжение на кристалл $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ через слой микрокристаллического порошка, полученного путем длительного помола монокристаллических фрагментов номинально чистых кристаллов ниобата лития конгруэнтного состава в шаровой мельнице с халцедоновой оснасткой. Монодоменизация или ВТЭДО сильно легированных ($\sim 4,0\text{--}9,0$ ZnO мол. % в расплаве) кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ первоначально проводилась после длительной выдержки при максимальной температуре $1241\text{--}1243^\circ\text{C}$ без подключения электрического поля. Максимальная температура выдержки зависит от концентрации примеси в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$. Далее к кристаллу $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ с использованием источника питания Б5-50, работающего в режиме стабилизации тока подключалось электрическое напряжение. Первоначально напряжение на источнике питания Б5-50 поднималось до его перехода в режим стабилизации тока (величина тока составляла ~ 4 мА). Начальное напряжение стабилизации, по крайней мере, для малогабаритных кристаллов составляло $4\text{--}7$ В и зависело от концентрации примеси в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ и его геометрических размеров (диаметра и длины цилиндрической части), которые могли несколько различаться для разных образцов кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$. В целом, первоначальная напряженность электрического поля в кристаллах при монодоменизации находилась в пределах $\sim 1,7\text{--}2,3$ В/см. Выдержка кристалла при максимальной температуре в условиях приложения электрического напря-

жения осуществлялась в течение 1–5 часов и зависела от концентрации цинка в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$. Далее, проводилось охлаждение кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ в условиях протекания через него электрического тока величиной 4 мА от максимальной температуры $\sim 1241\text{--}1243^\circ\text{C}$ до температуры $\sim 900^\circ\text{C}$ со скоростью $\sim 20^\circ/\text{час}$. После этого осуществлялось охлаждение в отсутствие электрического поля со скоростью $\sim 50^\circ/\text{час}$. Монодоменизация сильно легированных кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ требует существенно больших энергетических и временных затрат, чем монодоменизация номинально чистых кристаллов ниобата лития конгруэнтного состава LiNbO_3 .

Для любого технологического процесса обязательно предусмотрены методы выходного контроля. Так, для проверки результатов монодоменизации (степени униполярности) и оценки дефектной структуры кристаллов ниобата лития применяют несколько методов: исследование амплитудно-частотной характеристики (АЧХ) выращенного кристалла; измерение величины статического пьезоэлектрического модуля d_{33} кристаллической були; подсчет среднего количества центров рассеяния (ЦР) в объеме кристаллической були и оптическая микроскопия (ОМ). Перечисленные методы направлены на выявление дефектов кристалла разного масштабного уровня и класса. Первые два, подробно описанные в работе [1], относятся к методам экспресс-оценки и используются для выявления макродефектов и остаточных доменов в объеме кристаллической були. Методы подсчета среднего количества центров рассеяния в объеме кристаллической були и оптической микроскопии используются для оценки оптической однородности кристалла и оценки степени его структурного совершенства на макро- и микроуровне.

Процесс монодоменизации является одним из важных технологических приемов, используемых при производстве монокристаллических пластин ниобата лития, предназначенных для изготовления акустических фильтров, акустических линий задержки, элементов нелинейной оптики. Существуют различные методы оценки степени монодоменности сегнетоэлектриков. Их можно разделить на количественные и качественные (акустические). Возможности их применения в технологической цепочке получения изделий из ниобата лития, определяются, в первую очередь технологическими требованиями к степени монодоменности материала, трудоемкости процесса измерения, воспроизводимости и достоверности получаемых результатов. На предварительных стадиях изготовления различных устройств из монокристаллов ниобата лития целесообразно использование экспресс-методов оценки степени монодоменности. Одним из наиболее удобных, с этой точки зрения, является пьезоакустический метод контроля. Этот метод качественный и заключается в следующем.

Поскольку ниобат лития – пьезоэлектрик, то при приложении к нему электрического поля в нем за счет обратного пьезоэффекта могут возбуждаться упругие колебания. Эти колебания из-за прямого пьезоэффекта вызывают изменение электрических характеристик материала (эффективной диэлектрической проницаемости, характеристического импеданса образца и т.п.). Величина этих изменений существенным образом зависит от степени униполярности материала, меняясь от максимального в случае полностью монодоменного кристалла и практически до нуля, в случае полностью

полидоменного кристалла. Таким образом, измеряя пьезоэлектрические характеристики ниобата лития, можно качественно судить о его доменной структуре.

Для качественной оценки степени монодоменизации образца пьезоакустическим методом используется специальная установка, позволяющая измерять частотную характеристику электрического импеданса образца. При исследованиях пьезоакустическим методом образец монокристаллического ниобата лития в виде бруска или цилиндра заданных размеров помещается в измерительную головку между двумя металлическими электродами. На один из электродов с генератора синусоидальных колебаний подается электрическое напряжение ($\sim 0,1$ – 1 В). В образце при этом возбуждаются пьезоупругие колебания, вызывающие соответствующие изменения электрического импеданса образца. Напряжение, снимаемое со второго электрода, закономерно зависит от электрического импеданса образца. Напряжение в случае необходимости усиливается, детектируется и подается на вход встроенного в измеритель амплитудно-частотных характеристик осциллографа, развертка которого синхронизирована с генератором. Наблюдаемая при этом на экране амплитудно-частотная характеристика имеет вид резких пиков, соответствующих минимуму импеданса. Вблизи механического резонанса образца наблюдается резкий максимум сигнала. Такие же максимумы можно наблюдать и на частотах, соответствующих обертонам образца. Наличие в образцах остаточных доменов ухудшает наблюдаемую амплитудно-частотную характеристику: уменьшается амплитуда сигнала в максимуме, пик уширяется, и вблизи него появляются дополнительные пики. Кроме того, возможно появление новых пиков на амплитудно-частотной характеристике, соответствующих другим модам упругих колебаний, и, наоборот, исчезновение пиков, соответствующих основной моде, характерной для монодоменного образца, той же ориентации и размеров. Иногда встречаются такие полидоменные образцы, когда резонансы на амплитудно-частотной характеристике практически не наблюдаются.

Эффективность применения пьезоакустического метода зависит от ориентации кристаллографических осей материала относительно осей симметрии образца и от направления приложенного электрического поля, что связано с числом упругих мод, возбуждаемых электрическим полем. Чем меньше упругих мод возбуждается в монодоменном образце, тем легче по изменению амплитудно-частотного спектра образца судить о степени его монодоменности. В случае произвольной кристаллографической ориентации амплитудно-частотный спектр даже монодоменного образца является относительно сложным. Поэтому при практическом применении описываемого экспресс-метода для получения более надежной информации о степени монодоменности исследуемого образца следует производить сравнение с эталонным образцом той же ориентации и размеров (для простых ориентаций наличие эталонного образца не столь обязательно). Поскольку скорость звука (упругие модули) и пьезомодули ниобата лития могут зависеть от состава шихты, легирования и технологии получения монокристаллов, при контроле больших серий образцов эталонные образцы должны изготавливаться из того же материала и тех же размеров, что и исследуемые кристаллы.

В качестве эталонов берутся монокристаллические образцы, степень монокристаллическости которых оценивается независимым методом (например, оптическим или по измерению статического пьезомодуля).

Таким образом, описанный метод пьезоакустического контроля степени монокристаллическости кристаллов ниобата лития относится к качественным экспресс-методам анализа. Скорость измерения этим методом достаточно высока, требования к образцам на уровне заводских полуфабрикатов. Метод позволяет вполне надежно проводить первичную качественную оценку степени монокристаллическости кристаллов ниобата лития.

С использованием данных, полученных при исследовании эталонных образцов, по такой же принципиальной схеме проводится оценка степени униполярности кристаллических булей ниобата лития. Для этого конус и торец кристалла шлифуются до получения образца цилиндрической формы. В качестве электродов в этом случае используется тонкая серебряная фольга, имеющая хорошую адгезию к поверхности кристалла. Образец помещается в держатель, на него подается механическая нагрузка и по величине связанного (поляризационного) заряда определяется статический пьезомодуль d_{333} .

Остаточная доменная структура и оптическая однородность кристаллов ниобата лития оценивалась по центрам рассеяния лазерного излучения. Экспресс-оценка оптической однородности кристаллов ниобата лития основана на эффекте рассеивания лазерного луча дефектом кристалла. Задача настоящей методики состоит не в доскональном и точном подсчете количества центров рассеяния в кристалле, а в качественной оценке соответствия дефектной структуры кристалла дефектной структуре кристалла ниобата лития оптического качества. Используется гелий-неоновый лазер ЛГ-112 с длиной волны 632,8 нм и средней мощностью излучения ~ 4–8 мВт, линза и координатный столик, на котором размещается кристалл. Контролируемый образец должен иметь четыре попарно параллельные полированные плоскости с чистотой обработки поверхности не хуже $R_z = 0,1$ и располагается перпендикулярно лазерному лучу. Визуально на поверхность кристалла, перпендикулярную направлению лазерного луча, накладывается воображаемая сетка, узлы которой являются местами вхождения лазерного луча. Важно, чтобы расстояние между узлами h было не меньше, чем удвоенный диаметр лазерного луча ($h \geq 2d$, где d – диаметр пучка лазерного излучения в фокусе используемой линзы). Измерение начинается с любого крайнего положения. Луч входит в кристалл и, если на его пути присутствуют дефекты, то они начинают проявляться свечением, образуя центр рассеяния. Далее подсчитывается количество таких центров рассеяния. Для подсчета плотности (среднего количества) центров рассеяния общее подсчитанное количество рассеивающих лазерный свет дефектов делится на объем кристалла. Считается, что проверяемый образец ниобата лития является материалом оптического качества, если средняя плотность центров рассеяния в объеме кристалла $\bar{\rho} < \sim 10 \text{ см}^{-3}$.

Исследования макро- и микродефектной структуры легированных кристаллов ниобата лития проводили с помощью системы анализа изображения «Thixomet», включающей оптический микроскоп Axio Observer.D1m фирмы «Carl Zeiss», состыкованный через цифровую видеокамеру PixeLink

PL-B774U с компьютером, оснащенным программой «ThixometPRO». Кристаллические пластины предварительно шлифовали, полировали и подвергали химическому травлению при комнатной температуре в течение 20 часов в смеси минеральных кислот $\text{HF}:\text{HNO}_3 = 1:3$. В арсенале оптической микроскопии имеется целый ряд методов исследования макро- и микро-структуры кристалла для оценки его качества, в частности: наблюдение в светлом поле, темном поле и с помощью модуля ДИК (дифференциально-интерференционного контраста). Кроме того, для критериальной оценки качества кристаллов необходима методика подсчета количества дефектов (КД) в исследуемом срезе кристалла.

Описываемая методика позволяет сделать количественное сравнение дефектного состояния образца с целью оптимизации режимов ТО и ВТЭДО, оценить влияние параметров синтеза и роста на качество легированных кристаллов. Так, в работе [4] методом сравнения количества дефектов определили степень влияния генезиса шихты на оптическую и концентрационную однородность. Исследования проводили на кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ ($[\text{Mg}] \geq 5$ мол. %), выращенных методом Чохральского из шихты, синтезированной с использованием твердого прекурсора $\text{Nb}_2\text{O}_5:\text{Mg}$, полученного при гомогенном легировании магнием резкстракта на стадии экстракционного выделения Nb_2O_5 , а также на кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$, выращенных при прямом добавлении оксида магния в шихту перед наплавлением тигля. Суть количественного анализа заключается в автоматическом подсчете дефектов, зафиксированных на панораме изображения исследуемого образца и дальнейшем анализе полученных результатов. Панорама строится с помощью программного комплекса «ThixometPRO», что позволяет охватить большую площадь образца, не ограничиваясь одним полем зрения, получая тем самым более достоверные данные. У микроскопа Axio Observer.D1m имеется пять объективов: $\times 5$, $\times 10$, $\times 20$, $\times 50$ и $\times 100$, но оптимальным оказалось использование объектива $\times 20$, т.к. меньшее увеличение будет приводить к потере информации, а большее – к повышению трудоёмкости, связанному с меньшим полем зрения (при $\times 20$ поле зрения равно $0,31 \text{ мм}^2$, а при $\times 50$ оно составляет лишь $0,078 \text{ мм}^2$) и, как следствие, большему времени для создания панорамы изображения одной и той же площади. Для проведения анализа выбирали наиболее характерную область кристалла и строили панораму площадью $\sim 1 \text{ мм}^2$. Из большого числа вариантов, предлагаемых программным комплексом, были выбраны «площадь» и «средний размер» структурной единицы, что в нашем случае означало площадь и средний размер дефекта. После анализа панорамы получали результаты в виде среднего размера дефекта, средней площади дефекта, количества дефектов, размера анализируемой площади и площади, занимаемой дефектами, в процентах к общей площади. Дополнительно рассчитывалась плотность дефектов.

Глава 2 СТРУКТУРА КРИСТАЛЛА НИОБАТА ЛИТИЯ

2.1 Особенности структуры ниобата лития

В сегнетоэлектрической фазе ниобат лития является одноосным оптически отрицательным ($n_e = 2,2082$ и $n_o = 2,2967$ для $\lambda = 0,6$ мкм) кристаллом, структура которого характеризуется отсутствием центра инверсии. Пространственная группа симметрии сегнетофазы $-C_{3v}^6(R3c)$ [43–46]. Элементами симметрии являются ось третьего порядка (полярная ось кристалла) и три плоскости, отражение от которых сочетается с частичной трансляцией по оси на половину периода решетки вдоль этой оси. При температурах ~ 1485 К наблюдается сегнетоэлектрический фазовый переход в centrosymmetricную параэлектрическую фазу. Пространственная группа симметрии параэлектрической фазы, D_{3d}^6 , содержит центр инверсии.

Фрагменты кристаллической структуры ниобата лития показаны на рис. 2.1. Основу структуры составляют кислородные октаэдры O_6 , соединенные между собой так, что у них имеются общие грани и ребра. Кислородный каркас построен по типу плотнейшей гексагональной упаковки. В низкотемпературной сегнетоэлектрической фазе кристалл $LiNbO_3$ имеет простую ромбоэдрическую решетку с параметрами $a = 5,15$ Å, $c = 13,86$ Å и $\alpha = 55^\circ 53'$ [45, 46] с двумя формульными единицами в элементарной ячейке. Атомы Nb и Li располагаются в октаэдрах O_6 на кристаллографической оси Z, атомы кислорода лежат в слоях, перпендикулярных оси Z и отстоящих друг от друга на одну шестую периода решетки вдоль оси Z. В стехиометрических кристаллах ($R = Li/Nb = 1$) только две трети кислородных октаэдров O_6 могут быть заполнены катионами Li^+ и Nb^{5+} . Оставшаяся треть остается вакантной. Количество вакантных октаэдров в легированных кристаллах зависит от величины заряда легирующей примеси. В октаэдрах, занятых ионами Li^+ и Nb^{5+} , имеются два разных состояния металл-кислород, что обеспечивает большую анизотропию кристаллического поля в направлении полярной оси и наличие сегнетоэлектричества. Кроме того, октаэдр, занятый катионом Li^+ , больше октаэдра, занятого катионом Nb^{5+} : расстояния между ионом Li^+ и ближайшими ионами кислорода составляют 206,8 и 223,8 пм, тогда как соответствующие расстояния для иона Nb^{5+} – 188,9 и 211,2 пм.

Ион лития размещен в своем октаэдре практически свободно, в то время как ион ниобия жестко зафиксирован ковалентной связью [45–48]. Большой размер литиевого октаэдра качественно объясняет преимущественный характер вхождения различных примесных ионов в литиевую подрешетку $LiNbO_3$ [45–47].

Ниобат лития обладает широкой областью гомогенности (область твердых растворов, рис. 2.2 б) на фазовой диаграмме и является фазой переменного состава. В пределах области гомогенности пространственная группа, характеризующая симметрию элементарной ячейки, не изменяется, но параметры ячейки колеблются в небольших пределах.

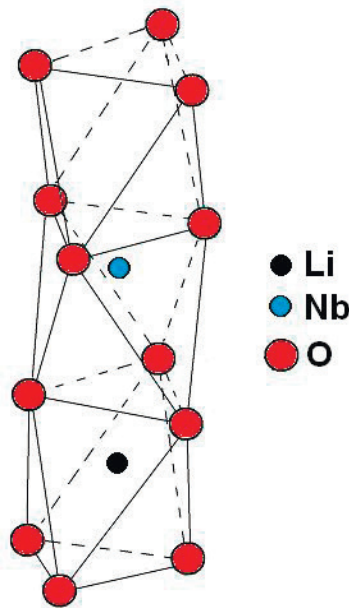


Рисунок 2.1 – Фрагмент структуры LiNbO_3 [44]

Наличие достаточно большой области гомогенности позволяет выращивать номинально чистые кристаллы ниобата лития с разной величиной R . При этом упорядочение структурных единиц, состояние дефектности и физические характеристики кристаллов с разным соотношением Li/Nb существенно различаются. Кристаллические структуры фаз переменного химического состава обычно отличаются значительной пространственной неоднородностью и сложным спектром точечных и протяженных дефектов, создающих в реальном кристалле сложный трудно моделируемый беспорядок.

Согласно фазовой диаграмме системы $\text{Li}_2\text{O}-\text{Nb}_2\text{O}_5$, область гомогенности лежит от 44,5 до 50,5 мол. % Li_2O при 1460 К и от 49,5 до 50,5 мол. % Li_2O при 293 К (рис. 2.2) [49]. Из фазовой диаграммы также видно, что кривая солидуса системы $\text{Li}_2\text{O}-\text{Nb}_2\text{O}_5$ имеет максимум (довольно размытый) не при 50 мол. % Li_2O ($R = 1$, стехиометрический состав), а вблизи 48,65 мол. % Li_2O . При этом $R \sim 0,946$. Только при таком соотношении компонентов шихты состав растущего кристалла в процессе кристаллизации соответствует составу расплава. Кристаллы ниобата лития, для которых $R \sim 0,946$, плавятся конгруэнтно, поэтому их принято называть кристаллами конгруэнтного состава. Монокристаллы конгруэнтного состава обладают постоянным значением R и, следовательно, постоянным значением двулучепреломления вдоль оси роста (Z). Во всех других случаях, в том числе и для стехиометрического кристалла, состав расплава не соответствует составу растущего из него кристалла. Более того, состав расплава и кристалла в процессе роста постоянно изменяются, а выросший кристалл получается неоднородным вдоль оси Z . Таким образом,

качественные кристаллы могут быть получены только из конгруэнтного расплава, так как только в этом случае состав кристалла практически не будет зависеть от колебаний температуры на фронте роста и от уменьшения массы расплава в процессе кристаллизации. Поэтому в промышленности кристаллы LiNbO_3 выращиваются из конгруэнтного расплава.

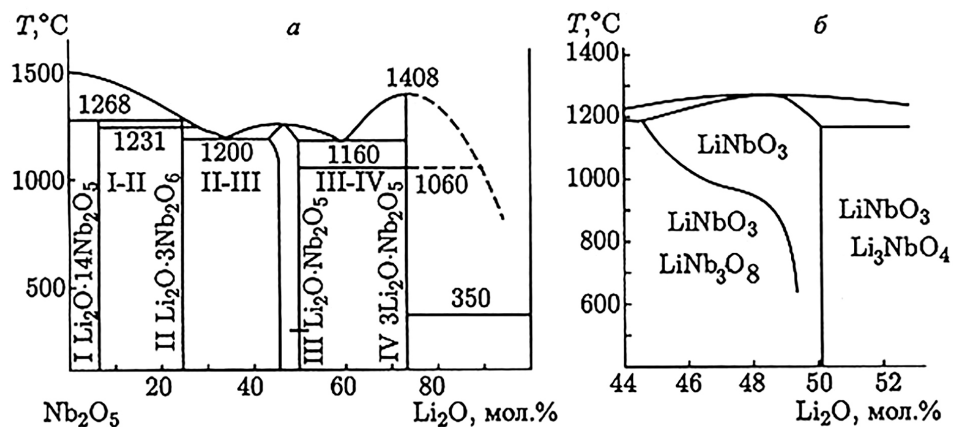


Рисунок 2.2 – Фазовая диаграмма $\text{Li}_2\text{O}-\text{Nb}_2\text{O}_5$ (а) и фрагмент, соответствующий фазе LiNbO_3 (б) [49]

По мере образования кристалла изменяется состав жидкой фазы. В той части фазовой диаграммы, где кривая солидуса имеет слабый наклон (R 1), небольшие изменения состава жидкой фазы вызывают значительные изменения состава образующейся твердой фазы [49]. Область гомогенности системы имеет максимальную ширину ~ 6 мол. % в интервале 44,5–50,5 мол. % Li_2O при 1190 °С. С понижением температуры до комнатной область гомогенности сужается до 2 мол. % [49–52]. Вырастить монокристаллы ниобата лития с R сколько-нибудь существенно больше единицы, видимо, невозможно, так как их состав будет лежать за пределами области гомогенности – в двухфазовой области [12, 18, 49–54]. Кроме того, авторы [10, 18, 43, 47, 50, 51] считают, что и конгруэнтный состав становится неустойчивым (метастабильным), поскольку ниже 800°С возможно выделение второй фазы состава LiNb_3O_8 , так что при комнатной температуре устойчивой является фаза стехиометрического состава с отклонениями в пределах 0,5 мол. %.

Максимум на кривых ликвидус и солидус по разным данным находится в области от 48,35 до 48,65 мол. % Li_2O , при $T_{\text{пл}} = 1526 \text{ K}$ (1253°С) [18, 50–52]. Причины такого разброса для конгруэнтного состава далеко не однозначны и являются предметом специальных исследований. Частично причины разброса можно объяснить сложностью и разной точностью определения конгруэнтного химического состава различными физическими методами (ГВГ, ЯМР, КРС, ДТА и др.). Эти методы являются в значительной мере косвенными и, в свою очередь, должны опираться на градуировки, полученные

прямыми методами весового, химического и физико-химического анализов. Необходимо также отметить, что возможности многих физических методов определения состава ограничены существенной зависимостью физических свойств, в том числе и степени размытости максимума на кривой солидуса, от степени собственного структурного совершенства кристалла, состояния его дефектности и присутствия неконтролируемых примесей.

Неоднозначности в определении конгруэнтного состава заложены еще в особенностях исходных компонентов шихты ниобата лития. Одной из причин разброса результатов при определении конгруэнтного состава может служить неконтролируемый дефицит кислорода в пентаоксиде Nb_2O_5 , используемом при приготовлении шихты, которая, так же, как и ниобат лития, имея кислородно-октаэдрическую структуру, является фазой переменного состава и имеет несколько полиморфных модификаций [55, 56]. Неучтенный дефицит кислорода вносит неопределенность в значение R уже на стадии приготовления исходной реакционной смеси. Соответственно, исследователи, использующие пентаоксид ниобия разных марок и фирм, могут получать неодинаковые результаты при прочих равных условиях.

Другой причиной, оказывающей влияние на разброс результатов, может быть неравномерная летучесть основных компонентов, что, в зависимости от термической предыстории (режимов синтеза шихты и времени высокотемпературных измерений), может приводить к изменению величины R в расплаве в процессе роста кристалла. В этом процессе также нет полной ясности. Если в работах [18, 45, 51] учитываются только потери лития, то в работе [53] сообщается об изменении R в сторону недостатка по ниобию при длительной экспозиции расплава в окислительных условиях.

В работах [43, 47, 49, 55, 56] подробно рассмотрены условия равновесия нестехиометрических химических соединений и установлено, что склонность к образованию фаз переменного состава проявляют соединения, содержащие хорошо поляризующиеся катионы и анионы, в которых силы связи носят ярко выраженный ковалентный характер. Степень собственного структурного беспорядка в таких соединениях значительно больше, чем в чисто ионных системах. Устойчивость фазы переменного состава определяется крутизной кривой свободной энергии относительно состава. В работах [57, 58] установлено, что подобная форма кривой свободной энергии реализуется при высокой степени собственного беспорядка, т. е. при большой концентрации различного рода структурных дефектов: пространственных и точечных. В этих условиях образование точечных дефектов катионной подрешетки кристалла, по сравнению с протяженными, происходит с относительно низкой затратой энергии. Недостаток катионов Li^+ при выращивании конгруэнтных и инконгруэнтных кристаллов ниобата лития в значительной мере влияет на общее число дефектов структуры, зависящих от состава.

2.2 Дефекты в кристаллах ниобата лития

Характерной особенностью ниобата лития, как фазы переменного состава и в силу особенностей фазовой диаграммы, является то, что в расплаве

и кристалле при определенных условиях охлаждения могут образовываться неоднородности плотности кластерного типа, связанные с образованием микровключений примесных кристаллических фаз, основными из которых, согласно фазовой диаграмме, рис. 2.2, являются Li_3NbO_4 и LiNb_3O_8 [45, 49]. Кроме того, в структуре кристаллов ниобата лития (номинально чистых и легированных) могут возникать дефекты в виде микровключений и кластеров, размерами в несколько периодов трансляций со структурой, отличной от структуры ниобата лития. Такие дефекты характерны вблизи избыточных ионов Nb^{5+} в кристаллах с $R < 1$ и в легированных кристаллах вблизи примесных ионов. В результате могут образоваться сложные кластерные дефекты, включающие в себя, помимо микровключений с иной структурой, заряженные ловушечные центры: Nb^{4+} , V_{Li} , V_{Nb} , O^- [59–62].

В катионных подрешетках легированных кристаллов, кроме того, происходит образование молекулярных комплексов [54, 59, 61]. Величина и направление спонтанной поляризации в кластерах могут отличаться от средних значений этих величин по кристаллу, а сами кластерные дефекты, в свою очередь, могут образовывать в структуре ниобата лития упорядоченные подрешетки, а не быть хаотически распределенными по кристаллу. Однако этот вопрос требует дополнительных специальных исследований. Концентрация кластеров определяется концентрацией собственных дефектов и даже у номинально чистых кристаллов ниобата лития, вследствие их высокой дефектности, может быть довольно значительной.

В работе [48] выполнено компьютерное моделирование кристаллической структуры при формировании энергетически равновесных дипольных кислородно-октаэдрических кластеров в стехиометрическом кристалле LiNbO_3 . Впервые получена функция, описывающая зависимость количества кислородных октаэдров от количества кислородных слоев кластера. Показано, что эта функция имеет минимум. Наличие минимума и позволяет определить наиболее энергетически выгодный размер кластера. Пространственные микрон неоднородности структуры и кластеры могут служить зародышами новой фазы (с приближением температуры кристалла к точке фазового перехода), а также быть ответственными за разрушение или искажение структуры кристалла в процессе различного рода внешних воздействий. Необходимо отметить следующее. Как любой сегнетоэлектрик кристалл ниобата лития характеризуется хорошо развитой доменной структурой [43, 44]. Примечательно то, что ниобат лития имеет совершенно необычный тип доменной структуры, конфигурация которой допускает расположение доменов «голова к голове» или «хвост к хвосту» с противоположной поляризацией [52]. Эта структура не является равновесной, т.к. она может долго существовать только в присутствии определенного распределения объемного заряда, характерного для кристалла ниобата лития [52].

Характерный размер монодоменных областей составляет 0,1 мм [43, 44, 63, 64]. В кристаллах, выращенных вдоль полярной оси, домены образуют систему аксиальных цилиндров в виде концентрических колец, ориентированных вдоль направления выращивания. Если полярная ось направлена перпендикулярно – домены образуют «сэндвичевую» структуру – попеременное чередование темных и светлых областей, параллельную оси Z [65]. Помимо

обычных, 180-градусных доменов, которые выявляются только методом травления, в кристаллах найдены 35-градусные домены [66]. Эти домены образуются как механические двойники в условиях кристаллизации в органическом объеме с плоскостью двойникования $\{1012\}$. Помимо макроскопических доменов, в кристаллах ниобата лития существуют иглообразные 180-градусные микродомены, вытянутые вдоль оси Z [43, 44, 52, 64]. Из-за малых размеров, до 1 мкм в поперечнике и до 400 мкм в длину, первоначально они были приняты за выходы дислокаций. Микродомены присутствуют в кристаллах, не подвергавшихся после выращивания термообработке, а также могут образоваться при механическом царапании поверхности кристалла. В основании такого домена может находиться дислокация.

Морфологически в кристаллах ниобата лития выделяются три типа доменов: основные, внутренние и домены-оболочки [64]. В основных доменах положительное направление вектора спонтанной поляризации s обращено к затравке. Во внутренних доменах положительные направления s обращены к поверхности кристалла. Введение легирующих примесей в кристалл, изменение режимов роста, а также доменная структура затравки не изменяют основных закономерностей построения и типа доменной структуры кристалла LiNbO_3 . Однако легирование и неконтролируемые примеси влияют на число доменных границ внутри кристалла [64]. В то же время кристаллы, выращенные из очень чистого сырья, имеют мало внутренних доменов [5, 67, 68].

Точечные дефекты в катионной структуре кристалла ниобата лития способствуют формированию протяженных дефектов. Катионная подрешетка наиболее упорядочена в кристаллах LiNbO_3 стехиометрического состава [5, 60, 68]. В идеальном стехиометрическом кристалле чередование катионов и вакансий вдоль полярной оси должно быть следующим: $\dots\text{-Li-Nb-}\square\text{-}\dots$, где \square – структурная вакансия (пустой, вакантный октаэдр). Однако рентгеноструктурный анализ показывает, что размеры элементарных ячеек стехиометрических кристаллов больше соответствуют такому строению, когда имеется некоторое количество вакансий на позициях ионов Li^+ , а определенное количество ионов Nb^{5+} может замещать ионы лития и находится в вакантных кислородных октаэдрах [5, 61]. Такие точечные дефекты называют антиструктурными (antisite), они появляются в том случае, когда ион еще в расплаве под воздействием тепловых или других энергетических возмущений переходит из своего «законного» местоположения, предусмотренного идеальной симметрией, в другое положение (узел). По мнению авторов [68], такие антиструктурные дефекты обусловлены нестехиометричным соотношением компонентов расплава. Основными точечными дефектами в структуре ниобата лития являются дефекты Nb_{Li} – катионы Nb^{5+} , находящиеся в позициях катионов Li^+ идеальной структуры.

Катионная подрешетка кристаллов, выращенных из расплава конгруэнтного состава, характеризуется избытком катионов Nb^{5+} и вакантных октаэдров, соответственно, является гораздо более разупорядоченной структурой, чем катионная подрешетка стехиометрических образцов [61, 68]. По данным ЯМР в конгруэнтных монокристаллах LiNbO_3 до 6 % ионов Nb^{5+} могут занимать позиции, не соответствующие их положению в идеальной решетке, а позиции ионов $^6\text{Li}^+$ и $^7\text{Li}^+$ структурно неэквивалентны [69]. Более

того, результаты ЯМР исследований могут быть объяснены только в предположении динамической подвижности катионов Li^+ в структуре. В отличие от катионов Li^+ , катионы Nb^{5+} и Nb^{4+} из-за большой массы и сильной ковалентной связи с атомами кислорода жестко зафиксированы в узлах кристаллической решетки.

В теоретическом анализе точечных дефектов структуры ниобата лития с разным R важную роль играют вакансионные модели, которые получили существенное развитие с появлением мощной вычислительной техники. Вакансионные модели позволяют теоретически исследовать структурный беспорядок в кристалле ниобата лития, обусловленный существованием точечных дефектов. Согласно, вакансионным моделям в структуре кристалла ниобата лития, возможны следующие точечные дефекты: вакансии и междоузельные катионы лития ($V_{\text{Li}}^-, \text{Li}_i^+$), ниобия ($V_{\text{Nb}}^{5-}, \text{Nb}_i^{5+}$), кислорода ($V_{\text{O}}^{m+}, \text{O}_i^{2-}$), катионы ниобия, замещающие литий ($\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$), ионы лития на местах ниобия ($\text{Li}_{\text{Nb}}^{4-}$), а также квазисвободные электроны (e^-) [47, 60]. При высоких температурах, когда дефекты полностью ионизированы, уравнение электронеutrальности имеет вид:

$$m[V_{\text{O}}^{m+}] + [\text{Li}^+] + 5[\text{Nb}_i^{5+}] + 4[\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}] = 5[V_{\text{Nb}}^{5-}] + [V_{\text{Li}}^-] + 4[\text{Li}_{\text{Nb}}^{4-}] + 2[\text{O}_i^{2-}] + [e^-] \quad (2.1)$$

где $m = 1$ или 2 , а индексы перед скобками равны эффективному заряду дефекта.

Концентрация дефектов, определяемая этим уравнением, зависит от переменных: величины R и парциального давления кислорода при выращивании. При низком парциальном давлении кислорода концентрация кислородных вакансий должна быть выше, чем концентрация катионных дефектов, а проводимость должна зависеть от давления кислорода [47]. При высоком давлении кислорода в кристалле ниобата лития должны превалировать катионные дефекты и проводимость должна быть ионной.

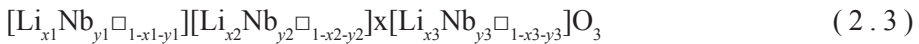
Дефектная структура нестехиометрических кристаллов ниобата лития с использованием вакансионных моделей впервые анализировалась Нассау и Лайнсом в [70]. Они предполагали, что в процессе кристаллизации может иметь место локальное нарушение порядка следования катионов вдоль оси третьего порядка (полярная ось), в результате чего образуются два рядом стоящих одноименных катиона. Такое нарушение в чередовании катионов может охватывать несколько кислородных слоев, причем стехиометрия нарушается в том случае, когда в дефекте «упаковки» содержится нечетное число единичных нарушений. При этом при ассоциации точечных дефектов могут образовываться кислородно-октаэдрические кластеры, размер которых составляет несколько элементарных ячеек (нанообъекты) [59–62]. Они, как и точечные дефекты, также нарушают трансляционную инвариантность структуры без изменения общей симметрии элементарной ячейки. Кроме того, дефекты в виде кислородно-октаэдрических кластеров с различными примесными катионами дают фотохромный эффект и являются аккумуляторами кислорода [5, 71]. Точечный дефект, появившись в каком-то месте кристалла и нарушив его структуру, постепенно по мере удаления от центра дефекта, будет релаксировать в нормальную структуру [71, 72]. Релаксация

кластеров таких дефектов приводит к появлению локальных дипольных моментов, которые могут сохранять свою ориентацию с повышением температуры, в том числе при переходе через точку Кюри [47, 48].

В дальнейшем попытки моделирования структурного беспорядка в реальных кристаллах ниобата лития с использованием вакансионных моделей предпринимались многократно. В литературе можно найти до восьми моделей описания поведения дефектов в конгруэнтном кристалле [72]. Первая модель [73] была предложена Фэем с коллегами в 1968 г.:



В этой модели допускается как образование кислородных вакансий, так и катионные замещения. По мнению авторов, близость ионных радиусов Li^+ (0,68 Å) и Nb^{5+} (0,66 Å), ведет к замещению в решетке катионов лития ионами ниобия. Общая электронейтральность в данном случае должна обеспечиваться или недостатком кислорода, или образующимися литиевыми вакансиями [73]. Предположение об образовании кислородных вакансий было тщательно исследовано в работах [50, 74–76]: в ходе исследований выяснилось, что плотность кристалла возрастает с ростом дефицита лития. Данный результат не мог быть объяснен в рамках модели кислородных вакансий. Однако та часть модели Фэя, которая предполагала образование катионных вакансий, подтвердилась. На этом предположении выстраивались все дальнейшие модели, названные моделями катионного замещения. Химическая формула самой общей катионной модели может быть записана в виде:



Здесь x_1 и y_1 – ионы лития и ниобия, соответственно, на позициях лития, x_2 и y_2 – ионы лития и ниобия, соответственно, на позициях в пустом кислородном октаэдре, x_3 и y_3 – ионы лития и ниобия, соответственно, на позициях ниобия. Эти шесть индексов связаны между собой двумя формулами:

$$x_1 + x_2 + x_3 = A \quad (2.4)$$

$$y_1 + y_2 + y_3 = B \quad (2.5)$$

где A и B – общее количество лития и ниобия, соответственно, в химической формуле кристалла. Для общей электронейтральности необходимо, чтобы выполнялось равенство $A + 5B = 6$. В конгруэнтном ниобате лития $A = 0,9470$ и $B = 1,0106$. Данная модель является общей, т. е. объединяет в себе черты всех нижеперечисленных моделей.

Согласно модели литиевых вакансий Лернера (M1) [50], дефицит Li_2O сопровождается частичным замещением ионов лития ионами ниобия с одновременным образованием некоторого количества литиевых вакансий. Для соблюдения электронейтральности на один катион Nb^{5+} должно приходиться четыре литиевых вакансии. Таким образом, химическую формулу данной модели можно записать в виде:



В модели ниобиевых вакансий Абрамса и Марша (М2) [61] ниобиевые вакансии появляются, чтобы скомпенсировать избыток ниобия на позициях лития. Чтобы скомпенсировать заряд пяти ионов ниобия на позициях лития необходимо четыре вакансии ниобия. В этом случае формула записывается в виде:



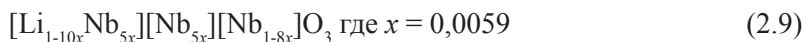
М3 – модель заполнения пустых октаэдров. Данная модель дает альтернативное описание среднестатистической дефектной структуры конгруэнтного кристалла ниобата лития, в котором часть или весь избыток ниобия внедряется в номинально пустой октаэдр.

М4 – модель замещения: ионы Nb^{5+} в позициях Li

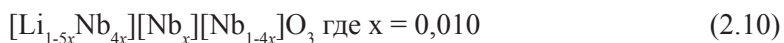
Еще Лернер предположил существование антиструктурных дефектов весьма вероятным механизмом при построении реальной решетки кристалла. Ийи в [77] предложил химическую формулу для таких структур:



М5 – сплит-модель по ниобию, сочетающая в себе модели литиевых и ниобиевых вакансий с произвольным расположением избыточных катионов ниобия в позициях лития и соседних пустых октаэдрах. Предложены две теоретические сплит-модели по ниобию, в зависимости от стехиометрии [5]:



и



Слабым местом данной модели является очень малое расстояние между катионами ниобия. Длина между двумя соседними атомами ниобия $\sim 2,31 \text{ \AA}$.

М6 и М7 – сплит модели по литию.

На данный момент предложены две сплит-модели по литию:



и



Первая литиевая сплит-модель, в которой весь избыток ниобия становился в литиевые позиции, интерпретировала лишь данные, полученные рентгеноструктурным анализом. С другой стороны, нейтронная дифракция полностью [46] опровергала жизнеспособность данной модели. Дру-

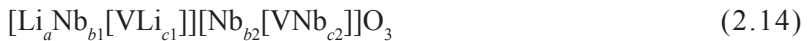
гая сплит-модель (М7) предполагала, что весь избыток ниобия внедряется в вакантный октаэдр, что подтверждали результаты нейтронной дифракции [46], однако не подтверждали данные рентгеноструктурного анализа [72].

М8 – сплит-модель по литию и ниобию – наиболее общая модель катионного замещения. Согласно ей, лишь незначительное число катионов лития расположено в вакантных октаэдрах идеальной структуры:



В литературе нет единого мнения о преимуществе какой-то одной модели. Так данные, полученные методом рентгеноструктурной дифракции и рассеяния нейтронов, подтверждают модель литиевых вакансий [77]. В работе [61] выполнены исследования конгруэнтных кристаллов методом порошковой рентгеноструктурной дифракции (powder x-ray diffraction) и отдано предпочтение модели ниобиевых вакансий. В работе [59] были проведены исследования методом рентгеноструктурной и нейтронной порошковой дифракции, которые показали, что модель литиевых вакансий лучше остальных описывает среднестатистическую дефектную структуру в конгруэнтном кристалле ниобата лития. Однако авторы [72] отмечают, что в целом, все рассмотренные выше вакансионные модели упорядочения структурных единиц в решетке ниобата лития могут служить основой для описания его дефектной структуры.

В работе [67] была предложена синтетическая модель, объединяющая М1 и М2. В ней утверждается, что появляются вакансии обоих типов: образование литиевых вакансий и нахождение ниобия в вакантных октаэдрах, но один из механизмов доминирует. Какой именно – зависит от отношения $[\text{Li}]/[\text{Li}+\text{Nb}]$. Общую формулу модели можно записать в виде:



Где a , $b1$ и $c1$ – положения в позициях лития ионов Li , Nb и литиевых вакансий, соответственно; $b2$ и $c2$ – ионы ниобия и ниобиевые вакансии в позициях ниобия, соответственно. Нахождение ионов лития в вакансиях ниобия исключается.

Кроме того, в кристаллах ниобата лития в процессе роста возникают макро- и микродефекты, которые в работах [5, 78] подразделяют на два основных типа: технологические и фундаментальные. В тех же источниках было отмечено, что ростовая техника к 80-м – 90-м годам XX века усовершенствовалась настолько, что ее вкладом в формирование дефектной структуры можно пренебречь при условии технически грамотного ее использования. Поэтому основные усилия необходимо уделить изучению взаимодействия между входящими в состав кристалла химическими элементами, начиная с этапа подготовки исходных компонентов для синтеза шихты. Так, в наших работах [79, 80] было показано, что генезис шихты оказывает заметное влияние на дефектность структуры и физические свойства монокристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$.

Перед тем, как изучать влияние состава, предыстории получения шихты, условий роста и режимов послеростовой обработки на дефектную структуру монокристаллов ниобата лития, сначала требуется классифицировать наблюдаемые дефекты. Такие макродефекты как «нити», двойники, граненость, винтовые дислокации и ячеистая структура, наблюдаемые в кристалле невооруженным глазом и делающим невозможным их использование в оптических устройствах и многих устройствах электронной техники, исследованы ранее. Найдены причины их появления и разработаны рекомендации как избежать подобных дефектов. В этой главе основное внимание будет уделено дефектам более низкого масштабного уровня, которые в последнее время стали объектами интенсивного изучения благодаря появлению исследовательской техники высокого разрешения [81–83].

Классифицировать дефекты можно по нескольким категориям. В настоящей главе приведена классификация по размерам: макро-, мезо- и микро-уровень. Самые распространенные макродефекты сильно легированных кристаллов ниобата лития - полосы роста и кольца роста. От подобных дефектов достаточно сложно избавиться, поскольку они являются аддитивным результатом физико-химических свойств расплава и сегнетоэлектрических свойств кристалла ниобата лития. Так, кольца и полосы роста являются следствием отклонения от термодинамических условий роста (слишком высокие скорости роста, очень большой градиент температур на фронте кристаллизации и т.п.), а в легированных кристаллах ниобата лития, как правило, являются еще и следствием сегрегации примеси. Возникающая в последнем случае диффузионно-дефектная структура закрепляется при охлаждении от температуры кристаллизации до температуры ниже T_K . Кристалл при этом разбивается на отдельные домены в номинально чистом кристалле в достаточно произвольном порядке, когда положение границ макродоменов определяются, главным образом, существующими в кристалле механическими напряжениями. В сильно легированных кристаллах ниобата лития макродоменные границы располагаются (закрепляются), как правило, в пространственной области, соответствующей значительным градиентам концентрации легирующей примеси. Отжиг выше T_K способствует откреплению доменных границ и термоактивирует выравнивающие концентрации примеси диффузионные процессы в кристалле ниобата лития.

Еще одним типом макродефектной структуры является «ячеистая структура». Этот дефект необратим никакими методами термической или электротермической обработки. Он возникает обычно на торцах крупногабаритных сильно легированных кристаллов ниобата лития. Причиной его появления является, по-видимому, преимущественная сегрегация примеси, по определенным кристаллографическим направлениям, сопровождающаяся существенными механическими напряжениями, приводящими к появлению ячеистой структуры в процессе послеростового охлаждения кристалла. Например, повышенная сегрегация примеси на торцах крупногабаритного сильно легированного кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ обусловлена, вероятно, тем, что коэффициент распределения примеси в таких кристаллах (по крайней мере, в области высоких концентраций примеси в расплаве) существенно меньше единицы ($\sim 0,75\text{--}0,65$). В этом случае, при выращивании крупногабаритного

кристалла и, как следствие, кристаллизации значительной доли расплава на фронте кристаллизации происходит накопление примеси, максимальное на финальной стадии выращивания кристалла перед его отрывом от расплава.

Следующий вид дефектов, относящийся к макроуровню, по своим относительным размерам имеет наибольшее влияние на весь объем кристалла. Это область механических напряжений, возникшая в процессе выращивания кристалла в результате аварийного изменения технологических параметров ростовой установки. Как правило, это резкое изменение тепловых условий кристаллизации, связанное с кратковременным отключением электроэнергии или прекращением подачи охлаждающей воды. Данный тип макродефектов, однажды возникший в кристалле, не устраним методами термической или электротермической обработки. Однако, если появление области механических напряжений вызвано концентрационными градиентами в объеме кристалла, то при правильно выбранных условиях послеростовой обработки (как правило, это повышение температуры отжига, уменьшение скорости нагрева и охлаждения кристалла) можно выровнять концентрацию примеси в объеме кристалла, что, с большой степенью вероятности, может привести к исчезновению подобных дефектов.

Наличие в сильно легированном кристалле ниобата лития дефектов в виде второй фазы относят, как правило, к мезоуровню. Однако в некоторых случаях при большом объеме второй фазы данный дефект можно отнести и к макроуровню. В таком случае данный кристалл, строго говоря, уже не будет соответствовать термину монокристалл. Если вторая фаза присутствует в сравнительно небольшом количестве, то ее можно «растворить» в процессе послеростовой обработки за счет происходящего твердофазного электролиза путем применения повышенных значений тока монодоменизации.

Следующая группа дефектов мезоуровня может быть объединена под общим названием: микронеоднородности. Эта группа дефектов характеризуется тем, что имеет локальный характер с размерами до ~ 100 мкм и наблюдать ее можно с помощью оптического или зондового микроскопа на предварительно полированной и химически протравленной поверхности образца. Одним из представителей этой группы дефектов является так называемая «сетка». Подобная «сетка» состоит из ячеек, размеры и направленность которых отражают структурную однородность или неоднородность кристалла. Если ячейки «сетки» имеют приблизительно равную величину и форму, то можно сделать вывод о том, что матрица в целом, в основном своем объеме однородна. Такому кристаллу для устранения скоплений треугольных микродоменов требуется лишь дополнительная электротермическая обработка.

Еще один вид дефектов мезоуровня получил название «пятнистость». По-видимому, это проявление химической неоднородности, своего рода предшественника появления в сильно легированном кристалле ниобата лития второй фазы. После проведения процедуры монодоменизации этот дефект в большинстве случаев полностью исчезает.

Последнему из рассматриваемых масштабных уровней дефектности соответствует группа дефектов, которая характеризует качество структуры кристаллов ниобата лития на микроуровне. Размеры подобных дефектов не превышают размера ~ 10 мкм для треугольных микродоменов и ~ 20

мкм для многоугольных микродоменов, имеющих более трех углов. Природа происхождения таких дефектов, как правило, не ростовая. Причиной их формирования, по-видимому, является неправильно проведенная процедура монодоменизации. С образования подобных микродоменов, по сути, начинается переключение спонтанной поляризации (монодоменизация), то есть прорастание положительно заряженного домена (z^+) в отрицательно заряженном (z^-) домене, служащим матрицей, либо наоборот прорастание отрицательно заряженного домена (z^-) в положительно заряженном (z^+) микродомене. Установлено, что многоугольные микродомены, как правило, формируются в более совершенной части кристаллической матрицы, а треугольные - в более дефектной ее области. Таким образом, по количеству и типу подобных микродефектов можно судить об эффективности процедуры монодоменизации. Наличие таких микродефектов однозначно показывает, что кристаллическая матрица является структурно неоднородной и для снижения ее дефектности требуется изменение процедуры монодоменизации (например, дополнительная высокотемпературная выдержка перед подключением тока, увеличение первоначального тока или увеличение длительности монодоменизации в условиях приложения электрического напряжения). Наличие скоплений мелких микродоменов с размерами ~ 1 мкм, которые даже не приобрели определенной геометрической формы, являются свидетельством раннего отключения тока при проведении монодоменизации, когда процесс переключения доменов был еще активен.

Могут быть зафиксированы скопления треугольных микродоменов, которые являются, скорее всего, ростовыми дефектами. Под термином «ростовой дефект» здесь подразумеваются не технологические параметры роста, а этапный (временной) момент появления микродефекта. Причиной его формирования может являться либо недостаточная химическая гомогенность исходной шихты, либо слишком малое время выдержки расплава перед затравливанием. В большинстве случаев подобные дефекты можно устранить длительными высокотемпературными выдержками кристалла.

Процесс выращивания кристаллов ниобата лития из расплава методом Чохральского проходит всегда в большем или меньшем удалении от состояния термодинамического равновесия. Анализ процессов выращивания монокристаллов методом Чохральского и дальнейшее изучение их ростовой структуры позволяет базировать описание результатов на экспериментально обнаруживаемой способности исследуемой системы к самоорганизации. Для этого существует необходимая предпосылка в виде потока тепловой энергии, поступающего из внешнего источника и диссипируемого системой. Благодаря потоку внешней энергии система становится активной, то есть приобретает способность к автономному образованию структур [84]. При неравновесной кристаллизации расплава происходит образование сложных неравновесных микро- и наноструктур, в большинстве случаев не вполне точно пространственно воспроизводимых от эксперимента к эксперименту. Образование микро- и наноструктур в монокристаллах в области сравнительно низких температур ($T_{\text{комн}} < T < 150^\circ\text{C}$) может происходить и в случае потока внешней энергии, подводимого в виде больших доз ионизирующего излучения (γ -излучения) высокой мощности.

Так, в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Tm}(1,8 \text{ вес. } \%)$, выращенного в технологических условиях, приближенных к стационарным, были обнаружены самоподобные доменные микроструктуры фрактального типа: пространственно ориентированные вдоль трех Y -направлений гексагональной кристаллографической установки в плоскости Z исходно полидоменного кристалла ниобата лития, и пространственно ориентированные вдоль одного направления оси Y гексагональной кристаллографической установки в плоскости Z номинально чистого монокристалла ниобата лития, облученного большой ($5 \cdot 10^8 \text{ рад}$) дозой γ -излучения. Судя по локализации в кристалле области, занятой подобной структурой (ближе к торцу и на боковой периферии були), кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Tm}$ рос с неровной фазовой границей, наклоненной к направлению роста вдоль оси Z . К концу процесса, из-за понижения уровня расплава в тигле при достаточно высокой концентрации легирующей примеси, могли возникнуть флуктуации микроскопической скорости роста в условиях стационарного макроскопического переноса. При критической величине переохлаждения межфазной границы атомы примеси, диффундировавшие из расплава к межфазной поверхности, адсорбировались и занимали наиболее благоприятные для роста участки, в том числе и края ступеней, совпадающие в данном случае с направлением ромбоэдрических граней, имеющих большую скорость роста [85]. Таким образом, говоря языком синергетики, происходит достижение системой критического состояния (точки бифуркации), в системе становится возможным образование новых упорядоченных диссипативных структур. Такие доменные микроструктуры обладают свойствами самоподобия на различных масштабных уровнях и были идентифицированы нами как фракталы с величиной фрактальной размерности 2,41, которая определялась по известной методике фрактального анализа [84]. Самоподобные доменные микроструктуры фрактального типа пространственно ориентированы вдоль трех Y -направлений гексагональной кристаллографической установки. Такая пространственная самоорганизация доменов связана, по-видимому, с закреплением (пиннингом) доменных стенок на дефектах, возникающих при неравновесной кристаллизации легированного расплава: градиентах распределения примеси, а также дислокациях, расположение которых в целом повторяет, в соответствии с принципом Кюри, симметрию монокристалла ниобата лития. Самоподобные доменные микроструктуры фрактального типа пространственно ориентированные вдоль одного направления оси Y гексагональной кристаллографической установки обнаружены также в номинально чистых монокристаллах LiNbO_3 , облученных большими дозами γ -излучения.

Методы фрактальной геометрии, в отличие от кристаллографии, позволяют вести исследование разупорядоченных структур при соблюдении условия повторяемости элементов. Общей характеристикой фрактальных структур является то, что они формируются вдали от термодинамического равновесия, поскольку это диссипативные структуры, возникающие при высоких потоках энергии. [86, 87]. Синергетический подход позволяет применять к полученным микро- и наноструктурам методы фрактального анализа [88], то есть, рассматривать доменные микроструктуры и наноструктуры, возникающие в области их пространственного расположения, как регуля-

ные фрактальные самоподобные структуры, являющиеся продуктом самоорганизации в открытой системе [84]. Так, в существенно нестационарных тепловых условиях нами были получены легированные кристаллы ниобата лития с регулярными доменными структурами (РДС), шаг которой определялся соотношением скоростей вытягивания и вращения кристалла и составлял от ~ 100 до 1 мкм [37].

Методом атомно-силовой микроскопии в легированных кристаллах ниобата лития, в пространственной области расположения периодических регулярных доменных структур обнаружены периодические наноразмерные структуры фрактального типа с шагом от 10 до 100 нм . Причем периодическое разбиение происходит как в направлении параллельном, так и в направлении перпендикулярном полярной оси кристалла. Таким образом, в кристалле возникают периодические структурные образования объемом в несколько сотен элементарных ячеек.

Обнаруженные структуры имеют явные признаки пространственной самоорганизации. Эти структуры обладают свойствами самоподобия на разных масштабных уровнях и могут быть идентифицированы как фракталы. Была рассчитана фрактальная размерность для разных масштабных уровней. Алгоритм расчета фрактальной размерности поверхности описан в работе [84].

2.3 «Нефоторефрактивные» примеси в решетке ниобата лития

К «нефоторефрактивным» примесям (optical damage resistant) относят катионы (Mg^{2+} , Zn^{2+} , B^{3+} , In^{3+} , Ta^{5+} и др.), не изменяющие свой заряд в кристалле под действием света [21, 26]. Важнейшим потребителем кристаллов ниобата лития высокого оптического качества являются фирмы, производящие комплектующие для телекоммуникационного оборудования, для которых важным является получение оптических материалов с контролируемыми оптическими свойствами, в частности, с чрезвычайно высокой оптической однородностью и стойкостью к оптическому повреждению. В последние годы ведется активный поиск новых стойких к оптическому повреждению материалов на основе монокристаллов ниобата лития (LiNbO_3) путем их легирования нефоторефрактивными примесями, в частности, катионами Me^{2+} : Mg^{2+} и Zn^{2+} [21, 26, 89–95]. Результаты этих исследований не всегда однозначно согласуются между собой. Так, в работах [21, 26, 89–91, 93] фактически исследуются одни и те же кристаллы, но концентрационные аномалии свойств, указанные в разных работах, привязаны то к составу расплава, то к составу кристалла. Для серии кристаллов, выращенных в одинаковых условиях это допустимо. В то же время использовать эмпирическую формулу для коэффициента распределения, предложенную в работе [93] для кристаллов, выращенных в разных условиях, является не совсем оправданным, что подтверждается данными работ [34, 95, 96]. Поэтому если концентрация примеси в кристалле не определялась прямыми методами анализа, а состав кристалла рассчитывался по эмпирической форму-

ле, предложенной в работе [93], то корректнее оперировать концентрацией примеси в расплаве.

Влияние легирующего элемента на свойства монокристаллов ниобата лития часто носит скачкообразный характер [21, 26, 89]. Такой вид концентрационной зависимости свойств получил название «концентрационный порог». Причем, в общем случае в легированных кристаллах ниобата лития может быть несколько концентрационных порогов, в области которых характеристики расплава и выращенных из него кристаллов могут испытывать аномальное поведение. В работах [21, 26, 89–91, 93] фактически исследовалась одна и та же серия из пяти кристаллов, выращенных из расплавов следующих составов: 2,0, 2,5, 4,0, 5,3, 7,2, и 9,0 мол. % ZnO . Но в работах [21, 26, 94] концентрационный порог указан при концентрации 7,2 мол. %, а в работах [90, 91, 93] – при 5,3 мол. % ZnO в расплаве. Столь существенные расхождения можно объяснить тем, что, в этих работах исследовались разные свойства кристаллов, которые в различной степени чувствительны к изменению концентрации примеси. По-видимому, точное значение основного концентрационного порога определить не удалось также вследствие больших промежутков между составами отдельных расплавов. В большинстве работ кристаллы $\text{LiNbO}_3\text{:ZnO}$ исследованы с шагом $\sim 1,5 - 2,0$ мол. % ZnO . В этом случае точное установление концентрационного порога проблематично, а некоторые концентрационные аномалии практически важных свойств могут быть пропущены. Для более точного определения составов легированного кристалла с экстремальными значениями свойств желательно проводить исследования с гораздо меньшим концентрационным шагом легирующей добавки (< 1 мол. %). Кроме того, если по данным работ [21, 26] показано, что радикальное подавление фоторефракции происходит в кристаллах, выращенных из расплавов с концентрацией примеси $> 7,2$ мол. %, то по данным работы [94] это происходит уже при концентрации 6,0 мол. % ZnO в расплаве.

Значения коэффициентов распределения, определяемых разными методами, в работах разных авторов также могут различаться. Так, в работе [95] исследовали серию из четырех кристаллов и концентрацию примеси в кристалле определяли прямым методом флуоресцентного анализа, а не расчетом по эмпирической формуле [93]. В работе [95] отмечено существенное расхождение экспериментально полученных данных со значениями коэффициента распределения, рассчитанными по формуле Шларба [93]. В то же время данные работы [95] хорошо согласуются с нашими результатами, приведенными в работах [34, 96]. Причиной расхождения результатов, представленных работах [21, 26, 89–91, 93–95], по-видимому, является то, что в исследованиях не учитывалось влияние физико-химических характеристик системы кристалл-расплав на состав, композиционную однородность и формирование особенностей структуры кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:ZnO}$ при изменении концентрации легирующей добавки в расплаве. При этом, в частности, не учитывалась возможность резкого скачкообразного изменения коэффициента распределения, обусловленного резким изменением физико-химических характеристик расплава. По-видимому, этим обусловлено то, что, если кристаллы $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ уже используются практически, то кристаллы $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ до сих пор не нашли коммерческого использования,

несмотря на то, что кроме высокой оптической стойкости обладают малыми величинами коэрцитивного поля ($E_c \sim 2,7\text{--}3,5$ кВ/мм, наши данные), что особенно важно при создании преобразователей лазерного излучения на периодически поляризованных структурах. Причиной этого, по-видимому, является как раз то, что в исследованиях не учитывалось влияние физико-химических характеристик системы кристалл-расплав на состав, композиционную однородность и формирование особенностей структуры и практически значимых свойств кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:ZnO}$ при изменении концентрации легирующей добавки в расплаве.

С одной стороны, легирование конгруэнтных кристаллов LiNbO_3 ($R = \text{Li/Nb} = 0,946$) «нефоторефрактивными» катионами существенно снижает фоторефрактивный эффект и величину коэрцитивного поля в кристалле [21, 26, 89–95], но, с другой стороны, приводит к их высокой структурной неоднородности [4, 34, 92, 96, 97]. Как сказано выше, влияние легирующего катиона на свойства монокристаллов ниобата лития носит скачкообразный характер [21, 26, 89] и наиболее сильное снижение эффекта фоторефракции наблюдается как раз при превышении в легированном кристалле «пороговых» значений, при которых существенно изменяются структура расплава и механизм вхождения легирующих катионов в структуру кристалла [21, 34, 89, 96]. Но, при этом осуществляется такая перестройка структуры кристалла, при которой пространственная группа симметрии его элементарной ячейки не изменяется даже при концентрациях легирующих добавок, существенно превышающих пороговые значения [21, 89]. То есть, при изменении состава изменяется преимущественно вторичная структура кристалла LiNbO_3 , связанная с формированием кластеров структуры, образованием точечных и протяженных дефектов и выделением микроколичеств вторых фаз [98]. Исследование изменения вторичной структуры кристалла ниобата лития при изменении состава и структуры расплава представляет несомненный интерес, поскольку именно ее состояние в значительной степени определяет особенности нелинейно-оптических и фоторефрактивных характеристик кристалла LiNbO_3 [98].

Вхождение примесных «нефоторефрактивных» катионов в структуру ниобата лития имеет особенности, существенно зависящие от вида и концентрации примеси [99–103]. Их воздействие на структуру и оптические свойства LiNbO_3 весьма специфично. Основная роль этих катионов сводится к «регулированию» содержания основных дефектов катионной подрешетки (Nb_{Li}), что обуславливает исключительно сильную зависимость многих оптических свойств от концентрации примесных «нефоторефрактивных» катионов. На практике вхождение нефоторефрактивных примесных катионов в структуру ниобата лития также специфично. Все концентрационные зависимости свойств в ниобате лития обнаруживают аномалии (экстремумы, изломы, скачки) при некоторых концентрациях, постоянных для данной примеси, получивших название «пороговых». Именно при концентрациях выше порогов наблюдается резкое (на 2 порядка) уменьшение фоторефракции, т. е. кристаллы LiNbO_3 становятся «нефоторефрактивными» [26].

Величины порогов для двухвалентных ионов Mg^{2+} и Zn^{2+} составляют, соответственно, 5,5 и 7,5 мол. %, для трехвалентных ионов In^{3+} и $\text{Sc}^{3+} \sim 1,5$ мол.

%. Различие порогов для двух и трехвалентных примесей можно объяснить различием условий зарядовой компенсации – чем выше заряд, тем меньшее число катионов требуется для удаления Nb_{Li} [21]. Кроме того, характер влияния нефоторефрактивных примесей на многие другие свойства $LiNbO_3$ (возрастание температуры Кюри и плотности в $LiNbO_3:Mg$, повышение температуры некритичного фазового синхронизма при генерации второй гармоники и т.д.) качественно напоминает эффекты, возникающие при увеличении величины R . Иными словами, на языке дефектной структуры, влияние нефоторефрактивных примесей напоминает снижение концентрации Nb_{Li} в структуре ниобата лития и поэтому оно априорно было объяснено «вытеснением» Nb_{Li} при вхождении примесных ионов в Li-позицию [21, 26].

По соображениям электронейтральности, образование одного дефекта Nb_{Li} приводит к появлению четырех дефектов в виде вакантных кислородных октаэдров [21]. Внедрение в структуру конгруэнтного кристалла малых концентраций примесных катионов Zn^{2+} или Mg^{2+} и др. приводит, в первую очередь, к вытеснению ими дефектов Nb_{Li} . Это выгодно энергетически [21]. Малые количества катионов Zn^{2+} или Mg^{2+} , занимая литиевые кислородные октаэдры (в которых находились дефекты Nb_{Li}) упорядочивают чередование катионов и вакансий вдоль полярной оси и уменьшают дефектность кристалла по отношению к вакансиям Li^+ [21]. Попадание же примесного катиона в вакантный кислородный октаэдр идеальной структуры, наряду с уменьшением вакансий Li^+ , приводит к дополнительному увеличению дефектности структуры вследствие нарушения существующего порядка следования катионов и вакансий вдоль полярной оси кристалла.

Специфика вхождения нефоторефрактивных примесей в решетку $LiNbO_3$ проявляется, прежде всего, в исключительной общности их воздействия на его оптические свойства. Однако сценарии вхождения конкретных «нефоторефрактивных» катионов в структуру кристалла ниобата лития могут существенно различаться. Так вхождение Mg имеет четкий «поэтапный» характер – сначала полностью вытесняется Nb_{Li} (2–3 % Mg), затем начинается замещение Li . Вхождение Zn является более плавным: оба процесса – вытеснение Nb_{Li} и замещение базового Li – происходят одновременно (при 3% Zn в кристалле еще присутствует Nb_{Li}) [21, 26, 104].

Таким образом, нефоторефрактивные ионы могут рассматриваться в качестве регуляторов Nb_{Li} [21]. Кристаллы с низкой концентрацией нефоторефрактивных примесей по отсутствию Nb_{Li} в структурном отношении качественно аналогичны стехиометрическим. Это следует, например, из схождения коротковолнового смещения края УФ-поглощения при увеличении концентрации Li и при легировании Zn или Mg [26, 104]. Однако эффект фоторефракции в стехиометрических кристаллах выше, чем в конгруэнтных кристаллах, легированных нефоторефрактивными катионами Mg^{2+} , Zn^{2+} и др., что свидетельствует о наличии в стехиометрических кристаллах большого количества дефектов с локализованными на них электронами [21].

Глава 3 КОНОСКОПИЧЕСКИЙ МЕТОД ИССЛЕДОВАНИЯ КРИСТАЛЛОВ

3.1 Общие сведения о коноскопических картинах кристаллов

Коноскопический метод, предназначенный для анализа оптических кристаллов, измерения и контроля кристаллооптических параметров, позволяет достаточно просто определять функциональные возможности монокристаллических материалов [105–112]. Коноскопические (интерференционные) картины, получаемые при прохождении сходящегося пучка излучения через кристаллические пластинки, помещенные между поляризатором и анализатором, позволяют: определить расположение оптической оси кристалла [113, 114], установить наличие оптической активности и знак вращения плоскости поляризации [115–117], определить оптический знак [118, 119], а также исследовать оптические аномалии и влияние внешних воздействий на кристалл [120–123]. Необходимость дальнейшего развития коноскопического метода контроля обусловлена современными высокими требованиями к оптическому и структурному качеству монокристаллов, используемых в лазерной физике, в системах записи и обработки оптической информации, в оптической связи.

Однако небольшой масштаб коноскопической картины, получаемой в поляризационном микроскопе, малый размер кристаллов, узкое поле зрения, связанное с небольшой угловой апертурой светового пучка, ограничивают возможности использования традиционного коноскопического метода. Лазерная коноскопия использует схемы наблюдения коноскопических картин в сильно расходящихся пучках лазерного излучения, в которых перед кристаллом, расположенным между поляризатором и анализатором, помещают рассеиватель. Это существенно расширяет функциональные возможности коноскопического метода [124] и позволяет применять коноскопический метод к исследованию оптических свойств кристаллов с изменением формы поляризации излучения; исследовать влияние углового распределения интенсивности используемых световых пучков на коноскопическую картину; исследовать интерференционные явления в системе из нескольких оптических элементов, в том числе и с оптическими линзами из анизотропных материалов [125, 126], а также проводить анализ пространственного распределения оптических аномалий.

При освещении кристаллической пластинки, помещенной между поляризатором и анализатором, непараллельным пучком излучения наблюдают интерференционную (коноскопическую) картину, которая несет значительную информацию о свойствах пластины. Каждому направлению падающего излучения в кристалле соответствуют два преломленных световых луча (обыкновенный и необыкновенный), распространяющихся с разными скоростями. Направления колебаний световых векторов этих лучей взаимно ортогональны. После прохождения через кристалл обыкновенный и необыкновенный

лучи приобретают некоторую разность фаз. Назначение анализатора состоит в том, чтобы выделить световые колебания по одному направлению и тем самым обеспечить условие интерференции. Поляризатор нужен для того, чтобы сделать картину интерференции стационарной по времени.

Различные виды коноскопических картин для одноосных и двуосных кристаллов подробно исследованы и приведены во многих монографиях по кристаллографии и кристаллооптике [105–107, 127, 128], в которых теоретически описывается, каким образом формируются коноскопические картины.

Для оптически неактивных одноосных кристаллов (т. е. для кристаллов тетрагональной, гексагональной или тригональной сингоний), вырезанных перпендикулярно оптической оси, интерференционная (коноскопическая) картина с линейно поляризованным излучением состоит из концентрических колец-изохром с центром в выходе оптической оси, на которые накладывается характерное распределение интенсивности – светлый или темный «мальтийский крест», ветви которого, состоящие из двух изогир, пересекаются в центре поля зрения и расширяются к его краям (рис. 3.1 а). Ориентация «мальтийского» креста совпадает с ориентацией оси пропускания поляризатора, а интенсивность зависит от угла между осями пропускания поляризатора и анализатора. При этом наблюдается светлый крест, когда эти направления совпадают, и черный, когда они ортогональны.

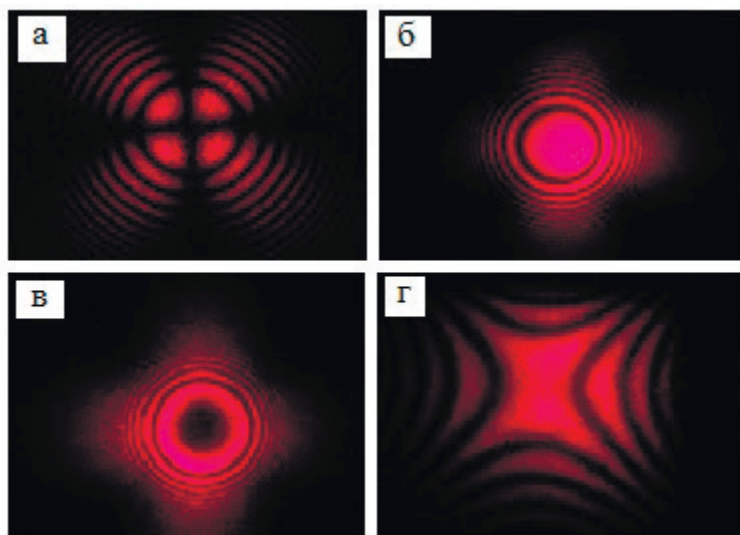


Рисунок 3.1 – Фотографии коноскопических картин кристаллических пластинок, вырезанных перпендикулярно оптической оси:

а – оптически неактивный кристалл LiNbO_3 . Оптически активный кристалл TeO_2 : б – толщина 3 мм; в – толщина 7 мм; г – пластинка вырезана параллельно оптической оси

В некоторых кристаллах, например, в кварце, двулучепреломление сопровождается поворотом плоскости поляризации вокруг направления распространения – оптической активностью [105, 107]. Природа оптической актив-

ности никак не связана с анизотропией вещества, о чем свидетельствуют ее отсутствие во многих кристаллах и наличие в некристаллических структурах, например, в растворах сахара. С точки зрения молекулярной оптики оптическая активность возникает в веществах со спиралеподобной структурой молекул. Несколько нетрадиционный взгляд на причины вращения плоскости поляризации с позиций нелинейной оптики приведен в [129, 130].

Наличие оптической активности (или гиротропии) приводит к определенным изменениям коноскопических картин при распространении пучка света вдоль оптической оси, а также оказывает влияние на интенсивность и параметры поляризации прошедшего излучения [131]. В настоящее время коноскопические картины одноосных оптически активных кристаллов успешно описываются методом компьютерного моделирования с помощью формул для интенсивности света, прошедшего через пластинку, расположенную между произвольно ориентированными поляризатором и анализатором [132–134]. В этих работах показано различие между активными и неактивными, а также между правовращающими и левовращающими кристаллами. Для оптически активных одноосных кристаллов с входной гранью, перпендикулярной оптической оси кристалла, коноскопическая картина с линейно поляризованным излучением при скрещенных поляризаторе и анализаторе представляет собой систему концентрических черных и светлых колец-изохром. В периферийной области картины наблюдается черный «мальтийский крест» (рис. 3.1 б, в).

Отсутствие черного «мальтийского креста» в центре картины в области некоторого углового диаметра является признаком наличия оптической активности кристалла и позволяет визуально определить область влияния оптической активности кристалла при отклонении от оптической оси [131–136]. При определенном сочетании величины удельного вращения плоскости поляризации и толщины оптически активного кристалла в направлении оптической оси в центре поля зрения его коноскопической картины может наблюдаться не только максимум, но и минимум интенсивности [133] с присутствием «мальтийского креста» на периферии поля зрения (рис. 3.1 в).

В пластинках, вырезанных из одноосного кристалла параллельно оптической оси, коноскопическая картина состоит из изохром, представляющих собой две системы гипербол с взаимно перпендикулярными осями (рис. 3.1 г). Изохромами называют линии, которые соответствуют направлениям одинаковой разности хода в кристалле. При наблюдении в белом свете изохромы оказываются окрашенными. Изохромы зависят от направления распространения излучения и от толщины пластинки [105–107, 127, 128].

Области, все точки которых соответствуют тем направлениям в кристалле, в которых распространяются лучи с колебаниями светового вектора E , параллельными оси пропускания поляризатора, в большинстве работ называют изогирями. Изогиры не зависят от толщины пластинки и длины волны [105–107, 127, 128]. Связь между ориентацией оптических осей кристалла и формой изогир на коноскопической картине, наблюдаемой в поляризационном микроскопе, описывается уравнением изогир, с помощью которого можно решить ценную для практических целей задачу – по координатам точек изогир рассчитать угол между оптическими осями и элементы ориентировки оптической индикатрисы [137].

Изогирам и изохромам с интенсивностью, равной нулю, соответствует поляризация излучения, совпадающая с поляризацией излучения, падающего на кристалл. Это связано с тем, что для изогир черного «мальтийского креста» направление колебаний вектора E , пропускаемых анализатором, совпадает с одним из направлений колебаний в кристалле, а для черных изохром разность фаз между двумя выходящими пучками кратна 2π .

Каждой точке на коноскопической картине соответствует направление параллельных лучей, входящих и выходящих из кристалла, поэтому необходимо рассмотреть изменение разности фаз δ с изменением этого направления. Интенсивность, соответствующая заданному направлению падения, зависит от угла φ (между направлением колебаний вектора E , пропускаемым поляризатором Π , и одним из главных направлений пластинки) и разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами δ .

В сходящемся коническом пучке излучения лучи имеют различное направление распространения. Пусть луч падает на пластинку в фиксированной точке A (рис. 3.2 а).

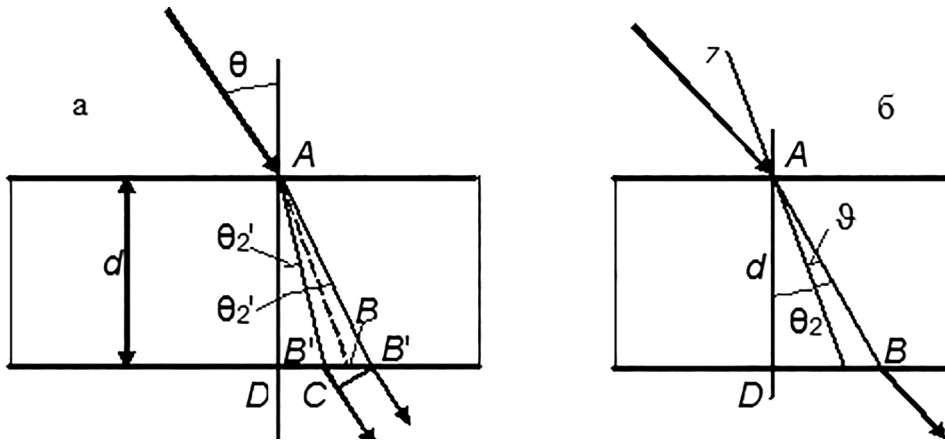


Рисунок 3.2 – Ход лучей в кристаллической пластинке

Лучи выходят из пластинки параллельно друг другу и падающему лучу с разностью фаз [105]:

$$\delta = 2\pi \left[\frac{AB''}{\lambda''} + \frac{B''C}{\lambda} - \frac{AB'}{\lambda'} \right], \quad (3.1)$$

где

$$AB' = \frac{d}{\cos \theta_2'}, \quad AB'' = \frac{d}{\cos \theta_2''} \quad (3.2)$$

$$\text{и} \quad B'C = B''B'\sin\theta = d\sin\theta(\mathfrak{g}\theta'_2 - \mathfrak{g}\theta''_2). \quad (3.3)$$

Подставляя (3.2) и (3.3) в (3.1), получим:

$$\delta = 2\pi d \left[\frac{1}{\cos\theta''_2} \left(\frac{1}{\lambda''} - \frac{\sin\theta\sin\theta''_2}{\lambda} \right) - \frac{1}{\cos\theta'_2} \left(\frac{1}{\lambda'} - \frac{\sin\theta\sin\theta'_2}{\lambda} \right) \right]. \quad (3.4)$$

Используя закон преломления, можно заменить $\sin\theta/\lambda$ на $\sin\theta''_2/\lambda''$ в первых скобках и на $\sin\theta'_2/\lambda'$ во вторых скобках и получить точное выражение:

$$\delta = 2\pi d \left[\frac{\cos\theta''_2}{\lambda''} - \frac{\cos\theta'_2}{\lambda'} \right] = \frac{2\pi d}{\lambda} (n_2'' \cos\theta''_2 - n_1' \cos\theta'_2). \quad (3.5)$$

Так как разность $n_2'' - n_1'$ всегда мала по сравнению с n_1' и n_2'' , можно заменить точное выражение (3.5) приближенным выражением:

$$\delta = \frac{2\pi d}{\lambda \cos\theta_2} (n_2'' - n_1'), \quad (3.6)$$

где θ_2 – среднее значение углов преломленных волн в кристалле (рис. 3.2 б). Учитывая, что показатели преломления n_1'' и n_2'' , входящие в выражение (3.6) для δ , также зависят от θ_2 , можно записать:

$$\delta = \frac{2\pi d}{\lambda \cos\theta_2} (n_o - n_e(\theta_2)) \quad (3.6a)$$

Форма изохром существенно зависит от местоположения точек В, для которых постоянна величина δ . Для исследования влияния изменения толщины пластинки достаточно лишь сместить плоскость, содержащую точки В, параллельно самой себе.

Очевидно, что можно получить все изохромы построением вокруг точки А поверхностей постоянной разности фаз $\delta(d, \theta_2) = \text{const}$, называемых также изохроматическими поверхностями, и нахождением их пересечения с плоскостями $d = \text{const}$. Для задания положения точек В удобно воспользоваться полярным радиусом:

$$\rho = AB = \frac{d}{\cos\theta_2} \quad (3.7)$$

и углом ϑ , который АВ образует с направлением оптической оси z (рис. 3.2 б).

В одноосном кристалле фазовые скорости, соответствующие направлению в кристалле, образующему угол ϑ с оптической осью, связаны между собой соотношением [105]:

$$(\nu')^2 - (\nu'')^2 = (\nu_0^2 - \nu_e^2) \sin^2 \vartheta. \quad (3.8)$$

Так как $\nu = c/n$, то выражение (3.8) можно представить в виде:

$$\frac{1}{(n_1)^2} - \frac{1}{(n_2)^2} = \left(\frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_e^2} \right) \sin^2 \vartheta. \quad (3.9)$$

Разность этих двух показателей преломления обычно мала по сравнению с их величинами, поэтому последнее выражение приближенно можно представить:

$$n_2 - n_1 = (n_e - n_o) \sin^2 \vartheta. \quad (3.10)$$

Подставляя (3.10) в (3.6) и используя (3.7), получим:

$$\delta = \frac{2\pi\rho}{\lambda} (n_e - n_o) \sin^2 \vartheta. \quad (3.11)$$

Следовательно, поверхности постоянной разности фаз определяются соотношением:

$$\rho \sin^2 \vartheta = C \quad (C = \text{const}) \quad (3.12)$$

В декартовых осях координат с осью z , направленной вдоль оптической оси, $\rho^2 = x^2 + y^2 + z^2$,

$$\rho^2 \sin^2 \vartheta = x^2 + y^2, \quad (3.13)$$

и в соответствии с (3.12) поверхности постоянной разности фаз будут определяться уравнением:

$$(x^2 + y^2)^2 = C^2 (x^2 + y^2 + z^2). \quad (3.14)$$

Эти поверхности можно получить при вращении кривых

$$x^4 = C^2 (x^2 + z^2) \quad (3.15)$$

вокруг оси z (типичная кривая такого вида показана на рис. 3.3). На больших расстояниях от начала координат кривые асимптотически приближаются к параболам, вблизи оси x кривая аппроксимируется гиперболой. Теперь

все изохромы можно определить пересечением поверхности (3.14) плоскостями, находящимися на различном расстоянии d от начала координат.

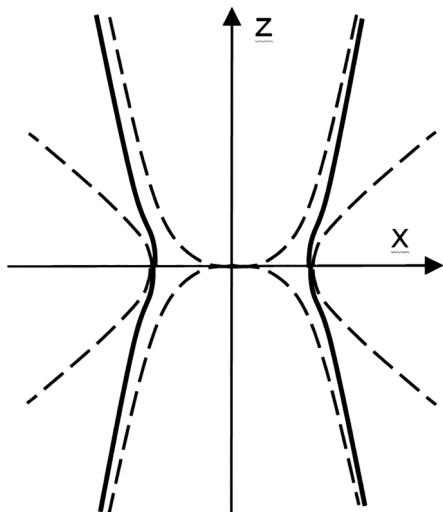


Рисунок 3.3 – Меридиональная кривая поверхности постоянной разности фаз для одноосного кристалла

Из рис. 3.3 очевидно, что формы изохром зависят от ориентации входной грани пластинки относительно оптической оси. Если входная грань пластинки перпендикулярна оптической оси, то изохромы имеют вид окружностей; если нормаль к грани образует небольшой угол с оптической осью, кривые сжимаются и переходят в эллипсы; если же эта нормаль образует большой угол с оптической осью, кривые приближаются к гиперболам.

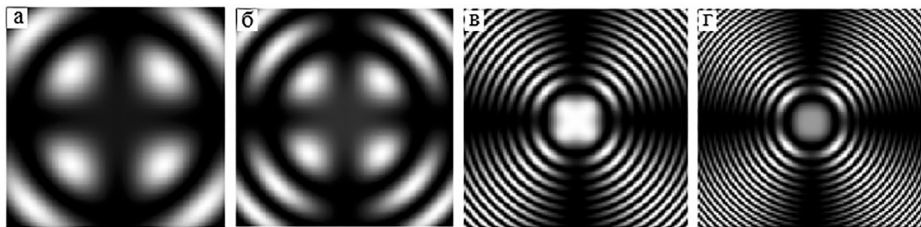


Рисунок 3.4 – Коноскопические картины кристалла кварца. Толщина образцов $d = 1$ мм: а – длина волны излучения $\lambda = 632,8$ нм; б – $\lambda = 432,8$ нм. Кристалл парателлурита: в – $\lambda = 632,8$ нм; г – $\lambda = 432,8$ нм

Изменение длины волны λ падающего на кристаллическую пластинку излучения приводит, как это показано на рис. 3.4, к вариации размера и числа изохром на коноскопической картине, число изохром растет в поле зрения с уменьшением длины световой волны.

Коноскопический метод дает возможность измерять величину вращения плоскости поляризации для любой длины волны в оптически активном кристалле [106, 107]: вращая анализатор с отсчетным кругом, определяют азимуты анализатора в положении, скрещенном с поляризатором, и в положении, соответствующем погасанию центрального пятна коноскопической картины.

Оптические свойства жидких кристаллов обладают своими особенностями и являются важными для их многочисленных применений. Например, для холестерика характерны вращение плоскости поляризации со сменной знака вращения на некоторой длине волны. Коноскопический анализ позволяет эти особенности регистрировать и эффективно изучать [138]. Для холестерического жидкого кристалла с дефектами, созданными в двухслойной структуре путем вращения одного слоя, в зависимости от угла падения теоретически исследованы интенсивность и поляризация излучения. Результаты приведены в виде коноскопических картин и карт распределения поляризации [139]. Метод одновременного определения фазовой задержки и ориентации оптической оси жидкого кристалла SPNLC с использованием одноосного фазового компенсатора, который накладывают на образец и помещают между скрещенными поляризаторами, позволяет по ориентации возникающих двух черных точек и расстоянию между ними определить положение оптической оси и фазовую задержку. Этот метод особенно удобен, если параметры динамически изменяются [140].

3.2 Практические приложения коноскопического метода исследования кристаллов

Коноскопические картины дают возможность визуализации весьма сложных физических явлений, с которыми сталкиваются, например, в многокомпонентных соединениях, и могут быть использованы для определения соотношения групповой и фазовой скоростей без измерения показателей преломления [141]. В частности, коноскопия успешно используется при создании кристаллооптических устройств для обнаружения частичной поляризации (полярископ Савара), для определения направления поляризации (полярископ Уотермана) [105–107], а также для визуального определения форм поляризации излучения по коноскопической картине, что особенно удобно на стадии предварительной характеристики поляризационных свойств используемого излучения [142].

Коноскопический метод является одним из методов получения неоднородного распределения состояния поляризации в пучке при использовании анизотропных кристаллов, таких как KDP, кварц, кальцит, ниобат лития (LiNbO_3) и др. [143]. Когда полностью линейно и равномерно поляризованный световой пучок, слегка расходящийся или сходящийся, проходит через анизотропный кристалл вдоль оптической оси, на выходе из кристалла

получают неоднородное распределение поляризации в поперечном сечении пучка [144–146]. При этом особое внимание необходимо уделять сингулярным пучкам в кристаллах по той причине, что они дают возможность получать пучки с оптическими вихрями, положением которых можно управлять [147, 148]. Система, содержащая два одноосных кристалла с перпендикулярно ориентированными осями и анализатор [149–151], способна преобразовывать исходное циркулярно поляризованное излучение в сингулярный пучок, переносящий оптические вихри. Положение оптических вихрей в таком пучке зависит от разности фаз, вводимой вторым кристаллом, и ориентации его осей относительно оси пропускания анализатора.

Значительный интерес для генерации сингулярных пучков излучения представляют холестерические жидкие кристаллы, которые являются локально одноосными анизотропными средами, где оптическая ось параллельна директору, характеризующему направление преимущественной ориентации молекул. В отличие от нематических жидких кристаллов, ориентационная структура холестериков является спиральной [152, 153]. Оптическая система для генерации оптических вихрей совпадает с оптической системой, которая используется в коноскопическом методе (в сходящихся или расходящихся пучках) [154], а коноскопический метод является единственным способом, обеспечивающим надежную идентификацию оптических вихрей [155].

Определение основных показателей преломления и толщины одноосного анизотропного кристалла, вырезанного параллельно оптической оси, в том числе и для жидкого кристалла в плоской ориентации, возможно в результате компьютерной обработки коноскопической картины в виде гипербола [119].

Коноскопическая установка на основе интерферометра Физо позволяет с высокой точностью тестировать оптическое выравнивание оси по отношению к нормали к поверхности соответствующей полированной поверхности одноосного кристалла [156]. Остается востребованным коноскопический метод и при изучении оптических свойств новых одноосных кристаллов [109].

Результаты исследований интерференционных картин, формирующихся при прохождении света через поляризационную систему с двумя оптически активными кристаллами, вырезанными перпендикулярно оптической оси, расположенными последовательно под небольшим углом между нормальными к входным граням, позволяют рассчитывать перестраиваемые фазовые пластинки [157].

Спирали Эйри – коноскопические картины, образующиеся при наложении друг на друга двух пластинок, вырезанных перпендикулярно оптической оси из правовращающего и левовращающего гиротропных кристаллов [105–107]. Они содержат в средней части картины вместо прямого черного креста черную четырехходовую спираль, ветви которой загибаются в том направлении, в котором нижняя пластинка (в поляризационном микроскопе) вращает плоскость поляризации. Кроме того, знак вращения плоскости поляризации кристалла и направление поворота анализатора влияет на изменение коноскопической картины оптически активного кристалла – при повороте анализатора ближе к центру изохроматические кольца расходятся или сходятся [106]. Изменение коноскопической картины при введении в оптическую систему кварцевого клина (метод «бегущих полосок») позво-

ляет определить оптический знак одноосного кристалла с входной гранью как параллельной, так и перпендикулярной оптической оси [106].

С изменением толщины кристаллической пластинки диаметр изохром на коноскопической картине изменяется [133]. В тонких оптически активных кристаллических пластинах при повороте анализатора изохроматические кольца принимают форму квадратов, а в коноскопических картинах неактивных кристаллов изохромы остаются кольцами.

На основе расчетов и исследований интерференционных коноскопических картин, возникающих при прохождении пучка света через один или два последовательно расположенных гиротропных двулучепреломляющих кристаллов, имеющих разный срез, в работе [158] предложен метод определения компоненты тензора гирации по коноскопическим картинам. Коноскопические картины в системе из двух кристаллических пластинок, оптический знак одной из которых известен, позволяют определить оптический знак второй кристаллической пластинки в оптической системе без поляризационного микроскопа. Неизвестный оптический знак кристаллической пластинки определяют по характеру изменений, вносимых в ее коноскопическую картину пластинкой с известным оптическим знаком [118].

Интерференция поляризованных лучей дает возможность осуществить спектральную фильтрацию с узкой полосой пропускания порядка одного ангстрема и с расстоянием между полосами пропускания в сотни ангстрем. Для расчета такого интерференционно-поляризационного фильтра (фильтра Шольца), состоящего из нескольких пластинок с оптической осью в плоскости входной грани, применяется коноскопический метод [159].

В отличие от сингулярной оптики, где широко применяют циркулярно поляризованное излучение, в абсолютном большинстве случаев в поляризационном микроскопе используется линейно поляризованное излучение. Введение в оптическую систему поляризационного микроскопа четвертьволновой пластинки в положении над кристаллом (линейно поляризованное излучение направлено снизу вверх) позволяет определить его оптический знак без использования кварцевого клина. При известном оптическом знаке пластинки $\lambda/4$ две черные точки в центре картины появляются или в первом и третьем квадрантах, или во втором и четвертом квадрантах в зависимости от оптического знака исследуемого кристалла [160].

Изменение с помощью поворота фазовой (например, четвертьволновой) пластинки поляризации излучения, падающего на кристалл, приводит к весьма необычным коноскопическим картинам, открывающим новые возможности их практического применения в различных оптических устройствах [161].

Для оптически активных кристаллов на коноскопических картинах с циркулярно поляризованным излучением характерно появление двойной спирали, отличающейся от спиралей Эйри, направление закручивания которой совпадает с направлением вращения вектора E [162], при этом расположение двойной спирали позволяет определить оптический знак оптически активного кристалла [163]. Эта же схема наблюдения позволяет по коноскопической картине кристалла достаточно быстро определить положение оптической оси в плоскости входной грани пластинки $\lambda/4$ по ее параллельности линиям, соединяющей две черные точки в коноскопической картине (при этом кристалл и пластинка $\lambda/4$ должны иметь

разные оптические знаки) [164]. Кроме того, поворот пластинки $\lambda/4$ с известным оптическим знаком вокруг вертикальной оси, лежащей в плоскости ее входной грани, приводит к смещению изохром на коноскопической картине (в направлении от периферии к центру или наоборот), что также позволяет определить оптический знак кристалла без использования кварцевого клина [165].

Наблюдение коноскопических картин в различных точках кристалла ниобата лития при приложении электрического поля к его граням позволяет составлять топологию величины наведенного двулучепреломления, а также величины вектора напряженности электрического поля в электрооптическом кристалле [122]. Наблюдение двойных коноскопических картин в оптической системе без анализатора возможно при интерференции лучей, прошедших через призму Рошона или бифокальную призму [166]. Применение коноскопических картин для оптически активных материалов с пересекающимися изотропными диэлектрическими постоянными рассмотрено в [167, 168]. Получены аналитические выражения для описания коноскопических картин в одноосных оптически активных кристаллах, имеющих ε -и-изотропную точку.

На установке, оснащенной криостатом, получены и проанализированы коноскопические картины для TlGaSe_2 при изменении температуры в интервале от 80 до 300 К [154]. Характеристики интерференции низкого порядка в видимой спектральной области при комнатной температуре [157] изучены в оптически активных AgGaS_2 и TeO_2 . Применение коноскопического метода позволяет исследовать оптическую однородность линз из анизотропных материалов [125], а также оптические свойства линз с градиентом показателя преломления [126].

Формирование коноскопических картин от одной и двух кристаллических пластинок, вырезанных параллельно оптической оси, в слаборасходящихся пучках света представлено в [169]. Использование широкоапертурных слаборасходящихся пучков излучения позволяет обнаружить оптические неоднородности кристалла, как приобретенные в процессе роста кристалла, так и предварительно наведенные. В этом случае пучок лучей должен иметь такие поперечные размеры, чтобы каждая точка поверхности кристалла была освещена лучами, идущими в заданных направлениях. Тогда каждая точка изображения на экране соответствует определенной точке на поверхности входной грани кристалла.

Метод лазерного коноскопического анализа является чувствительным при изучении аномальной двуосности одноосных кристаллов и позволяет определять величины и направление механических напряжений. При наличии в объеме исследуемого кристалла оптических аномалий происходит заметное искажение его коноскопической картины. С помощью коноскопии можно получить информацию о наличии микротрещин в кристалле и характере механических напряжений вблизи них. Оптические аномалии, проявляющиеся в искажении коноскопических картин кристаллов, рассмотрены в [123]. Описаны основные характерные особенности искаженных коноскопических картин кристаллов, состоящих из одноосных и двуосных компонентов, приведены результаты моделирования их частных случаев. Таким образом, помимо традиционных приложений, коноскопия является достаточно чувствительным и многофункциональным методом дефектоскопии кристаллов. Анализ пространственного распределения оптических аномалий, получен-

ного коноскопическим методом, а также расчет величин, характеризующих аномалии, позволяют вносить корректировки в технологию выращивания кристаллов с целью повышения их качества.

3.3 Характерные особенности оптической системы для создания коноскопических картин больших размеров

Появление лазеров привело к существенному развитию возможностей коноскопического метода при исследовании анизотропных оптических кристаллов. Стало возможным получать коноскопические картины не в поляризационном микроскопе, который традиционно применяется для исследований кристаллов в сходящемся свете и позволяет определять ряд оптических свойств кристаллов, а с помощью оптической системы, в которой через анизотропный кристалл, помещенный между поляризатором и анализатором, пропускают расходящееся излучение лазера. Полученное на экране изображение регистрируется цифровой фотокамерой и выводится на компьютер [170]. В обычных условиях получить сильно расходящийся (сходящийся) пучок лучей достаточно трудно, тогда как при наблюдении в тонких кристаллических пластинках необходимы пучки с угловой апертурой порядка $100\text{--}120^\circ$. Если же угловая апертура составляет $20\text{--}30^\circ$, то в поле зрения наблюдается только часть картины, например, одна интерференционная полоса. Создать расходящийся широкоапертурный пучок света можно, если направить лазерный луч на рассеиватель, например, на матовое стекло (рис. 3,5). В этом случае система, состоящая из поляризатора, рассеивателя, кристалла, анализатора, фокусирующего объектива и экрана, позволяет получать коноскопические картины значительных размеров (0,5 м) [170].

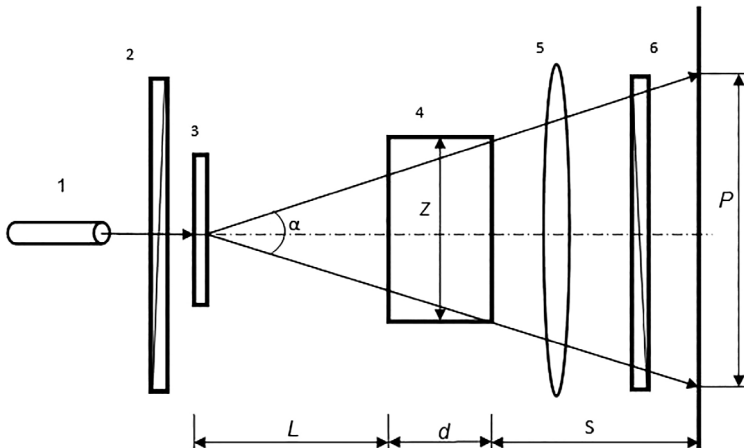


Рисунок 3.5 – Схема оптической системы для создания коноскопических картин больших размеров: 1 – лазер; 2 – поляризатор; 3 – рассеиватель; 4 – кристалл; 5 – линза; 6 – анализатор; 7 – экран

Следует отметить, что требования к источнику света для создания коноскопических картин в такой системе достаточно низкие – можно использовать когерентное и некогерентное лазерное излучение, многомодовое и одномодовое, сколлимированное и расходящееся. Работа системы осуществляется следующим образом: лазерный луч, пройдя через поляризатор, попадает на рассеиватель, расположенный перед кристаллом на расстоянии L . Рассеянные лучи, некогерентные между собой, попадают на переднюю грань кристалла, в котором каждый из рассеянных лучей разобьется на два – обыкновенный и необыкновенный, когерентные между собой. Приобретя на выходе из кристалла разность фаз, обыкновенный и необыкновенный лучи за кристаллом пойдут параллельно друг другу. Если на их пути поставить линзу, то лучи соберутся в фокальной плоскости линзы и, пройдя через анализатор, проинтерферируют, в результате чего на экране появится крупномасштабная коноскопическая картина.

Достоинством данного способа является то, что сильно расходящийся пучок света получается достаточно просто, с помощью рассеивающей среды, при этом падающий пучок света можно сфокусировать на рассеивателе или на поверхности кристалла. В последнем случае можно получить коноскопические картины, соответствующие различным областям кристалла. При этом существующее рассеянное излучение высвечивает коноскопическую картину, а лазерный луч, не рассеянный кристаллом, создает на экране реперную точку, относительно которой удобно регистрировать изменения в коноскопической картине при физическом воздействии на кристалл.

Угловой размер поля зрения α легко найти из рис. 3.5:

$$\operatorname{tg} \frac{\alpha}{2} = \frac{Z}{2(L+d)}, \quad (3.16)$$

где Z – размер выходного окна кристалла; d – толщина кристалла; L – расстояние между рассеивателем и кристаллом.

Поле зрения P на экране определяется по формуле:

$$P = Z[1 + S / (L + d)], \quad (3.17)$$

Где S – расстояние от кристалла до экрана. Видно, что при увеличении расстояния S – масштаб изображения увеличивается. Если же увеличивать расстояние L между кристаллом и рассеивателем, то поле зрения P на экране уменьшается. При всех изменениях S и L характерная структура коноскопической картины остается без изменений, так как определяется свойствами кристаллической пластинки (двулучепреломлением).

Выражение (3.17) получено в предположении малых толщин d кристаллической пластинки ($d \ll S$) и малого размера диаметра лазерного луча по сравнению с расстоянием S до экрана. В этом случае при отсутствии линзы за кристаллом на экране наблюдается четкая, яркая коноскопическая картина. При наличии линзы изменяется поле зрения P на экране (экран размещается в фокальной плоскости линзы):

$$P = 2F \operatorname{tg} \alpha / 2, \quad (3.18)$$

где F – фокусное расстояние линзы.

В такой системе наблюдения с апертурой лазерного пучка $100\text{--}120^\circ$ коноскопическая картина на экране имеет большой масштаб, достигает максимальной четкости и контраста. Это позволяет обнаружить и зарегистрировать тонкие детали интерференционной картины как в центре поля зрения, так и на периферии, что затруднительно в поляризационном микроскопе. Данная оптическая система позволяет одновременно наблюдать коноскопические картины для нескольких кристаллов, расположенных соосно или под некоторым углом между осями [113]. Она позволяет также легко изменять и контролировать поляризацию излучения, падающего на кристалл, с помощью оптических компенсаторов различного типа, что приводит к необычным эффектам и дает новую дополнительную информацию о свойствах исследуемого кристалла. Следует отметить, что предложенная система наблюдения с использованием анизотропного кристалла позволяет не только исследовать его оптические свойства, но и визуально оценить состояние поляризации излучения, падающего на кристалл [114].

3.4 Световые пучки, прошедшие через плоскопараллельную кристаллическую пластинку

В сходящемся пучке для каждого луча направление поляризации и степень поляризации зависят от радиального и азимутального углов. В целом выходящий из кристаллической пластинки пучок лучей представляет собой сложную систему, состоящую из линейно, циркулярно и эллиптически поляризованных лучей [105]. Результат сложения обыкновенного и необыкновенного лучей на выходе из пластинки зависит от направления поляризации излучения, падающего на пластинку, и от ее толщины [171, 172]. Примеры различных форм поляризаций излучения при азимуте падающего линейно поляризованного излучения $\varphi = 45^\circ$ при различных разностях фаз δ приведены на рис. 3.6. Этот рисунок соответствует опережению вертикальных колебаний E_y по сравнению с горизонтальными E_x . Плоскость рисунков перпендикулярна направлению распространения излучения [172].

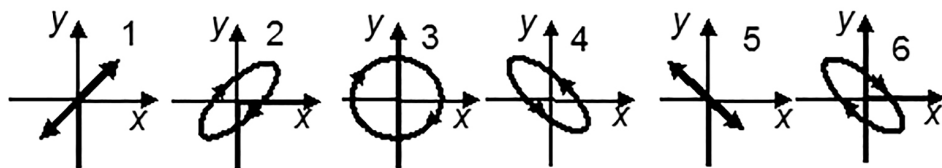


Рисунок 3.6 – Поляризация излучения на выходе из плоскопараллельной кристаллической пластинки. Разность фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами (компонентами E_y и E_x): 1 – 0° ; 2 – 30° ; 3 – 90° ; 4 – 150° ; 5 – 180° ; 6 – 210° . Значения $E_y = E_x$ (азимутальный угол $\varphi = 45^\circ$)

Рассмотрим случай прохождения линейно поляризованного излучения через кристаллическую пластинку, не ограничивая значения возникающей разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами [171]. Перед пластинкой находится поляризатор. Оптическая ось пластинки перпендикулярна входной грани пластинки. На пластинку падает пучок сходящихся линейно поляризованных лучей (заполненный лучами конус). Ось пучка лучей направлена вдоль оптической оси пластинки. Из этого конуса лучей можно выделить тонкослойный конус с угловым диаметром 2α .

Тогда лучи, идущие вдоль поверхности этого конуса, имеют один и тот же угол падения на пластинку, равный α (радиальный угол). Для удобства расчетов целесообразно ввести азимутальный угол φ между плоскостью наблюдения и осью пропускания поляризатора. Плоскость наблюдения в данной конфигурации совпадает с плоскостью главного сечения пластинки, т. е. плоскостью, которая проходит через падающий луч и оптическую ось пластинки. При $\varphi = n\pi (n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots)$ падающий луч является необыкновенным; при $\varphi = \pi/2 \pm n\pi (n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots)$ – обыкновенным. Для $\varphi = \pi/4 \pm n\pi (n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots)$ – амплитуды обыкновенного и необыкновенного лучей одинаковы. В общем случае на выходе из пластинки получается эллиптически поляризованное излучение.

При одинаковых амплитудах векторов \mathbf{E} обыкновенного и необыкновенного лучей изменение вида поляризации прошедшего пластинку излучения достигается за счет изменения разности фаз δ , которая является функцией угла α . Интерес представляют предельные случаи эллиптической поляризации – линейная, когда эллипс поляризации вырождается в отрезок прямой линии, и циркулярная, когда эллипс поляризации представляет собой окружность. Кроме того, направление вращения вектора \mathbf{E} в общем случае зависит от разности фаз δ : если $0 < \delta < \pi$, то вращение происходит по часовой стрелке, если $\pi < \delta < 2\pi$, то – против часовой стрелки. В первом случае излучение считают правополяризованным, во втором – левополяризованным. При этом предполагается, что излучение распространяется по направлению к наблюдателю [171, 172].

На рис. 3.7 схематично показаны направления вектора и эллипса поляризации в пучке лучей, выходящих из кристаллической пластинки (изображена 1/2 часть выходящего пучка). Построение осуществлено в полярной системе координат. Ось светового пучка совпадает с оптической осью пластинки. Каждая точка на рис. 3.7 соответствует выходящему лучу с определенным значением δ , зависящим от угла падения α , и определенным соотношением E_x и E_y , зависящим от φ ($E_x = E \cos \varphi$; $E_y = E \sin \varphi$). Падающий на кристаллическую пластинку пучок сходящихся лучей поляризован линейно, поляризация (вектор \mathbf{E}) вертикальна. Векторы всех лучей, лежащих на прямой 1, направлены вдоль прямой вертикально вверх. Направления 1–7 – плоскости наблюдения, совпадающие с плоскостью главного сечения кристаллической пластинки (рис. 3.7). Вдоль направлений 1–7 (радиуса-вектора полярной системы координат) откладываются значения разности фаз δ . Рис. 3.6 соответствует прямой 4 на рис. 3.7, т. е. прямая линия 4 по отношению к рис. 3.7 является осью x . Отметим, что направление оси x меняется при изменении плоскости наблюдения. Из рис. 3.7 видно, что сходящийся линейно поляризованный пучок лучей, прошедший через

кристаллическую пластинку, приобретает сложную поляризационную структуру.

Разность фаз δ увеличивается при увеличении угла падения α , но для $\alpha = \text{const}$ остается постоянной для любых значений угла φ (окружности 8-11). В то же время значения E_x и E_y для обыкновенного и необыкновенного лучей меняются при изменении φ . Это приводит к тому, что даже для $\delta = 180^\circ$ направление вектора \mathbf{E} в вышедшем пучке лучей при изменении азимута φ сильно меняется (кривая 8). Для $\delta = 90^\circ$ только для частного случая $\varphi = 45^\circ$ вышедшее излучение является циркулярно поляризованным.

Для остальных значений φ излучение поляризовано эллиптически (кривая 10) с несколько необычным расположением эллипсов по отношению к прямой 4.

На прямых 1 и 7 находятся линейно поляризованные лучи, но с противоположным направлением векторов \mathbf{E} . При одинаковом угловом распределении интенсивности в падающем пучке лучей выходящий пучок также содержит лучи одной и той же интенсивности. В более общем случае – угловое распределение выходящего пучка повторяет угловое распределение падающего, но поляризационные свойства выходящего пучка сильно меняются по сравнению с падающим. Как упоминалось выше, при несовпадении оси светового пучка с оптической осью пластинки линиями одинаковой разности фаз являются эллипсы. При взаимно перпендикулярном расположении оси светового пучка и оптической оси пластинки линии одинаковой разности фаз – гиперболы.

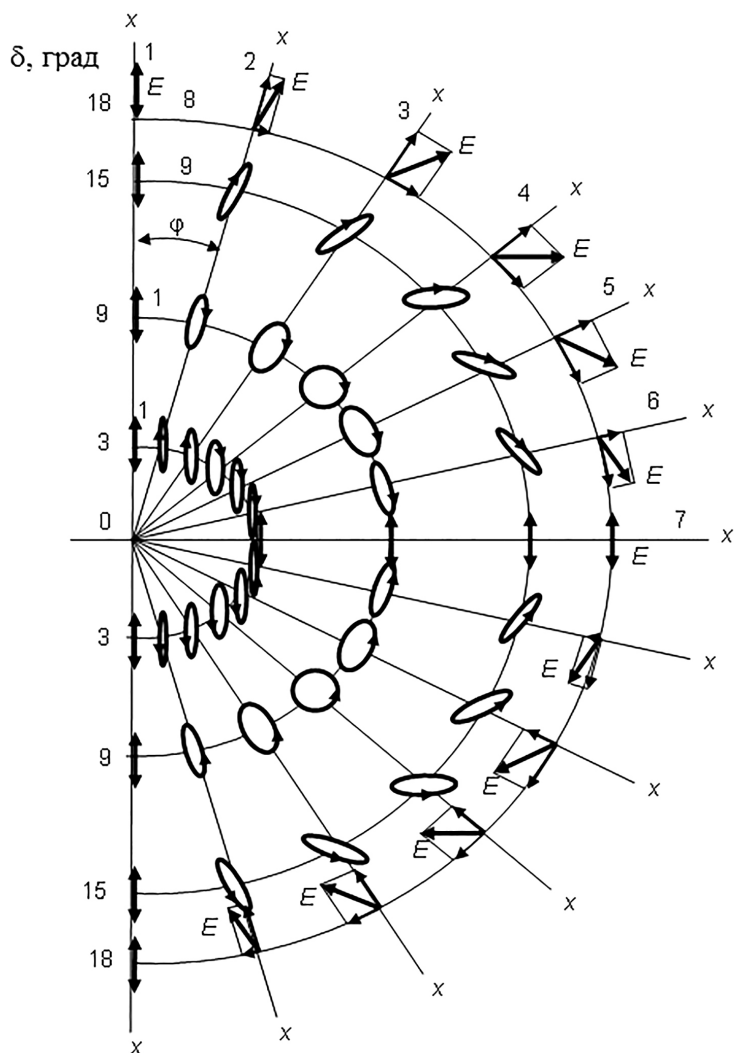


Рисунок 3.7 – Направления вектора и эллипса поляризации в пучке лучей, выходящих из кристаллической пластинки. Падающий пучок лучей линейно поляризован (вертикально). Направления 1–7 – плоскости наблюдения. Изображена $\frac{1}{2}$ часть пучка. Значения ϕ , град: 1 – 0; 2 – 15; 3 – 30; 4 – 45; 5 – 60; 6 – 75; 7 – 90. Разность фаз, δ : 8 – 180; 9 – 150; 10 – 90; 11 – 30

Глава 4 ФОРМИРОВАНИЕ КОНОСКОПИЧЕСКИХ КАРТИН ОДНООСНЫХ ОПТИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛОВ

4.1 Распределение интенсивности излучения в коноскопической картине кристалла

Коноскопическая картина кристалла получается в результате распределения интенсивности в сходящемся пучке излучения, прошедшего поляризатор (кристалл – анализатор). Интенсивность меняется в соответствии с выражением, описывающим коноскопическую картину оптически неактивного кристалла при произвольном взаимном расположении осей пропускания поляризатора и анализатора [105]:

$$I = I_0 (\cos^2 \chi - \sin 2\varphi \sin 2(\varphi - \chi) \sin^2 \frac{\delta}{2}), \quad (4.1)$$

где φ – угол между направлением колебаний вектора E , пропускаемым поляризатором Π , и одним из главных направлений пластинки x (рис. 4.1); χ – угол между осями пропускания поляризатора и анализатора; I_0 – интенсивность излучения после поляризатора ($\chi = 0^\circ$, $\varphi = 0^\circ$); δ – разность фаз, вносимая кристаллической пластинкой, определяемая (3.12).

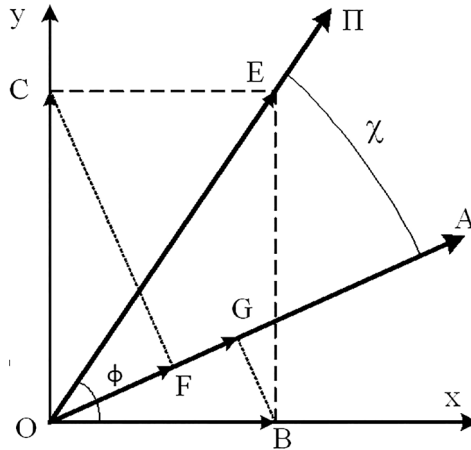


Рисунок 4.1 – Схема прохождения линейно поляризованного излучения через кристаллическую пластинку, вырезанную перпендикулярно оптической оси, и анализатор

После анализатора пучок излучения снова приобретает линейную поляризацию. Если удалить пластинку ($\delta = 0$), то интенсивность будет равна

$I = I_0 \cos^2 \chi$, следовательно, второй член в (4.1) представляет собой влияние кристаллической пластинки.

При взаимно перпендикулярном расположении осей пропускания поляризатора и анализатора $\chi = 90^\circ$ выражение (4.1) приобретает вид:

$$I = I_0 \sin^2 2\varphi \sin^2 \frac{\delta}{2}. \quad (4.2)$$

При параллельном расположении осей пропускания поляризатора и анализатора $\chi = 0^\circ$ выражение (4.1) приобретает вид:

$$I = I_0 (1 - \sin^2 2\varphi \sin^2 \frac{\delta}{2}). \quad (4.3)$$

На рис. 4.2 приведены рассчитанные на основании выражения (4.1) теоретические зависимости интенсивности излучения, прошедшего через систему «поляризатор – кристалл – анализатор», от разности фаз δ между обыкновенным и необыкновенным лучами и угла φ .

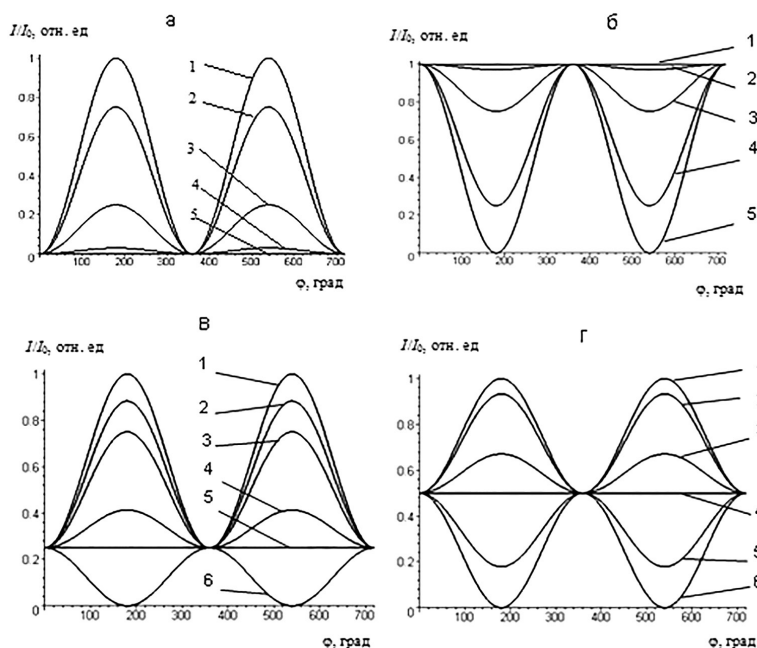


Рисунок 4.2 – Зависимость интенсивности излучения, прошедшего через поляризатор – кристалл – анализатор, от разности фаз δ при угле χ между поляризатором и анализатором: а – 90° ; б – 0° ; в – 60° ; г – 45° . Значения угла φ , градусы: (а) 1 – 45; 2 – 30; 3 – 15; 4 – 5; 5 – 0, 90; (б) 1 – 0, 90; 2 – 5; 3 – 15; 4 – 30, 60; 5 – 45; (в) 1 – 30, 120; 2 – 25; 3 – 15, 45; 4 – 5; 5 – 0, 60, 90, 150, 180; 6 – 75; (г) 1 – 22,5; 2 – 15, 30; 3 – 5; 4 – 0, 45, 90, 135; 5 – 55, 6 – 67,5

Следует отметить, что уровень интенсивности прошедшего через оптическую систему излучения, не зависящего от разности фаз δ , определяется значением угла χ между осями пропускания поляризатора и анализатора. При изменении углов χ и Φ меняется вид коноскопической картины.

Для теоретического описания коноскопических картин оптически активных кристаллов в [107, 115, 173] использовано выражение для интенсивности света, прошедшего через пластинку из оптически активного кристалла, расположенную между произвольно ориентированными поляризатором и анализатором:

$$\begin{aligned} J = & [\cos^2(\alpha - \beta) - \sin 2\alpha \sin 2\beta \sin^2(\delta_3/2)] - \\ & - \cos 2\alpha \cos 2\beta \sin^2 2\gamma \sin^2(\delta_3/2) \pm \\ & \pm [\sin 2(\alpha - \beta) \sin 2\gamma \sin \delta_3]/2 = J_1 - J_2 \pm J_3, \end{aligned} \quad (4.4)$$

где $J = I/I_0$, I – интенсивность прошедшего света; I_0 – интенсивность падающего света; α – угол поворота поляризатора от начала отсчета; β – угол поворота анализатора от начала отсчета; δ_3 – разность фаз, вносимая

кристаллической пластинкой; γ описывает оптическую активность ($k = \tan \gamma$ – эллиптичность собственных волн в кристалле, $\sin 2\gamma = 2k/(1+k^2)$). С помощью члена J_1 в выражении (4.4) в квадратных скобках описывают коноскопические картины неактивных кристаллов, что совпадает с (4.1). Дополнительные члены J_2 и J_3 описывают вклад оптической активности в общую интенсивность, причем перед последним слагаемым знак плюс соответствует правому кристаллу, знак минус – левому.

Когда поляризатор и анализатор скрещены ($\alpha - \beta = 90^\circ$) из (4.4) получается выражение, полученное в работе [115]:

$$J = [\sin^2 2\alpha \sin^2(\delta_3/2)] + [\cos^2 2\alpha \sin^2 2\gamma \sin^2(\delta_3/2)]. \quad (4.5)$$

Видно, что в формуле (4.5) по сравнению с неактивными кристаллами имеется дополнительный член J_2 , пропорциональный $\sin^2 2\gamma$, и, кроме того, в направлении оптической оси величины Δ_γ и γ отличны от нуля. При такой ориентации поляризатора и анализатора коноскопические картины, наблюдаемые для правовращающего и левовращающего кристаллов, будут одинаковыми, поскольку перед дополнительным членом J_2 , связанным с оптической активностью, всегда стоит один и тот же знак.

При постепенном повороте анализатора из скрещенного положения коноскопические картины видоизменяются. При повороте анализатора по (или против) часовой стрелки на один и тот же угол из скрещенного положения член $J_3 = \pm(\sin 2(\alpha - \beta) \sin 2\gamma \sin \delta_3)/2$ вносит разный вклад в общую величину интенсивности прошедшего излучения. Этот вклад зависит от того, правовращающим или левовращающим является кристалл. Поскольку вблизи направления оптической оси в правом кристалле $g_{33} < 0$ и $k < 0$, а в левом соответственно $g_{33} < 0$ и $k > 0$, знак произведения $(\sin 2\gamma \sin \delta_3)$ один

и тот же для правого и левого кристалла – положительный, если $\delta_s < 180^\circ$ и отрицательный, если $\delta_s > 180^\circ$. Значит, при одном и том же угле поворота анализатора из скрещенного положения знаки J_3 разные для правого и левого кристалла и, следовательно, будут наблюдаться разные коноскопические картины. Поэтому можно отличить правовращающий кристалл от левовращающего (рис. 4.3). На рис. 4.3 хорошо видно существенное различие между коноскопическими картинами правого и левого кристаллов: в центральной части картины на рис. 4.3 а видна светлая область, похожая на небольшой размытый крест, а в этой же области на рис. 4.3 б виден темный крест.

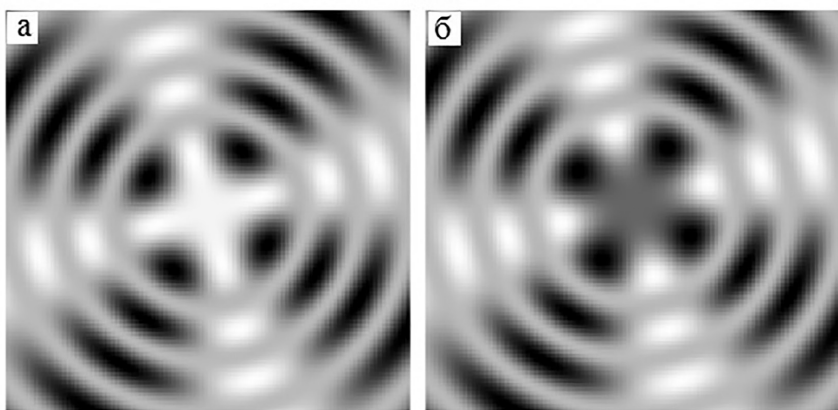


Рисунок 4.3 – Коноскопические картины кристаллических пластинок кварца, вырезанных перпендикулярно оптической оси при повороте анализатора из скрещенного положения на угол 30° : а – правовращающий кристалл; б – левовращающий

В случае неактивных кристаллов изменения коноскопической картины не зависят от направления поворота анализатора [115].

Следует иметь в виду, что величина δ_s зависит не только от двупреломления, но и от параметров оптической активности и вычисляется по формуле [115]:

$$\delta_s = 2\pi d(n_2 - n_1)/(\lambda \cos \theta_2), \quad (4.6)$$

где d – толщина пластинки; n_1 и n_2 – показатели преломления волн, распространяющихся в оптически активном кристалле; λ – длина волны падающего света; θ_2 – среднее значение углов преломленных волн в кристалле. Угол θ_2 определяется из известного закона Снеллиуса; $\sin \theta_2 = \sin \theta / n_s$, где θ – угол падения, $n_s = (n_1 + n_2)/2$.

В оптически активных кристаллах величину $\Delta n_s = (n_2 - n_1)$, называемую эллиптическим двупреломлением, можно рассчитать из точного уравнения

нормалей, но поскольку при расчете коноскопических картин используется приближенное соотношение для углов преломления света, при расчете Δn_y можно использовать принцип суперпозиции двупреломлений [174]:

$$\Delta n_y^2 = \Delta n_x^2 + \Delta n_z^2,$$

где $\Delta n_x = (n_{01} - n_{02})$ – линейное двупреломление; $\Delta n_z = G / \sqrt{n_{01} n_{02}}$ – циркулярное двупреломление; n_o , n_e – показатели преломления собственных волн для заданного направления волновой нормали в отсутствие оптической активности; G – скалярный параметр гирации.

Для одноосных кристаллов показатель преломления необыкновенной волны рассчитывается по формуле [107]:

$$n_{02}^2 = \frac{n_o^2 n_e^2}{n_o^2 + (n_e^2 - n_o^2) \cos^2 \vartheta}, \quad (4.7)$$

где n_o , n_e – главные значения показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волн соответственно; ϑ – угол между оптической осью и волновой нормалью n_s (вектором среднего направления волновых нормалей преломленных волн).

В прозрачных оптически активных кристаллах в общем случае распространяются две эллиптически поляризованные волны (собственные волны) с противоположным направлением обхода и эллиптичностью k_1 , k_2 ($k = b/a = \tan \gamma$, a , b – большая и малая полуоси эллипса поляризации).

Эллиптичность собственных волн $k = \tan \gamma$ рассчитывается из соотношения [107]:

$$k = \frac{(n_{02}^2 - n_{01}^2) - \sqrt{(n_{02}^2 - n_{01}^2)^2 + 4G^2}}{2G}, \quad (4.8)$$

где $G = g_{33} \cos^2 \vartheta + g_{11} \sin^2 \vartheta$ для одноосных кристаллов; g_{33} и g_{11} – компоненты псевдотензора гирации.

Если свет распространяется вдоль оптической оси кристалла или в любом направлении в изотропной среде, тогда $n_{02} - n_{01} = 0$, и в прозрачном кристалле $k = \pm 1$, т. е. в кристалле распространяются две циркулярно поляризованные волны с противоположным обращением.

В направлениях, отличных от оптической оси, когда $(n_{02}^2 - n_{01}^2) > G^2$, извлекая приближенно корень в (4.8), получается:

$$k = \frac{G}{n_{02}^2 - n_{01}^2}. \quad (4.9)$$

При отклонении направления распространения света на угол θ от оптической оси одноосного кристалла в большинстве случаев эллиптичность волн резко уменьшается до значений 10^{-4} – 10^{-2} . Чем больше величина линей-

ного двупреломления $\Delta n_{\text{л}} = (n_e - n_o)$, тем более резко изменяется величина эллиптичности k .

Для кристаллической пластинки с входной гранью, параллельной оптической оси (рис. 4.4), интенсивность излучения в пучке после системы «поляризатор – кристалл – анализатор» описывается выражением:

$$I = 0.5I_0(1 + \cos 2\chi \cos \delta), \quad (4.10)$$

где χ – угол между осями пропускания поляризатора и анализатора;
 $\delta = \frac{2\pi}{\lambda} d \left[\sqrt{n_e^2(\gamma') - \sin^2 \theta} - \sqrt{n_o^2 - \sin^2 \theta} \right]$ – фазовый сдвиг (разность фаз) между обыкновенным и необыкновенным лучами на выходе из пластинки [172]; d – толщина кристаллической пластинки; λ – длина волны излучения; θ – угол падения луча на пластинку (внешний); n_o и n_e – показатели преломления кристалла; $\sin \theta = n_o \sin \beta_0 = n_e(\gamma') \sin \beta_e$. Показатель преломления необыкновенного луча записывается в виде [172]:

$$n_e(\gamma') = \frac{n_o n_e}{\sqrt{n_o^2 + (n_e^2 - n_o^2) \cos^2 \gamma'}}, \quad (4.11)$$

где $\cos^2 \gamma' = \cos \rho \cos \alpha_1 \sin \beta_e + \sin \alpha_1 \cos \beta_e$; ρ – азимутальный угол в плоскости коноскопической картины; α_1 – угол между входной гранью пластинки и оптической осью.

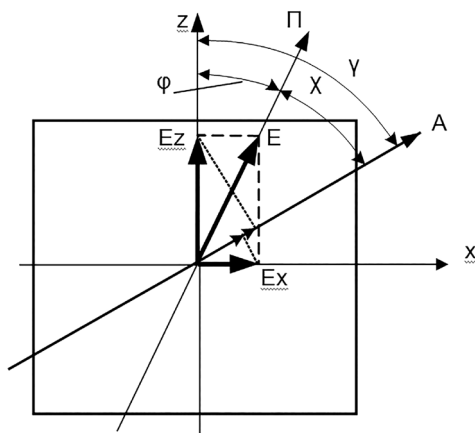


Рисунок 4.4 – Схема прохождения излучения через систему «поляризатор – кристалл – анализатор».

z, x – оси пластинки; Π – ось пропускания поляризатора; A – ось пропускания анализатора. Оптическая ось пластинки совпадает с осью z

Выражение (4.10) позволило рассчитать коноскопические картины для пластинки с оптической осью в плоскости входной грани при разном взаимном положении поляризатора и анализатора (рис. 4.5).

Расчет выполнен для случая, когда ось пропускания поляризатора составляет угол $\varphi = 45^\circ$ с оптической осью пластинки. Рассчитанные коноскопические картины совпадают с экспериментально полученными. Другие случаи ($\varphi \neq 45^\circ$) приводят к менее четким картинам интерференции.

Использование излучения с циркулярной поляризацией позволяет получать коноскопические картины для оптических кристаллов, описанные в [175]. Структура таких коноскопических картин представляет интерес для теоретического моделирования.

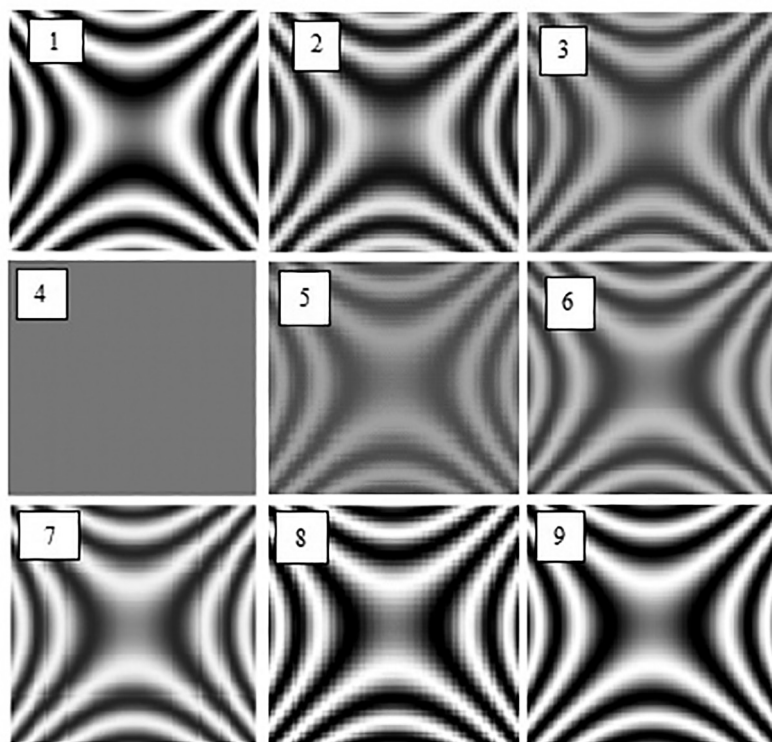


Рисунок 4.5 – Серия коноскопических картин пластинки, вырезанной из кварца параллельно оптической оси, при повороте анализатора. Угол $\varphi = 45^\circ$. Угол между осями пропускания поляризатора и анализатора (χ): 1 – 90° ; 2 – 72° ; 3 – 60° ; 4 – 45° ; 5 – 36° ; 6 – 30° ; 7 – 20° ; 8 – 10° ; 9 – 0°

Схема прохождения циркулярно поляризованного излучения, падающего нормально на пластинку, приведена на рис. 4.6.

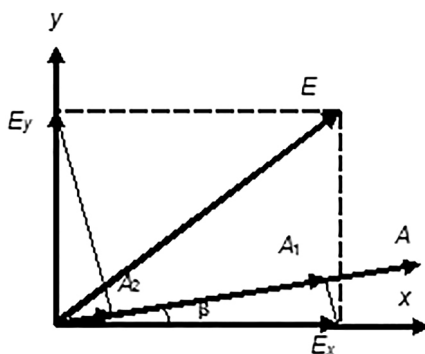


Рисунок 4.6 – Схема прохождения излучения через кристалл и анализатор: А – ось пропускания анализатора; x, y – главные направления пластинки

Ось пропускания анализатора А составляет угол β с одним из главных направлений пластинки. Оси системы координат совпадают с главными направлениями кристаллической пластинки. Для излучения, поляризованного циркулярно:

$$E_x = E \cos \tau, \quad E_y = E \sin \tau, \quad (4.12)$$

где $\tau = \omega t - (\vec{k}\vec{r})$.

На выходе из пластинки:

$$E_x = E \cos \tau, \quad E_y = E \sin(\tau + \delta), \quad (4.13)$$

где δ – разность фаз, приобретаемая лучами при прохождении через пластинку.

После прохождения анализатора:

$$\begin{aligned} E_{OA_1} &= E_x \cos \beta = E \cos \beta \cos \tau \\ E_{OA_2} &= E_y \sin \beta = E \sin \beta \sin(\tau + \delta) = E \sin \beta \cos \left[\tau + \left(\delta + \frac{\pi}{2} \right) \right]. \end{aligned} \quad (4.14)$$

Далее, после анализатора интенсивность излучения равна:

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos \left(\delta + \frac{\pi}{2} \right), \text{ или } I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \sin \delta \quad (4.15)$$

$$\text{где } I_1 = \frac{E^2 \cos^2 \beta}{2}, \quad I_2 = \frac{E^2 \sin^2 \beta}{2}.$$

Окончательно, подставляя эти выражения в (4.15), находим:

$$I = 0.5 I_0 (1 + \sin 2\beta \sin \delta). \quad (4.16)$$

Таким образом, интенсивность излучения на выходе из анализатора изменяется в соответствии с выражением (4.16), которое позволяет выполнить моделирование соответствующей коноскопической картины (рис. 4.7 а). Теоретически рассчитанная коноскопическая картина для кристаллической пластинки достаточно полно согласуется с экспериментально полученной (рис. 4.7 б).

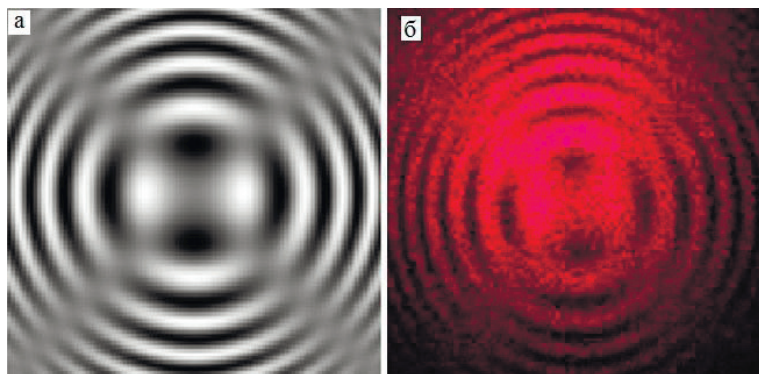


Рисунок 4.7 – Коноскопическая картина кристалла ниобата лития LiNbO_3 с циркулярно поляризованным излучением: а – теоретический расчет; б – экспериментальный результат

Сечение коноскопической картины, проведенное через две черные точки в центре под углом 45° к ветви «мальтийского креста», приведено на рис. 4.8.

Интенсивность излучения в центре при угле падения $\theta = 0^\circ$ равна половине максимальной интенсивности, что соответствует циркулярно поляризованному излучению на выходе из пластинки. При углах падения $\theta = \pm 1,8^\circ$ наблюдаются два минимума интенсивности, что соответствует двум черным точкам в центре картины (рис. 4.8).

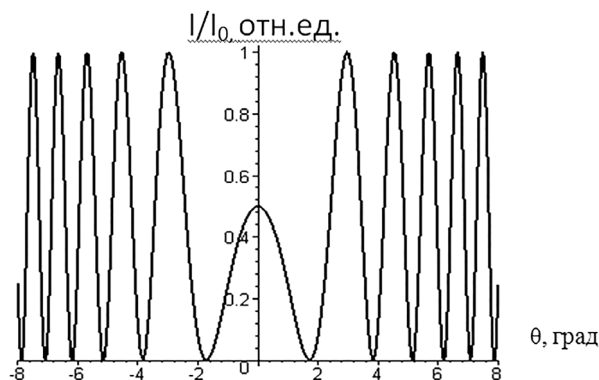


Рисунок 4.8 – Сечение коноскопической картины с циркулярным излучением

На рис. 4.9 приведены рассчитанные на основании выражения (4.16) теоретические зависимости интенсивности циркулярно поляризованного излучения, прошедшего через систему «кристалл – анализатор», от разности фаз δ между обыкновенным и необыкновенным лучами и от азимутального угла φ , отсчитываемого от одной из ветвей «мальтийского креста». Случаи на рис. 4.9 а, б, в, г соответствуют разным положениям анализатора.

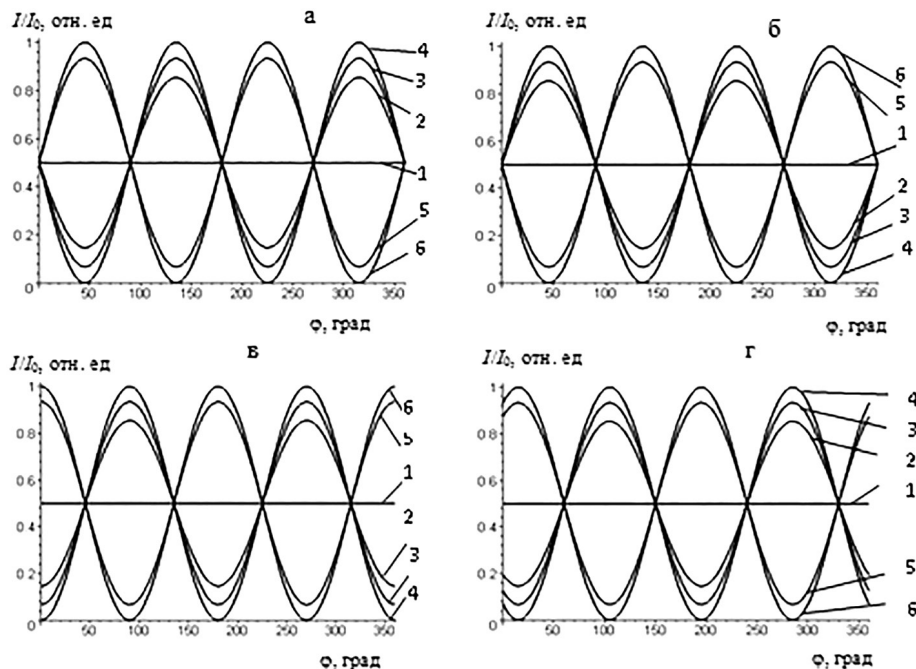


Рисунок 4.9 – Зависимость интенсивности циркулярно поляризованного излучения (по кольцу), прошедшего через кристалл – анализатор, от разности фаз δ . Угол χ между поляризатором и анализатором: а – 90° ; б – 0° ; в – 45° ; г – 60° . Значения разности фаз δ , градусы: 1 – 0; 2 – 45 ; 3 – 60 ; 4 – 180 ; 5 – 240 ; 6 – 270

При повороте анализатора коноскопическая картина (рис. 4.7) также поворачивается, сохраняя свой вид, включая «мальтийский крест», на угол, равный углу поворота анализатора. При этом угол между ветвями «мальтийского креста» не меняется, оставаясь равным 90° . Это является особенностью по сравнению с коноскопической картиной с линейным излучением при повороте анализатора. Анализ графиков на рис. 4.9 подтверждает, что при любых углах между осями пропускания поляризатора и анализатора ветви «мальтийского креста», в том числе в центре картины, сохраняют свою интенсивность, равную половине максимальной. Следует отметить, что значения $I/I_0 = 0,5$ соответствуют ветвям «мальтийского креста».

Другой особенностью является то, что интенсивность излучения на выходе из кристалла по кольцу-изохrome в зависимости от азимутального

угла φ изменяется от максимума до минимума несимметрично относительно ветвей «мальтийского креста». При переходе через ветви «мальтийского креста» интенсивность каждой 1/4 части изохромы последовательно изменяется с минимальной на максимальную и наоборот. Точкой перехода являются значения азимутального угла φ , соответствующие $I/I_0 = 0,5$.

4.2 Особенности формирования «мальтийского креста»

Присутствие черного «мальтийского креста» в коноскопических картинах при скрещенных поляризаторе и анализаторе, а также светлого «мальтийского креста» при параллельных поляризаторе и анализаторе является признаком одноосного кристалла [105–108, 127, 137, 160, 172]. Однако описание вида «мальтийского креста» при произвольных углах между осями пропускания поляризатора и анализатора отсутствует. Исследования изменений интенсивности излучения на кольцах-изохромах коноскопической картины оптически неактивного кристалла при различных положениях осей пропускания поляризатора и анализатора, выполненные в работах [176, 177], показали, что на всех графиках присутствуют такие углы φ , при которых все изохромы с различными фазовыми сдвигами δ имеют одинаковую интенсивность. При параллельных поляризаторе и анализаторе таких радиальных направлений четыре и располагаются они через 90 (рис. 4.10 а). Интенсивность всех изохром при пересечении с этими направлениями равна I_0 , т. е. сформирован светлый «мальтийский крест».

При скрещенных поляризаторе и анализаторе таких радиальных направлений также четыре и располагаются они также через 90, но интенсивность изохром в этих направлениях равна нулю, т. е. сформирован черный «мальтийский крест» (рис. 4.10 б). При произвольно расположенных осях пропускания поляризатора и анализатора таких радиальных направлений уже восемь, интенсивность изохром в этих направлениях одинакова. Например, для угла 45° между осями пропускания поляризатора и анализатора интенсивность радиальных направлений составляет $I = 0.5I_0$ (рис. 4.10 в). Для угла 60° между осями пропускания поляризатора и анализатора интенсивность радиальных направлений составляет $I = 0.25I_0$ (рис. 4.10 г). При дальнейшем увеличении угла между осями пропускания поляризатора и анализатора максимумы и минимумы на графике меняются местами. При этом во всех случаях имеются четыре зафиксированных радиальных направления: 0° , 90° , 180° и 270° , формирующих один неподвижный «мальтийский крест» с постепенно меняющейся интенсивностью.

Остальные четыре радиальных направления формируют второй «мальтийский крест», который поворачивается вокруг неподвижного креста на угол, соответствующий углу поворота анализатора. При этом изменение угла между поляризатором и анализатором от 0 до 90° приводит к одинаковому изменению интенсивности обоих крестов в интервале от I_0 до нуля. Интенсивность в центре коноскопической картины соответствует интенсивности «мальтийских крестов».

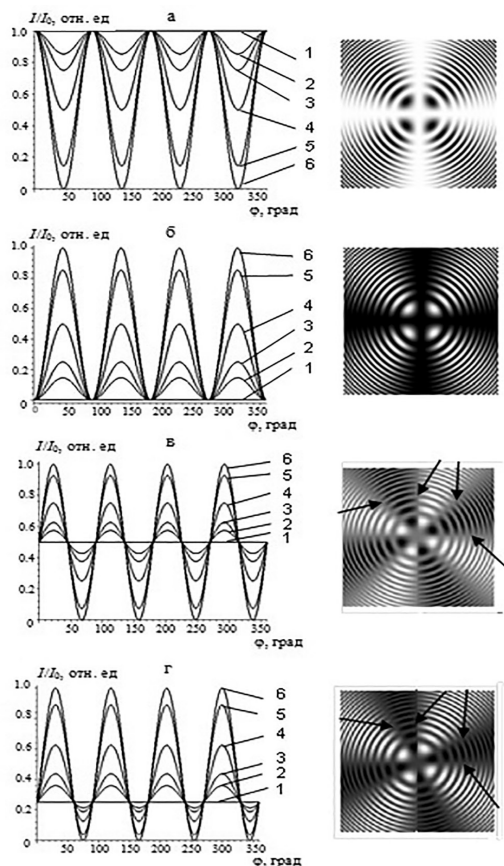


Рисунок 4.10 – Зависимость интенсивности излучения, прошедшего поляризатор – кристалл – анализатор, от угла ϕ . Значения разности фаз δ , град: 1 – 0; 2 – 45; 3 – 60; 4 – 90; 5 – 135; 6 – 180. Угол между осями пропускания поляризатора и анализатора, град: а – 0; б – 90; в – 45; г – 60. В соответствии с графиками приведен вид «мальтийского креста» на коноскопических картинах оптически неактивного кристалла ниобата лития (LiNbO_3) толщиной 10 мм

Для проверки результатов, полученных при теоретическом анализе зависимостей интенсивности изохром от угла поворота анализатора, в эксперименте исследовано изменение коноскопической картины при повороте анализатора для плоскопараллельной пластинки толщиной 10 мм, вырезанной перпендикулярно оптической оси из кристалла ниобата лития (LiNbO_3) (рис. 4.10). При наблюдении коноскопической картины обнаружено, что при вращении анализатора из скрещенного с поляризатором положения темный «мальтийский крест» постепенно распадается на два «мальтийских креста». При этом один «мальтийский крест» остается неподвижным, а второй «мальтийский крест» поворачивается на угол, соответствующий углу поворота анализатора. При совпадении осей пропускания поляризатора и анализатора оба креста сливаются в один светлый крест, при ортогональном

положении осей пропускания – в один темный крест. При этом интенсивность обоих крестов одинакова и синхронно меняется от минимальной (в скрещенных поляризаторе и анализаторе) до максимальной (в параллельных поляризаторе и анализаторе). Интенсивность в центре коноскопической картины соответствует интенсивности крестов.

Такие же изменения, только в обратном порядке, происходят при вращении анализатора из положения, при котором оси пропускания поляризатора и анализатора параллельны. Светлый «мальтийский крест» распадается на два креста, интенсивность которых постепенно уменьшается, достигая минимальной величины в момент слияния обоих крестов в темный «мальтийский крест» при ортогональном расположении осей пропускания поляризатора и анализатора. Результаты эксперимента по наблюдению «мальтийского креста» приведены на рис. 4.11.

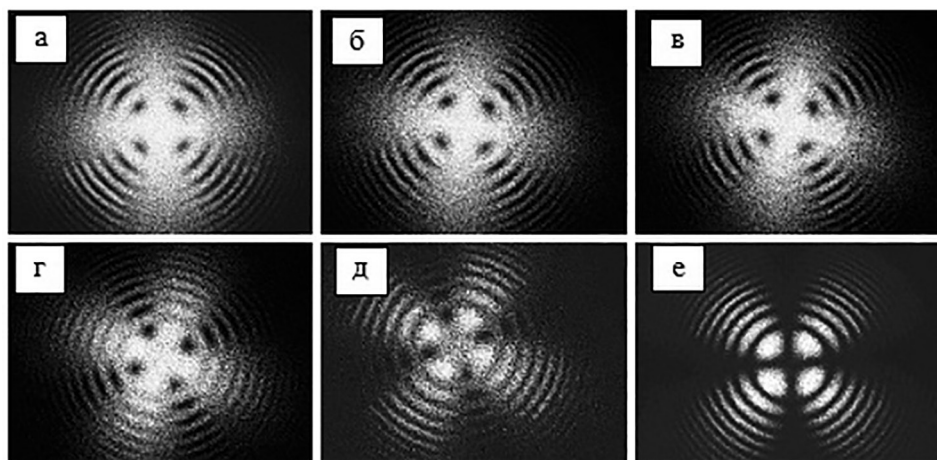


Рисунок 4.11 – Фотографии «мальтийского креста» на коноскопической картине ниобата лития. Угол между осями пропускания поляризатора и анализатора, град: а – 0; б – 20; в – 30; г – 45; д – 60; е – 90

Для кристаллической пластинки толщиной 3.1 мм, вырезанной из кристалла парателлурита (TeO_2 , одноосный гиротропный кристалл), такое изменение коноскопической картины при вращении анализатора заметно хуже. Причиной этого является отсутствие «мальтийского креста» в центре картины за счет влияния оптической активности. Периферийная часть картины, где ветви «мальтийского креста» присутствуют, достаточно быстро затемняется, затрудняя наблюдения.

В работе [133] с использованием возможностей системы компьютерной математики Maple по формулам для интенсивности излучения, прошедшего через поляризатор – оптически активную пластинку – анализатор, полученным в работе [131], рассчитаны и построены коноскопические картины для различного взаимного положения осей пропускания поляризатора и анали-

затора. Эти картины приведены на рис. 4.12. Расчет, в частности, проведен для кристаллической пластинки толщиной 10 мм, вырезанной из оптически неактивного кристалла ниобата лития (LiNbO_3) перпендикулярно оптической оси, и кристаллической пластинки толщиной 1 мм, вырезанной из оптически активного кристалла парателлурита (TeO_2) перпендикулярно оптической оси.

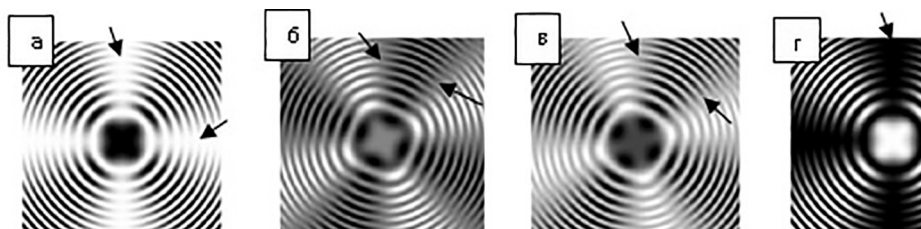


Рисунок 4.12 – Двойной «мальтийский крест» в коноскопических картинах оптически активного кристалла парателлурита (TeO_2). Стрелками указан «мальтийский крест». Угол между осями пропускания поляризатора и анализатора, град: а – 0; б – 45; в – 60; г – 90

В случае если одноосный монокристалл проявляет аномальную двуосность, его коноскопическая картина содержит «мальтийский крест» другого вида, состоящий из двух самостоятельных фрагментов, образующих просвет в центре поля зрения (рис. 4.13). Расстояние между вершинами ветвей «мальтийского креста» зависит от угла 2ν между индуцированными оптическими осями. При повороте анализатора вокруг оси оптической системы коноскопическая картина изменяет свой вид, при этом изменение вида «мальтийского креста» соответствует вышеописанным изменениям для одноосного кристалла.

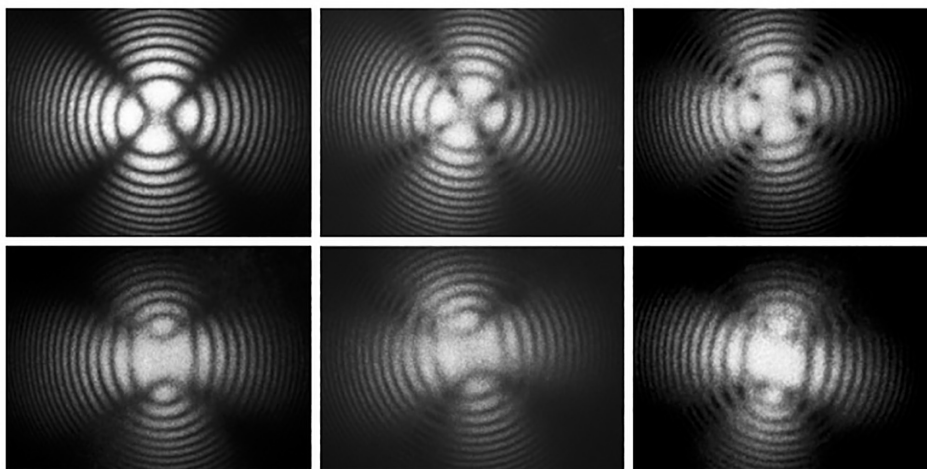


Рисунок 4.13 – Двойной «мальтийский крест» в коноскопических картинах кристалла ниобата лития, легированного катионами Hg при повороте анализатора

4.3 Влияние углового распределения интенсивности излучения на коноскопическую картину кристалла

Коноскопическая картина кристалла определяется пространственным распределением разностей хода и направлений векторов \mathbf{E} на выходе из кристалла в различных областях конуса излучения и становится видимой с помощью анализатора. Ниже показано, что на вид коноскопической картины влияет угловое распределение интенсивности излучения в падающем на кристалл сходящемся пучке [178]. Интенсивность излучения в падающем пучке распределена по Гауссу, т. е. :

$$I = I_0 e^{-k\beta^2} \quad (4.17)$$

где I_0 – интенсивность излучения по оси пучка; k – коэффициент, характеризующий распределение интенсивности излучения в пучке; β – радиальный угол (угол падения луча на пластинку). На рис. 4.14 приведено распределение интенсивности излучения для трех случаев, отличающихся значением коэффициента k . В случае $k = 0$ интенсивность излучения в пучке распределена равномерно.

После прохождения сходящимся пучком лучей системы, состоящей из поляризатора, кристаллической пластинки и анализатора, интенсивность излучения I_1 определяется выражением:

$$I_1 = I_0 e^{-k\beta^2} \frac{1}{2} (1 - \cos \delta) \sin^2 2\varphi, \quad (4.18)$$

где δ – разность фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами, зависящая от угла падения β ; φ – азимутальный угол, отсчитываемый, например, от оси пропускания поляризатора (от одной из ветвей «мальтийского креста» на коноскопической картине). Выражение (4.18) позволяет построить коноскопическую картину в полярных координатах, откладывая угол падения луча β по радиусу-вектору. Угол φ – азимутальный угол (угол поворота радиуса-вектора).

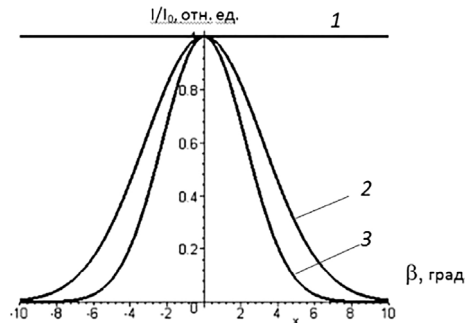


Рисунок 4.14 – Распределение интенсивности излучения в сходящемся пучке. Значения коэффициента k : 1 – 0,0; 2 – 0,05; 3 – 0,1

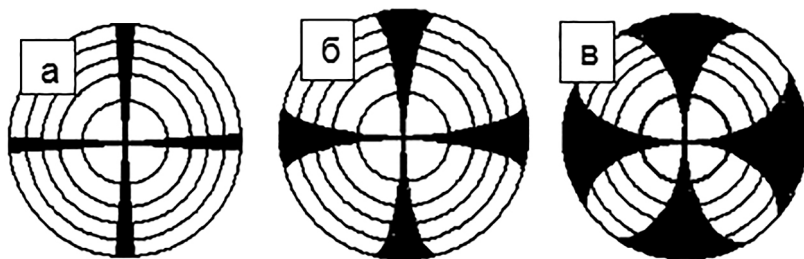


Рисунок 4.15 – Коноскопические картины, рассчитанные для пучков излучения с разным угловым распределением интенсивности. Коэффициент k : а – 0; б – 0,05; в – 0,1

На рис. 4.15 приведены коноскопические картины при некоторых упрощающих предположениях. Черные окружности соответствуют минимумам коноскопической картины ($\Delta = 2\pi n$, где $n = 0, 1, 2, \dots$). При увеличении толщины кристаллической пластинки диаметр этих окружностей уменьшается.

При построении «мальтийского креста» (рис. 4.15) предполагалось, что граница видности картины $I/I_0 = 0.05$. То есть значения интенсивности на коноскопической картине $I/I_0 < 0.05$ изображены черным цветом; значения $I/I_0 > 0.05$ изображены белым цветом. На рис. 4.15, а хорошо видно, что при равномерном распределении интенсивности по углу угловая ширина «мальтийского креста» является наименьшей ($I/I_0 = 0.05$; $\Delta\phi = 0.5^\circ$) и не зависит от значений β . Чем быстрее спадает интенсивность излучения по углу в сходящемся пучке, тем шире «мальтийский крест» (рис. 4.15 б, в). Ширина и вид «мальтийского креста» не зависят от толщины кристаллической пластинки.

Расчет границ «мальтийского креста» ($I/I_0 = 0.05$) реализован на основании выражения (4.18), преобразованного к следующему виду:

$$\sin 2\phi = (I_1 / I_0 e^{-k\beta^2})^{1/2}. \quad (4.19)$$

При необходимости расчеты позволяют по виду «мальтийского креста» в коноскопической картине оценить структуру используемого сходящегося пучка.

4.4 Одновременное наблюдение двух коноскопических картин (при отражении от анализатора)

Темный «мальтийский крест» характерен для коноскопической картины кристалла при ее наблюдении в скрещенных поляризаторе и анализаторе. Часть излучения, которое могло бы дать коноскопическую картину со светлым крестом, обычно поглощается анализатором [179]. Имеются экспериментальные работы, например [166], в которых специальными методами пучок лучей со сложной поляризационной структурой делится на два пучка со взаимно перпендикулярными поляризациями. В этом случае наблюдаются двойные коноскопические картины.

Оказалось, что на два пучка со взаимно перпендикулярными поляризациями можно разделить пучок [180] при использовании поляроида на основе синтетической пленки *J*-типа, активированной иодистым соединением сернокислого хинина [181]. Такие поляроиды отражают часть пучка с перпендикулярной поляризацией (по отношению к пучку, прошедшему через анализатор). Появляется возможность одновременно регистрировать две дополнительные коноскопические картины [180].

В эксперименте кварцевая пластинка помещена между скрещенными поляризатором и анализатором (рис. 4.16). Непосредственно перед пластинкой расположен рассеиватель – матовое стекло. В качестве анализатора использован пленочный поляроид, у которого пленка находится между двумя защитными стеклами. Лазерное излучение направляется по оси оптической системы на кристалл через рассеиватель. На экране за анализатором наблюдается коноскопическая картина оптически активного кристалла с характерным черным «мальтийским крестом».

Одновременно на входной плоскости анализатора, обращенной к пластинке, можно наблюдать коноскопическую картину, характерную для оптически активного кристалла, помещенного между параллельными поляризатором и анализатором. При небольших поворотах анализатора вокруг вертикальной оси эту картину можно сделать достаточно четкой. На выходной плоскости анализатора, обращенной к экрану, также наблюдается коноскопическая картина, совпадающая с полученной на экране.

При вращении анализатора вокруг оси оптической системы каждая из двух коноскопических картин синхронно изменяется, оставаясь дополнительной по отношению друг к другу. При повороте анализатора на 90° картины на экране и входной плоскости анализатора меняются местами. Одновременное наблюдение коноскопических картин возможно не только с анализатором, но и с другими устройствами, например, со стопой из тонких стеклянных пластинок.

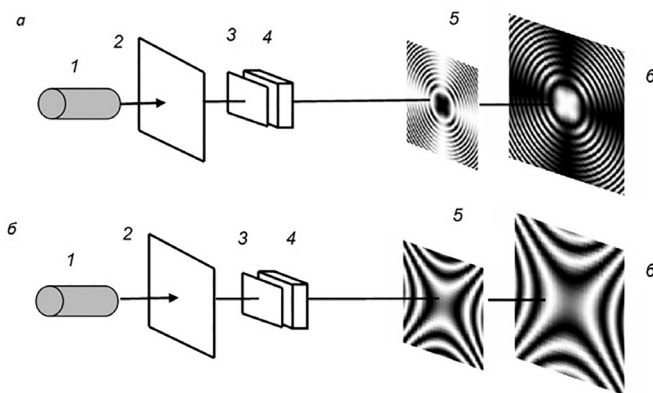


Рисунок 4.16 – Схема экспериментальной установки: 1 – He-Ne-лазер; 2 – поляризатор; 3 – рассеиватель (матовое стекло); 4 – кварцевая пластинка толщиной 3 мм; 5 – анализатор; 6 – экран. Кварцевая пластинка вырезана по отношению к оптической оси: а – перпендикулярно; б – параллельно

При использовании в качестве анализатора набора из 5-6 прозрачных плоских пластин на экране наблюдают обычную коноскопическую картину. Оптимальным углом установки стопы является угол Брюстера, при котором прозрачность стопы максимальна [179].

Коэффициенты пропускания и отражения для компонент световых лучей, поляризованных параллельно и перпендикулярно плоскости падения на стопу, различны. Коноскопическую картину на отражение в данном случае получить несколько сложнее, чем на пропускание. Возможно использовать для одновременной регистрации коноскопических картин плоскопараллельные пластинки из кристалла с большой разницей показателей преломления обыкновенных и необыкновенных лучей. Так, например, для кристалла каломели Hg_2Cl_2 ($n_o = 1,96$; $n_e = 2,62$) разность коэффициентов отражения для обыкновенных и необыкновенных лучей достигает 9%; для кристалла Hg_2I_2 ($n_o = 2,383$; $n_e = 3,916$) – порядка 20%.

4.5 Определение оптического знака кристалла коноскопическим методом в системе из двух кристаллических пластинок

4.5.1 Определение оптического знака кристалла при повороте компенсатора с известным оптическим знаком

Кристаллы, в которых скорость распространения обыкновенных лучей больше, чем необыкновенных, имеют положительный оптический знак. Кристаллы, в которых скорость распространения обыкновенных лучей меньше, чем необыкновенных, имеют отрицательный оптический знак. Волновые поверхности для положительных и отрицательных кристаллов изображены на рис. 4.17. Определение оптического знака, являющегося одним из основных диагностических признаков кристаллов, основано на измерении и визуальном сравнении различных оптических параметров.

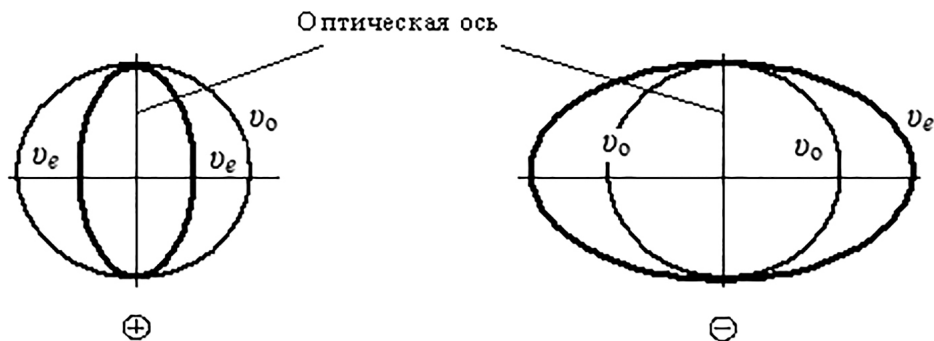


Рисунок 4.17 – Волновые поверхности для положительных и отрицательных кристаллов

Достоверность определения оптического знака кристалла зависит от вида излучения и оптических характеристик кристалла (ориентации, оптической активности, величины двулучепреломления и толщины кристалла), которые влияют на вид интерференционной (коноскопической) картины. В работе [107] предложен способ для определения оптического знака кристалла, основанный на сравнении углов преломления обыкновенного и необыкновенного лучей. Излучение подается на призму, в которой разбивается на два луча – обыкновенный и необыкновенный – с равными амплитудами колебаний векторов \mathbf{E} ($\mathbf{E}_o = \mathbf{E}_e$) и совпадающим направлением распространения. На выходе из призмы обыкновенный и необыкновенный лучи отклоняются друг от друга и от нормали к выходной грани, что обусловлено законом преломления лучей. В результате на экране появляются две светлые точки. Вид каждого луча определяется с помощью вращения анализатора. По углам отклонения обыкновенного и необыкновенного лучей от нормали к выходной грани призмы делается вывод об оптическом знаке исследуемого кристалла. При $\alpha_e > \alpha_o$ оптический знак кристалла является положительным. При $\alpha_e < \alpha_o$ оптический знак кристалла является отрицательным.

В данном случае определение оптического знака кристалла достоверно только для кристаллов с большим двулучепреломлением. Но для кристаллов с малым двулучепреломлением обыкновенный и необыкновенный лучи на выходе из призмы практически сливаются, что не позволяет определить вид лучей и сравнить их углы отклонения от нормали.

Оптический знак кристалла может быть определен методом «бегущих полосок» при использовании кварцевого клина в поляризационном микроскопе [106]. Метод основан на непрерывном изменении разности хода, а, следовательно, и интерференционных окрасок коноскопической картины кристалла. Оптический знак одноосного кристалла определяется с помощью кварцевого клина по коноскопической картине (метод «бегущих полосок») в сечении, параллельном оптической оси, и в сечении, перпендикулярном оптической оси.

Кварцевый клин имеет положительный оптический знак и представляет собой удлиненную клинообразную кварцевую пластинку, вырезанную таким образом, что оптическая ось кварца параллельна поверхности клина и перпендикулярна его длинной стороне. Толщина и угол клина подбираются определенным образом.

Для кристаллической пластинки, вырезанной из одноосного кристалла параллельно оптической оси, коноскопическая картина представляет две системы гипербол с взаимно перпендикулярными осями. Из условий суммирования разностей хода (фазовых сдвигов) обыкновенного и необыкновенного лучей в клине и в кристалле следует: у положительного кристалла при продвижении кварцевого клина в квадрантах, расположенных вдоль клина, гиперболы смещаются к центру, а в двух других квадрантах – к периферии поля зрения. У отрицательного кристалла наблюдается смещение полос в обратном направлении.

Определение оптического знака кристалла по коноскопической картине в сечении, перпендикулярном оптической оси, основано на том, что в любой точке картины необыкновенным лучам соответствует радиальное

направление вектора E , а обыкновенным – тангенциальное. Направление векторов E обыкновенного и необыкновенного лучей одинаковы в противоположных квадрантах и взаимно перпендикулярны в смежных квадрантах. Поэтому если вдвигать кварцевый клин от тонкого конца к более толстому и наблюдать движение колец-изохром, то в случае положительного кристалла в квадрантах, лежащих вдоль клина, кольца смещаются от центра к периферии. В двух других противоположных квадрантах кольца смещаются от периферии к центру.

Данный способ позволяет определить оптический знак для кристаллов с любой величиной двулучепреломления. Это обусловлено тем, что величина двулучепреломления кристалла влияет только на масштаб коноскопической картины, не меняя в целом ее вида. Однако достоверность определения оптического знака снижается для любых кристаллов с различной ориентацией оптической оси относительно входной грани кристалла. Это обусловлено тем, что определение оптического знака осуществляется по коноскопической картине, являющейся результатом наложения коноскопической картины исследуемого кристалла и искаженной коноскопической картины кварцевого клина. Суммарная коноскопическая картина затрудняет определение направления смещения изохром коноскопической картины исследуемого кристалла вследствие образования ряби при смещении изохром клина относительно изохром исследуемого кристалла.

Повысить достоверность определения оптического знака кристалла благодаря получению четкой коноскопической картины позволяет способ определения оптического знака кристалла по его коноскопической картине с помощью поворота пластинки $\lambda/4$ (компенсатора) с известным оптическим знаком [118, 182].

Это достигается прохождением сходящегося пучка излучения только через исследуемую кристаллическую пластинку. При этом исключается коноскопическая картина компенсатора и на экране получается коноскопическая картина исследуемой кристаллической пластинки. В результате коноскопическая картина становится четкой и при вращении компенсатора наблюдается визуальное изменение коноскопической картины на экране, что позволяет определить оптический знак кристалла с различной ориентацией оптической оси относительно его входной грани. В эксперименте в качестве подвижного компенсатора использовалась кварцевая пластинка $\lambda/4$. Для определения оптического знака исследуемой кристаллической пластинки использовалась установка, схема которой изображена на рис. 4.18.

Способ определения оптического знака исследуемой кристаллической пластинки при расположении оптической оси в плоскости ее входной грани осуществляется следующим образом (рис. 4.18 *a*). Излучение He-Ne-лазера через поляризатор, ось пропускания которого составляет угол 45° с осями фазовой пластинки, направляется на фазовую пластинку $\lambda/4$, установленную на гониометре с возможностью поворота вокруг вертикальной оси пластинки. При этом оптическая ось фазовой пластинки расположена горизонтально. Оси исследуемой пластинки направлены с осями фазовой пластинки. Анализатор с перпендикулярной к поляризатору осью пропускания расположен после исследуемой

пластинки и пропускает компоненты от векторов **Е** обыкновенного и необыкновенного лучей, сводя их в одну плоскость и позволяя интерферировать между собой. Матовая пластинка не меняет состояние поляризации рассеянного излучения. После кристалла и анализатора на экране наблюдается одна четкая коноскопическая картина в виде двух систем гипербол.

Следует отметить, что коноскопическая картина кристалла (в сечении, параллельном оптической оси) практически нечувствительна к изменению состояния поляризации падающего излучения. Ее общий вид (две системы гипербол) сохраняется при изменении формы поляризации излучения, связанной с поворотом компенсатора. При постепенном повороте фазовой кварцевой пластинки, имеющей положительный оптический знак, вокруг вертикальной оси на угол в интервале $0-45^\circ$ от нормального положения в направлении против часовой стрелки, положение гипербол на коноскопической картине изменяется (рис. 4.19).

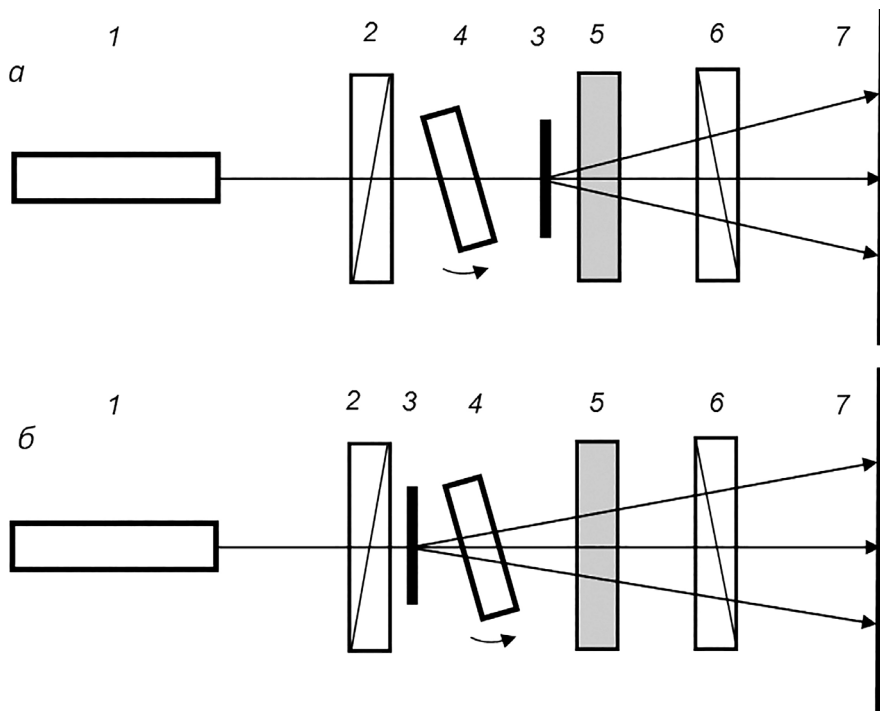


Рисунок 4.18 – Схема установки для определения оптического знака кристалла (вид сверху): 1 – He-Ne-лазер; 2 – поляризатор; 3 – рассеиватель; 4 – компенсатор (фазовая кварцевая пластинка $\lambda/4$), установленный на гониометре; 5 – исследуемая кристаллическая пластинка; 6 – анализатор, скрещенный с поляризатором; 7 – экран; а – рассеиватель 3 установлен перед исследуемой кристаллической пластинкой; б – рассеиватель 3 установлен перед фазовой пластинкой

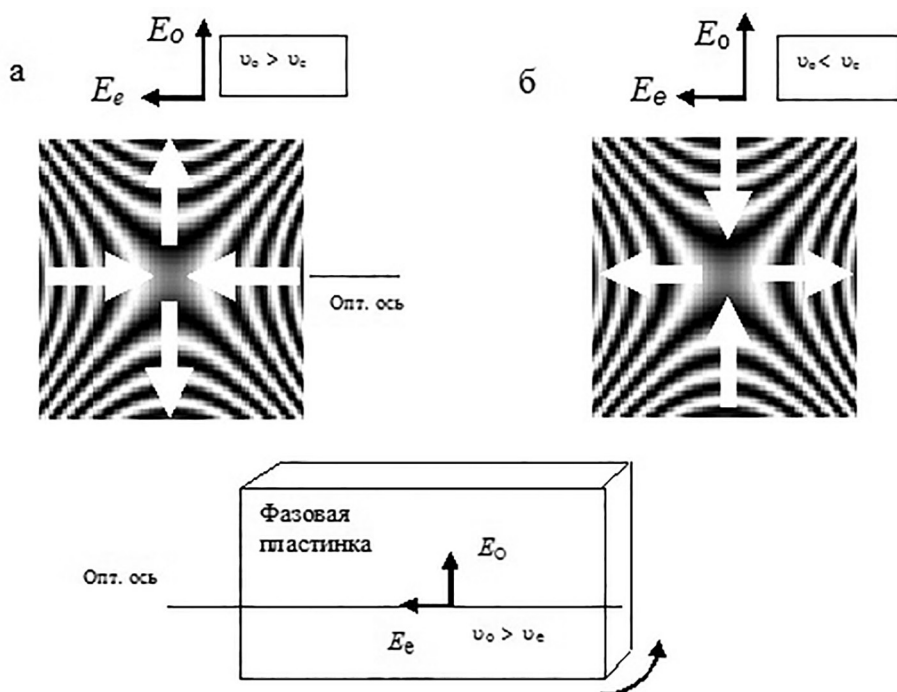


Рисунок 4.19 – Определение оптического знака кристалла в сечении, параллельном оптической оси, с помощью фазовой пластинки: а – положительный кристалл; б – отрицательный кристалл

При совпадении оптических знаков фазовой и исследуемой пластинок происходит суммирование фазовых сдвигов обыкновенного и необыкновенного лучей в каждом выбранном направлении: $\delta = \delta_1 + \delta_2$. Кроме того, в заданном направлении в неподвижной исследуемой пластинке фазовый сдвиг остается постоянным, а фазовый сдвиг в направлении этого же луча в фазовой пластинке постоянно увеличивается за счет увеличения оптического пути при ее повороте. При этом в положительном кристалле в двух горизонтальных квадрантах происходит смещение боковых гипербол к центру картины, в двух вертикальных квадрантах – к периферии (рис. 4.19 а).

При несовпадении оптических знаков фазовой и исследуемой пластинок итоговый фазовый сдвиг между обыкновенным и необыкновенным лучами в данном направлении при повороте фазовой пластинки в этом же направлении уменьшается: $\delta = \delta_1 - \delta_2$. При этом в отрицательном кристалле в двух горизонтальных квадрантах происходит смещение боковых гипербол к периферии картины, в двух вертикальных квадрантах – к центру картины (рис. 4.19 б).

Для определения оптического знака кристалла в сечении, перпендикулярном оптической оси, также используется вышеописанная установка (рис. 4.18 а), в которой наблюдают одну коноскопическую картину исследуемого кристалла.

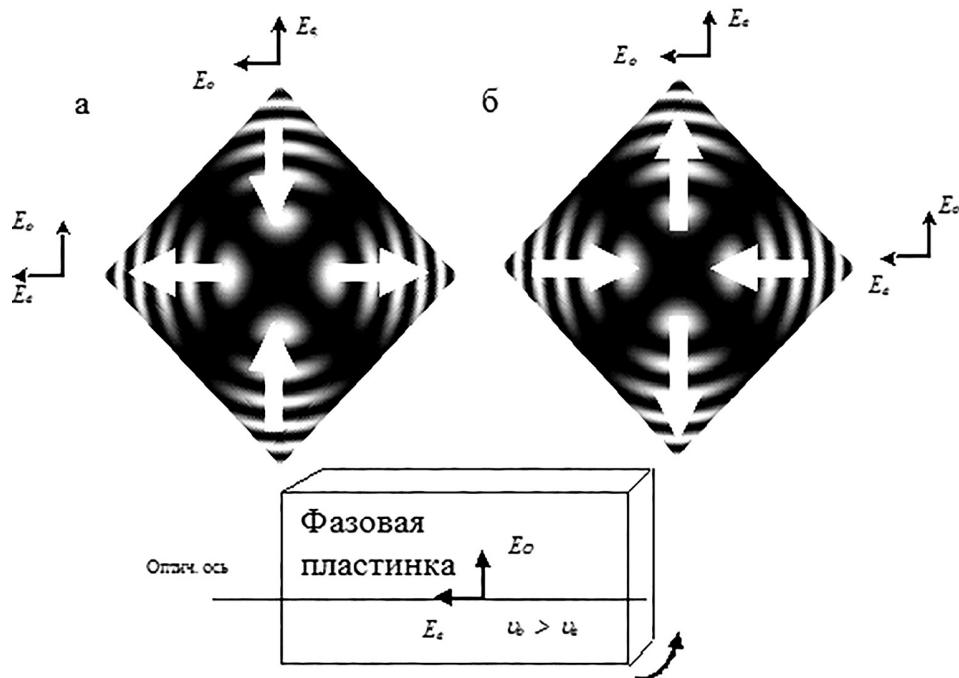






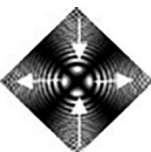

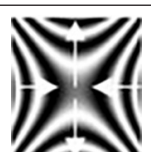
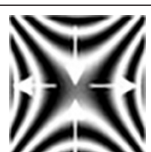


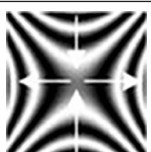
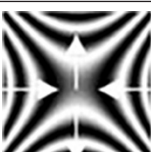

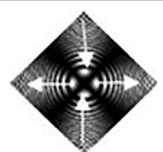

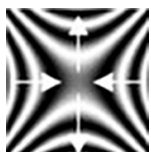
Рисунок 4.20 – Определение оптического знака кристалла в сечении, перпендикулярном оптической оси, с помощью поворота фазовой кварцевой пластинки: а – положительный кристалл; б – отрицательный кристалл

Несмотря на то, что коноскопическая картина кристалла, вырезанного перпендикулярно оптической оси, значительно изменяется при изменении форм поляризации излучения [161, 183], связанной с поворотом компенсатора, движение изохром на коноскопической картине хорошо наблюдается (рис. 4.20).

При совпадении оптических знаков фазовой и исследуемой пластинок в одной паре противоположных квадрантов происходит суммирование фазовых сдвигов обыкновенного и необыкновенного лучей в данном направлении конуса излучения $\delta = \delta_1 + \delta_2$. В другой паре противоположных квадрантов итоговый фазовый сдвиг между обыкновенным и необыкновенным лучами при повороте фазовой пластинки уменьшается и $\delta = \delta_1 - \delta_2$.

Как следствие, в случае положительного кристалла в горизонтальной паре квадрантов кольца-изохром смещаются от центра к периферии (рис. 4.20 а). В вертикальной паре квадрантов кольца смещаются от периферии к центру. Для отрицательного кристалла движение колец-изохром противоположно (рис. 4.20 б).

Таблица 4.1 – Коноскопические картины при всевозможных вариантах изготовления исследуемых кристаллических пластинок и компенсаторов

Пример	Оптический компенсатор	Оптический знак исследуемого кристалла	
		положительный	отрицательный
1	Входная грань параллельна оптической оси; положительный		
2	То же		
3	Входная грань перпендикулярна оптической оси; положительный		
4	То же		
5	Входная грань параллельна оптической оси; отрицательный		
6	То же		
7	Входная грань перпендикулярна оптической оси; отрицательный		
8	То же		

Определение оптического знака кристалла также возможно при расположении рассеивателя (матового стекла) перед фазовой пластинкой (рис. 4.18 б), но более предпочтительным является первый вариант установки, в котором движение колец-изохром и гипербол более наглядно. Коноскопические картины, получаемые при всевозможных вариантах изготовления исследуемых кристаллических пластинок и компенсаторов, изображены в табл. 4.1.

В эксперименте определен оптический знак для пластинок, вырезанных из известных кристаллов [184, 185]: парателлурита TeO_2 (положительный), кварца SiO_2 (положительный), иодата лития LiIO_3 (отрицательный), ниобата лития LiNbO_3 (отрицательный). Определенный в эксперименте знак кристалла совпадает со справочными данными [186].

Использование предлагаемого способа повышает достоверность определения оптического знака кристалла с различной ориентацией оптической оси относительно его входной грани, что расширяет функциональные возможности метода определения оптического знака кристалла и снижает технологические затраты. Кроме того, достоинством способа является простота проведения экспериментальных измерений и отсутствие необходимости специальных устройств типа кварцевого клина, изготовление которого достаточно трудоемко и дорого.

4.5.2 Определение оптического знака кристалла коноскопическим методом в системе из двух неподвижных кристаллических пластинок

Поворот компенсатора позволяет достоверно определить оптический знак исследуемого кристалла, но приводит к непрерывному изменению состояния поляризации луча, падающего на него. При этом происходит непрерывное искажение центральной части коноскопической картины, что для пластинок значительной толщины с входной гранью, перпендикулярной оптической оси, может затруднить определение оптического знака, вследствие того, что смещение изохром наблюдают только в ограниченной для наблюдения периферической части коноскопической картины. Для устранения этого недостатка и получения четко видимой коноскопической картины в пределах всего поля зрения в системе из двух кристаллических пластинок их оптические оси устанавливают неподвижно под некоторым углом $\alpha = 10\text{--}14^\circ$ [157, 187] (рис. 4.21).

При такой установке на экране наблюдают несколько коноскопических картин [118, 157, 187, 188]. Проведенный эксперимент позволяет сделать вывод, что от оптического знака исследуемой пластинки зависит количество наблюдаемых коноскопических картин на экране. При появлении *трех* коноскопических картин на экране оптический знак исследуемой кристаллической пластинки является положительным (рис. 4.22 а).

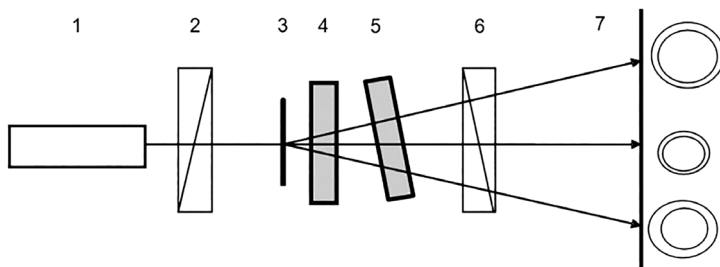


Рисунок 4.21 – Схема установки:

1 – He-Ne-лазер; 2 – поляризатор; 3 – рассеиватель; 4 – плоскопараллельная кристаллическая пластинка с положительным оптическим знаком, вырезанная перпендикулярно оптической оси; 5 – исследуемая кристаллическая пластинка, установленная с углом $\alpha = 10-14^\circ$ между оптической осью и осью оптической системы; 6 – анализатор; 7 – экран

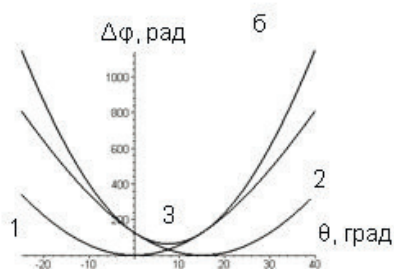
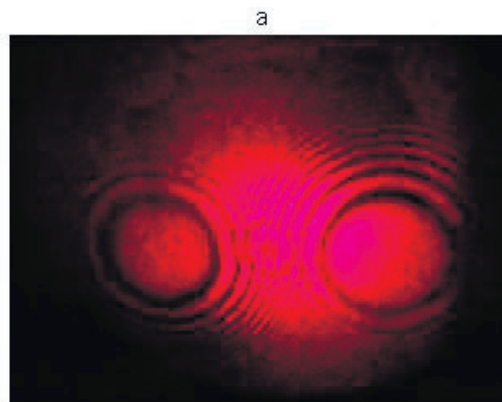


Рисунок 4.22 – Фотографии коноскопических картин системы из двух кристаллических пластинок TeO_2 , расположенных под углом 15° друг к другу (а); зависимость разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами от угла падения излучения (б):

1 – нормально ориентированная пластинка TeO_2 толщиной 7 мм; 2 – пластинка TeO_2 толщиной 7 мм, ориентированная под углом 15° к оси системы; 3 – две пластинки TeO_2 с углом между ними 15°

На рис. 4.22 б представлены соответствующие каждой системе колец рассчитанные кривые разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами, вносимые пластинками TeO_2 одинаковой толщины. При расчете разности фаз $\Delta\varphi$, возникающей за счет двулучепреломления, оптическая активность не учитывалась.

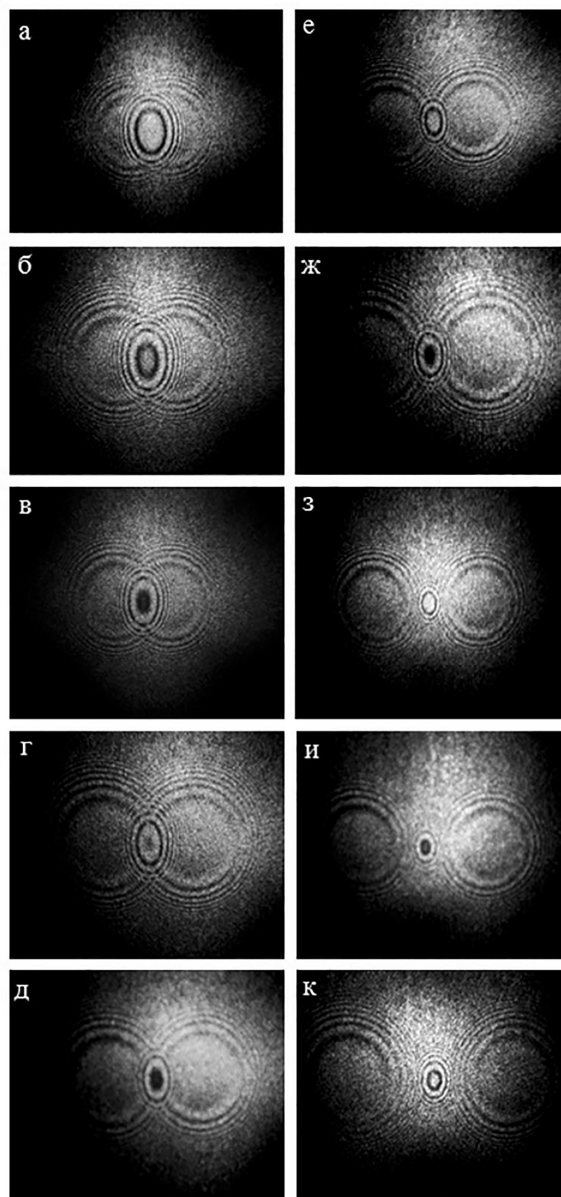


Рисунок 4.23 – Коноскопические картины системы из двух кристаллических пластинок LiJO_3 (отрицательный оптический знак) толщиной 33 и 37 мм

При наблюдении хорошо просматривается система концентрических колец для первой пластинки с центром, соответствующим значению $\theta = 0^\circ$ (кривая 1 на рис. 4.22 б). На угловом расстоянии $\theta = 15^\circ$ расположена система колец, принадлежащая второй пластинке (кривая 2 на рис. 4.22 б). Помимо этого, на угловом расстоянии $\theta = 8,8^\circ$ наблюдается третья система колец с псевдооптической осью, соответствующей системе из двух пластинок TeO_2 (кривая 3 на рис. 4.22 б). Именно кривая 3 на рис. 4.22 б, характеризующая результирующую разность фаз $\Delta\varphi = \Delta\varphi_1 + \Delta\varphi_2$, позволяет объяснить появление третьей системы колец на экране при наложении двух пластинок с положительным оптическим знаком.

На рис. 4.23 приведены фотографии коноскопических картин системы из двух кристаллических пластинок LiJO_3 (отрицательный оптический знак) толщиной 33 и 37 мм в направлении оптической оси при изменении угла между оптическими осями пластинок. При наблюдении коноскопических картин на экране хорошо просматривается система концентрических колец для каждой пластинки, а также дополнительная система колец, в центре которой при увеличении угла между оптическими осями пластинок периодически появляется светлое или темное пятно. При вращении анализатора в оптической системе для пластинки, расположенной ближе к экрану, диаметр изохром меняется (изохромы «сходятся» или «расходятся» от центра к периферии), что является признаком оптически активного кристалла.

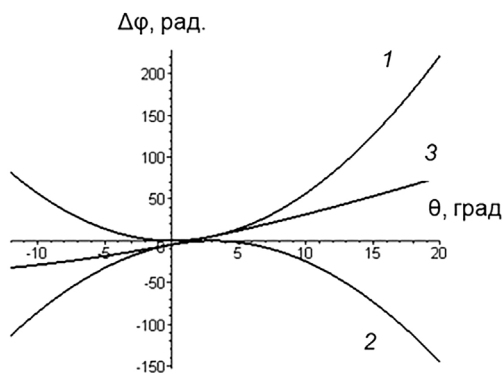


Рисунок 4.24 – Зависимости разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами от угла падения излучения:

1 – нормально ориентированная пластинка TeO_2 толщиной 7 мм; 2 – пластинка LiJO_3 толщиной 10 мм, ориентированная под углом 4° к оси системы; 3 – две пластинки с углом между ними 4°

Однако поведение изохром на коноскопической картине пластинки, более удаленной от экрана, и изохром, принадлежащих псевдооптической оси, соответствует одноосному негиротропному кристаллу, т. е.

радиус кольца-изохромы сохраняется, а его яркость постепенно уменьшается до минимума. Таким образом, система, состоящая из двух гиrotропных пластинок, проявляет свойства как гиrotропного, так и негиrotропного кристалла.

Рассчитанные зависимости разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами в системе кристаллических пластинок с разным оптическим знаком приведены на рис. 4.24.

Результирующая кривая разности фаз δ (рис. 4.24) для системы из двух пластинок при небольших углах между ними не создает дополнительной системы колец, что соответствует двум коноскопическим картинам на экране (рис. 4.25).

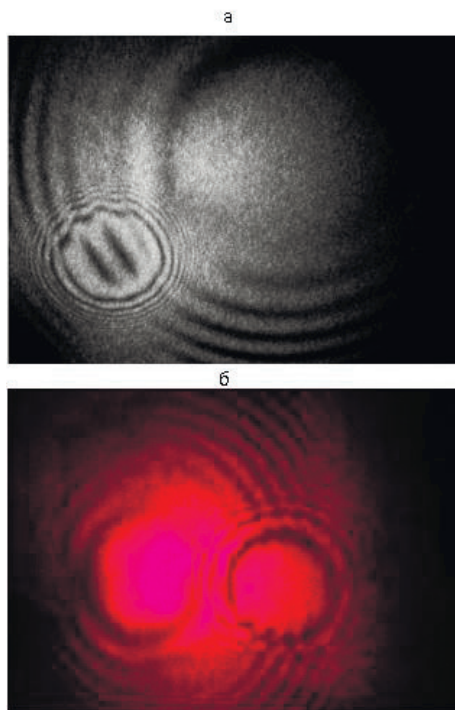


Рисунок 4.25 – Фотографии коноскопических картин системы из двух кристаллических пластинок (парателлурит с положительным оптическим знаком и иодат лития с отрицательным оптическим знаком), расположенных под углом друг к другу

Таким образом, использование в коноскопическом методе системы из двух кристаллических пластинок, оптический знак, одной из которых известен, позволяет достоверно определить оптический знак второй кристаллической пластинки.

Глава 5 ИЗМЕНЕНИЕ ПОЛЯРИЗАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ В КОНОСКОПИЧЕСКОМ МЕТОДЕ

5.1 Поляризационные характеристики излучения

Для оптического излучения состояние поляризации, наряду с частотой, длиной волны, фазой и амплитудой, является одной из его основных характеристик, которая описывает поперечную анизотропию световых волн, т. е. неэквивалентность различных направлений в плоскости, перпендикулярной световому лучу. Форма кривой, описываемой концом проекции вектора \mathbf{E} на плоскости, перпендикулярной лучу, определяет вид поляризации излучения. В соответствии с этим различают три вида поляризации излучения: линейную, эллиптическую и циркулярную. В общем случае проекционная картина эллиптически поляризованного излучения имеет вид эллипса с правым или левым направлением вращения вектора \mathbf{E} во времени. При вырождении эллипса поляризации в отрезок прямой линии, определяющий положение плоскости поляризации, она имеет линейно поляризованное излучение, при вырождении эллипса в окружность – циркулярно поляризованное излучение [160, 171, 189–192].

В кристаллической пластинке с входной гранью, параллельной оптической оси, линейно поляризованное излучение распространяется в виде двух лучей – обыкновенного и необыкновенного, направления колебаний векторов \mathbf{E} которых взаимно перпендикулярны и совпадают с главными направлениями пластинки. Из-за различия в скоростях распространения один луч опережает или отстает по фазе от другого луча, соответственно, в пластинке различают медленное и быстрое направления. Результат сложения обыкновенного и необыкновенного лучей на выходе из пластинки зависит от поляризации излучения, падающего на пластинку, и от ее толщины. В общем случае при падении на пластинку монохроматического линейно поляризованного излучения на выходе из нее получается эллиптически поляризованное излучение [160, 171, 189–192].

Уравнение эллипса поляризации, оси которого не совпадают с осями пластинки, имеет вид [105]:

$$\frac{E_x^2}{a^2} + \frac{E_y^2}{b^2} - \frac{2E_x E_y}{ab} \cos \delta = \sin^2 \delta, \quad (5.1)$$

где E_x , E_y – компоненты вектора напряженности излучения, вышедшего из кристаллической пластинки; a , b – большая и малая полуоси эллипса; δ – фазовый сдвиг (разность фаз) между обыкновенным и необыкновенным лучами на выходе из пластинки. Оси эллипса поляризации всегда расположены в плоскости, перпендикулярной направлению распространения излучения.

На вид поляризации излучения влияют два фактора: величина фазового сдвига δ зависящая от толщины пластинки d и показателей преломления, и величина проекций векторов \mathbf{E} обыкновенного и необыкновенного лучей E_x и E_y (амплитуды колебаний) на оси кристаллической пластинки [160, 171, 189–192]. В зависимости от указанных факторов эллиптически поляризованное излучение включает в себя следующие возможные формы [192]:

- излучение с правой и левой эллиптическими поляризациями с различной ориентацией осей эллипса поляризации при $0 < \delta < (2k+1)\frac{\pi}{2}$ и $(2k+1)\frac{\pi}{2} < \delta < k\pi$ и различным положением эллипса в пространстве относительно входной грани пластинки;
- излучение с правой и левой эллиптическими поляризациями с ориентацией осей эллипса поляризации, совпадающей с осями кристаллической пластинки при $\delta = (2k+1)\pi/2$ и $E_x \neq E_y$;
- излучение с правой и левой циркулярными поляризациями с ориентацией осей окружности, совпадающей с осями кристаллической пластинки при $\delta = (2k+1)\pi/2$ и $E_x = E_y$;
- линейно поляризованное излучение, сохраняющее первоначальное направление вектора \mathbf{E} , при $\delta = k\pi$ и четном k ;
- линейно поляризованное излучение с вектором \mathbf{E} , направление которого составляет угол $180^\circ - 2\alpha$ с первоначальным направлением вектора \mathbf{E} , при $\delta = k\pi$ и нечетном k .

Формы поляризации излучения определяются по интенсивности излучения любыми известными методами, например, с помощью системы скрещенных поляризатора и анализатора. Ориентация осей эллипса поляризации определяется методами эллипсометрии [160, 171, 189–192].

Эллипс поляризации в его собственной плоскости имеет следующие параметры [160, 171].

Азимут эллиптически поляризованного излучения, т. е. угол между произвольно выбранной фиксированной линией на плоскости, перпендикулярной направлению распространения оптического излучения (например, осью x) и большой полуосью эллипса, по которому поляризовано излучение. Положительным направлением отсчета угла $\alpha_{из}$ считается направление против часовой стрелки при наблюдении навстречу лучу. Значения угла $\alpha_{из}$ лежат в пределах $-\pi/2 \leq \alpha_{из} < \pi/2$.

Эллиптичность – отношение длин малой полуоси и большой полуоси эллипса $e = b/a$.

Направление обхода эллипса поляризации, т. е. направление вращения вектора \mathbf{E} определяется следующим образом. Если вектор \mathbf{E} вращается по часовой стрелке при наблюдении навстречу лучу, то поляризация называется правой эллиптической, если вектор \mathbf{E} вращается против часовой стрелки, то – левой эллиптической.

Угол эллиптичности равен $\beta = \arctg(e)$ и ограничен диапазоном $-\pi/4 \leq \beta \leq \pi/4$.

Параметры эллипса поляризации самым непосредственным образом связаны с соотношением амплитуд и фаз компонент поля излучения, характеризующимся вектором \mathbf{E} . Эти соотношения выражаются через разность

элементов. Конкретные матрицы характеризуют не только само оптическое устройство, но и его ориентацию, например, азимут оси пропускания поляризатора. Разным входным поверхностям оптического устройства также соответствуют различные матрицы.

Пучок излучения описывается вектором Стокса, определяемый четырьмя параметрами I, M, C, S , которые характеризуют интенсивность и поляризацию пучка излучения. Такой вектор, хотя и состоит из четырех физически реальных параметров, является математическим вектором и существует в четырехмерном математическом пространстве. Четыре параметра представляют собой столбец-вектор, который записывают также в виде строки $\{I, M, C, S\}$. Первый параметр I называется интенсивностью. Параметры M, C, S называются соответственно параметром преимущественной горизонтальной поляризации, параметром преимущественной поляризации под углом $+45^\circ$ и параметром преимущественной правоциркулярной поляризации.

Следует отметить, что в большинстве случаев интерес представляют относительные величины, поэтому все параметры делят на первый, чтобы получить нормированный вектор.

Таким образом, для нахождения результатов эксперимента необходимо взять соответствующие выражения из таблицы, например, [160, 182], записать их в нужной последовательности и перемножить их по обычным правилам матричной алгебры.

Метод расчета Джонса представляет собой другой способ, в котором входящий пучок описывается с помощью вектора, оптическое устройство – с помощью матрицы, а результат взаимодействия также получается умножением вектора на матрицу. Преимущества метода Джонса по сравнению с методом Мюллера состоят в том, что, во-первых, в нем используются матрицы меньшего размера (2×2 вместо 4×4) и, во-вторых, метод применим для решения таких задач, в которых необходимо учитывать фазовые соотношения. Однако метод Джонса совершенно неприменим к деполаризующим устройствам. Но при решении задач, в которых важно учитывать фазовые соотношения между пучками излучения, удобно использование вектора Джонса.

Электрический вектор плоской монохроматической волны можно описать с помощью вектора-столбца в виде [193]:

$$\vec{E} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \text{Re } A_x \exp(i(\omega(t - z/v) + \phi_x)) \\ \text{Re } A_y \exp(i(\omega(t - z/v) + \phi_y)) \end{bmatrix}. \quad (5.4)$$

Волна, описываемая выражением (5.4), может быть описана с помощью вектора Джонса:

$$\vec{E}_D = \begin{bmatrix} E_{Dx} \\ E_{Dy} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_x e^{i\phi_x} \\ A_y e^{i\phi_y} \end{bmatrix}. \quad (5.5)$$

При таком описании опускается временная информация, содержащаяся в множителе $\exp(i\omega t)$ и пространственная структура поля, т. е. волна описывается в некоторой точке плоскости $z = 0$. Восстановить пространственную

и временную структуру поля можно, умножив вектор Джонса на множитель $\exp(i(\omega(t - z/v) + \phi_x))$. Вектор Джонса является комплексным вектором. Если комплексные компоненты E_{Dx} и E_{Dy} вектора Джонса будут принимать все возможные значения как независимые комплексные числа, то им будут соответствовать все возможные состояния поляризации со всеми возможными значениями интенсивности и фазы. Вектор Джонса не является вектором в реальном физическом пространстве, это вектор в абстрактном математическом пространстве.

Выбор методов описания поляризованного света зависит от сложности задачи, он должен обеспечивать достаточно полное его описание. Параметрический способ построения поляризационного эллипса излучения [194] в некоторых случаях по сравнению с другими является более удобным и наглядным способом. Потребность в использовании и исследовании поляризационных эффектов привела к появлению разнообразных методов создания пучков излучения с заранее заданным состоянием поляризации, а также способов трансформации и контроля состояния поляризации и разработке на этой основе оптических поляризационных систем.

Контроль состояния поляризации излучения, взаимодействующего с объектом, позволяет измерять механические напряжения, исследовать электро- и магнитооптические эффекты. Для исследования свойств поверхности и тонких пленок широкое распространение получила эллипсометрия [189].

Поляризованное излучение может возникать при отражении и преломлении излучения на границе раздела двух сред в результате различия оптических характеристик границы для компонент, поляризованных параллельно и перпендикулярно плоскости падения. Излучение может поляризоваться или при прохождении через анизотропную среду, или в результате различия коэффициентов поглощения для различных поляризаций, или вследствие двойного лучепреломления. Некоторые из этих эффектов лежат в основе поляризационных приборов – поляризаторов, фазовых пластинок, анализаторов, оптических компенсаторов и других приборов, с помощью которых осуществляется создание, преобразование и анализ состояния поляризации излучения [160, 171, 189–192].

5.2 Преобразование состояния поляризации излучения

Любая поляризационная система включает один или несколько преобразующих состояние поляризации оптических элементов [160, 171, 192].

Пластинки, сдвигающие фазу (называемые также фазовыми или волновыми пластинками), предназначены для изменения формы поляризации. Любую форму поляризации можно превратить в любую другую форму с помощью соответствующей фазовой пластинки, и это превращение не сопровождается потерей интенсивности. Фазовые пластинки в сочетании с линейными поляризаторами применяются для получения и анализа циркулярно и эллиптически поляризованного света [191]. Для получения циркулярно поляризованного излучения также используются различные модуляционные устройства, основанные на электрооптическом или фотоупругом эффектах кристалла [191, 195, 196].

Существует много вариантов изготовления таких пластинок [171, 197]. Довольно часто в качестве материала для них используется слюда. Не менее распространено изготовление фазовых пластинок из анизотропных кристаллов, например, кварца, поскольку кварц обладает рядом преимуществ и является надежным и доступным материалом. Наиболее часто используют фазовые пластинки со сдвигом фаз $\pi/2$ и π ; они называются соответственно четвертьволновыми ($\lambda/4$) и полуволновыми ($\lambda/2$) пластинками. Чаще всего применяются двулучепреломляющие или отражательные фазовые пластинки. К первым относятся пластинки из кварца или исландского шпата, вырезанные параллельно оптической оси, пластинки слюды, пленки ориентированного целлофана [197–201]. Широко известными отражательными фазовыми пластинками являются ромб Френеля и ромб Муни [192].

Пластинки, создающие одинаковый сдвиг фазы для излучения разных длин волн, называются ахроматическими. Большинство пластинок – хроматические. Чаще всего поляризационные возможности таких пластинок ограничены поворотом вокруг оси распространения пучка излучения. При вращении фазовой пластинки $\lambda/4$ вокруг оси, нормальной к ее входной грани, можно получить все формы эллиптической поляризации излучения, включая и предельные – линейную и циркулярную. При этом оси эллипсов колебаний остаются в плоскости входной грани пластинки и совпадают с ее главными направлениями [192]. Однако с помощью нетрадиционного поворота пластинки $\lambda/4$ вокруг оси, параллельной плоскости ее входной грани, возможно значительное расширение диапазона состояний поляризации излучения [203–206]. Поворот фазовой пластинки вокруг вертикальной оси, совпадающей с одной из ее кристаллофизических осей, позволяет управлять эллиптичностью и широкополосного излучения.

Традиционно расширение возможностей поляризационных систем достигается за счет увеличения числа составляющих элементов [171]. Фазовые пластинки могут состоять из одного слоя или нескольких отдельных слоев. В некоторых случаях отдельные слои являются пластинками одного класса, а их комбинация действует как пластинка другого класса (такие комбинации называются трансцендентными пластинками). Например, определенная совокупность линейных пластинок может действовать как циркулярная пластинка [192]. Кроме того, для получения циркулярно поляризованного излучения также используются различные модуляционные устройства в составе поляризационных систем с переменным фазовым сдвигом в жидкостях, кристаллах и жидких кристаллах [207].

Наиболее доступной и эффективной при практических исследованиях является составная фазовая пластинка на основе слюды. В [208] предложена поляризационная система, которая аналогична четвертьволновой пластинке, но изготовлена из двух двулучепреломляющих пластинок произвольной толщины. Важное свойство этой системы – возможность настройки ее на любую длину волны с помощью поворота одной из пластинок вокруг нормали.

В работах [209, 210] предложен метод расчета составных фазовых пластинок, состоящих из двух разнотолщинных кристаллооптических элементов, позволяющих изменить форму поляризации излучения. При известных фазовых сдвигах элементов требуемая форма поляризации достигается за счет определенной ориентации быстрых осей обоих элементов относи-

тельно оси пропускания поляризатора. В работах [211, 212] анализируется возможность изготовления пластинок $\lambda/2$ с наклонной оптической осью из негиротропных и гиротропных кристаллов.

Обычно в фазовых пластинках оптическая ось кристалла расположена параллельно поверхности среза и фазовый сдвиг обусловлен главным двулучепреломлением (т. е. максимально возможным в кристалле). Другой способ изготовления фазовых пластинок заключается в следующем [212]. Пластинку можно вырезать так, чтобы оптическая ось кристалла составляла некоторый угол с нормалью к поверхности пластинки. При этом двулучепреломление в пластинке на один - два порядка меньше, чем главное двулучепреломление. Это позволяет подобрать срез так, чтобы нужная толщина была удобна при изготовлении, а небольшие отклонения толщины не приводили бы к значительным ошибкам.

Сложнее изготовить пластинку $\lambda/4$ из гиротропного (оптически активного) кристалла с учетом гиротропии при расчете параметров пластинки [212]. В гиротропных кристаллах собственные волны поляризованы эллиптически с эллиптичностью k в отличие от негиротропных кристаллов, где собственные волны поляризованы линейно ($k = 0$). Поэтому фазовые пластинки из гиротропных кристаллов называются эллиптическими фазовыми пластинками. В работе [157] предложены перестраиваемые фазовые пластинки из двух гиротропных кристаллов, вырезанных перпендикулярно оптической оси и ориентированных под некоторым углом друг к другу. В работах [213, 214] дана оценка величин изменений параметров поляризованного излучения, вносимых фазовыми пластинками $\lambda/2$ и $\lambda/4$, и приведены результаты расчета состояния поляризации излучения на выходе пленочных поляроидов при их малых коллимационных поворотах в пространстве.

В последнее время появились работы по изучению свойств света с новыми типами поляризации, например, полярным светом, когда луч содержит совокупность гармоник и каждая из них поляризована в одном и том же направлении [215]. Теоретические расчеты показали возможность управлять полярностью пучка излучения поворотом кристаллической пластинки или изменением ее толщины. Полярность излучения при повороте пластинки изменяется за счет разности показателей преломления на частотах ω и 2ω с учетом пройденного лучами оптического пути [216]. Представляют значительный интерес свойства света, полученного при сложении двух пучков, когда направления векторов напряженности электрических полей не ортогональны и не равны нулю [217].

Большинство современных лазеров производят поляризационно-однородное излучение, т. е. поляризационные параметры во всех точках поперечного сечения лазерного пучка одинаковы. Практический интерес представляют пучки, имеющие аксиальную симметрию всех параметров лазерного излучения, включая поляризацию, например, пучки с радиальным и азимутальным направлением поляризации. Цилиндрические (с аксиальной симметрией) векторные пучки имеют множество приложений, включая микроскопию, литографию, ускорение электронов, обработку материалов, высокоразрешающую метрологию, микроэллипсометрию и спектроскопию [218].

При острой фокусировке радиально-поляризованного пучка на оси в фокусе возникает мощная продольная компонента, а электрическое поле на оси пучка исчезает, придавая поперечному распределению интенсивности пучка кольцевую форму. Такая топология используется для уменьшения размеров фокального пятна [219–221], для оптического захвата и трехмерного ориентирования молекул [222, 223], а также для ускорения электронов [224].

Разработана и экспериментально испытана оптическая система для преобразования поляризации модовых пучков из линейной (наиболее характерной для лазерного излучения) в аксиально-симметричные (радиальную или азимутальную как более эффективные в различных приложениях), а также с разнообразной неоднородной структурой (смешанные линейные и линейно-круговые поляризации) [225].

Среди неоднородно поляризованных волновых пучков особое место занимают пучки с винтовыми возмущениями волнового фронта. Вихревой характер распространения световой энергии в таких пучках излучения позволяет говорить о существовании оптических вихрей [226]. Излучение с вихревой структурой может при определенных условиях формироваться в результате прохождения лазерных пучков через случайно-неоднородные и нелинейные среды, а также через маломодовые и многомодовые световоды [227] или специальным образом изготовленные голограммы. Кроме того, возможно возбуждение вихревых полей непосредственно в лазерах. Лазерные пучки с винтовыми дислокациями могут быть использованы для создания оптических ловушек, оптических манипуляторов, оптических пинцетов, в системах коммуникаций.

Неоднородное распределение состояния поляризации в поперечном сечении лазерного пучка можно получить при пропускании расходящегося или сходящегося линейно поляризованного пучка вдоль оптической оси анизотропного кристалла [143].

5.3 Визуализация форм поляризации излучения

Знание форм поляризации излучения важно при проведении исследований оптическими методами. Известны фотометрический и визуальный способы определения форм поляризации оптического излучения. В основе фотометрического способа определения форм поляризации оптического излучения лежит явление фотоэффекта. По величине измеренной интенсивности судят о форме поляризации излучения (эллиптической, циркулярной, линейной). Фотометрический способ позволяет определить формы поляризации оптического излучения с большой степенью достоверности, но требует дорогостоящих стационарных установок и значительных затрат времени. В основе визуального способа определения форм поляризации оптического излучения лежит явление интерференции. По виду интерференционной картины судят о форме поляризации оптического излучения. Визуальный способ позволяет определить формы поляризации оптического излучения с большой степенью достоверности и не требует дорогостоящих стационарных установок и значительных затрат времени, являясь экспресс-методом определения форм поляризации оптического излучения.

Обычно для определения поляризации излучения используют оптическую систему, содержащую анализатор и экран. Исследуемый параллельный пучок излучения пропускают вдоль оси оптической системы через анализатор на экран и сравнивают изменения интенсивности светового пятна на экране в процессе поворота анализатора [160, 171, 184]. По изменению интенсивности светового пятна судят о форме поляризации оптического излучения. Уменьшение интенсивности светового пятна на экране до минимального значения, равного нулю, свидетельствует о линейной поляризации исследуемого оптического излучения. Уменьшение интенсивности светового пятна на экране до минимального значения, не равного нулю, свидетельствует об эллиптической поляризации исследуемого оптического излучения. Отсутствие изменения интенсивности светового пятна на экране свидетельствует либо о естественном излучении, либо о циркулярно поляризованном излучении. Таким образом, данный способ определения форм поляризации оптического излучения позволяет определить только линейно и эллиптически поляризованное излучение и не позволяет определить естественное и циркулярно поляризованное излучение.

В другом способе определения поляризации излучения [160, 171, 184] используют расходящийся пучок излучения, который пропускают через оптическую систему, содержащую кристаллическую пластинку, анализатор и экран (рис. 5.2). Вначале выбирают кристаллическую пластинку с оптической осью в плоскости ее входной грани. При естественном излучении на выходе из такой пластинки оно остается естественным. После анализатора на экране интерференционная (коноскопическая) картина имеет вид светового пятна равномерной интенсивности. Отсутствие изменения интенсивности светового пятна на экране при повороте анализатора свидетельствует об исследуемом естественном излучении. При любом поляризованном излучении (эллиптическом, циркулярном, линейном) интерференционная (коноскопическая) картина имеет вид двух систем гипербол (рис. 5.3).

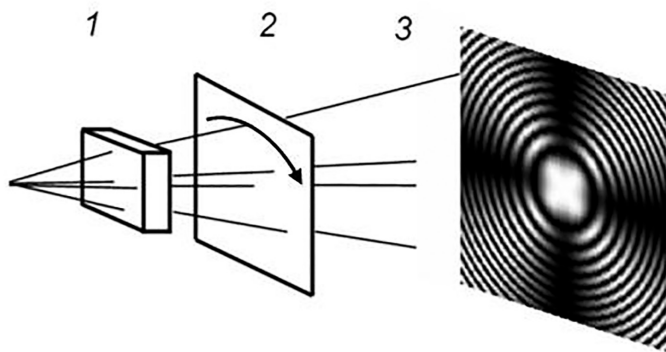


Рисунок 5.2 – Схема оптической системы: 1 – кристаллическая пластинка; 2 – анализатор; 3 – экран

При повороте анализатора коноскопическая картина имеет вид двух систем гипербол с меньшей контрастностью, которая при дальнейшем повороте анализатора уменьшается до нуля. На экране наблюдается коноскопическая картина в виде светового пятна равномерной интенсивности. Изменение коноскопической картины на экране свидетельствует о поляризации исследуемого излучения. Таким образом, выбор кристаллической пластинки с оптической осью в плоскости ее входной грани позволяет определить только состояние поляризации и выделить естественное и поляризованное излучение. Способ определения форм поляризации оптического излучения с использованием кристаллической пластинки с входной гранью, перпендикулярной ее оптической оси, расширяет функциональные возможности использования за счет определения не только состояния поляризации, но и всех форм поляризации оптического излучения (рассмотрен в работах [142, 228, 229]).

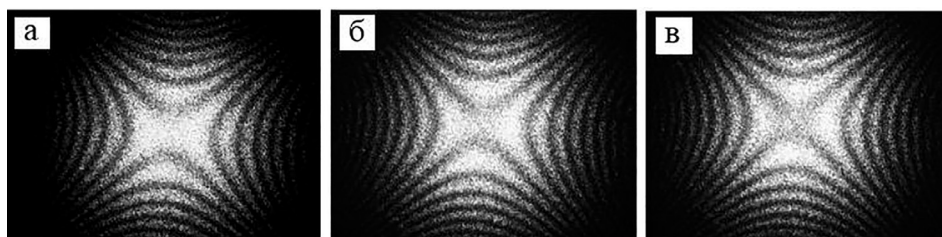


Рисунок 5.3 – Коноскопические картины кристаллической пластинки KTiOPO_4 с оптической осью в плоскости ее входной грани: а – циркулярное излучение; 2 – эллиптическое излучение; 3 – линейное излучение

При выборе кристаллической пластинки с входной гранью, перпендикулярной ее оптической оси, на экране также получают коноскопическую картину. Затем поворачивают анализатор вокруг оси оптической системы до появления определенной коноскопической картины, которая обуславливается формой поляризации и свойствами оптической активности кристаллической пластинки [142, 228, 229].

Виды коноскопических картин, соответствующих определенной форме поляризации оптического излучения, с использованием оптически неактивных кристаллов приведены в табл. 5.2, коноскопические картины, получаемые в оптически активных кристаллах с определенной формой поляризации излучения, приведены в табл. 5.3.

Пример 1 (табл. 5.2). В качестве кристаллической пластинки выбирают оптически неактивную кристаллическую пластинку (например, ниобат лития LiNbO_3 , дейтерированный дигидрофосфат калия (DKDP) KD_2PO_4).

Каждый луч исследуемого расходящегося пучка излучения (кроме луча в направлении оси оптической системы) в кристаллической пластинке разбивается на обыкновенный луч с вектором \mathbf{E}_o и необыкновенный с вектором \mathbf{E}_e .

При естественном излучении наблюдается интерференционная (коноскопическая) картина в виде светового пятна равномерной интенсивности. При наличии светового пятна на экране до и после поворота анализатора, т. е. при отсутствии изменения коноскопической картины на экране, делают вывод об отсутствии поляризации излучения и о том, что исследуемое излучение является естественным.

При любом поляризованном излучении обыкновенный и необыкновенный лучи, являясь когерентными между собой и двигаясь с разными скоростями, набирают в кристаллической пластинке соответствующий углу падения фазовый сдвиг $\delta = \text{const}$. Каждому лучу соответствует свой фазовый сдвиг $\delta_1 = \text{const}$, $\delta_2 = \text{const}$ и т. д., величина которого зависит от угла падения луча α в расходящемся коническом пучке.

В целом излучение после кристаллической пластинки содержит лучи с различными фазовыми сдвигами. В зависимости от ориентации вектора \mathbf{E} на входе и величины фазового сдвига в кристаллической пластинке на выходе из нее обыкновенный и необыкновенный лучи, складываясь, в каждом направлении создают определенную форму поляризации излучения: или эллиптическую, или циркулярную, или линейную. После анализатора каждый луч создает свою интерференционную картину (максимум или минимум) на экране. Результатом суммирования интерференционных максимумов и минимумов является интерференционная (коноскопическая) картина.

При повороте анализатора проекция вектора \mathbf{E} каждого луча на ось пропускания анализатора изменяется по своему закону и на выходе из анализатора каждый линейно поляризованный луч имеет вектор \mathbf{E} , отличный по модулю от значения модуля \mathbf{E} до анализатора, и на экране дает интерференционную картину с другими максимумами или минимумами. Поворот анализатора осуществляют до получения определенной коноскопической картины, по которой определяют форму поляризации (табл. 5.2).

При получении коноскопической картины в виде черного «мальтийского креста» на фоне концентрических черных и светлых колец-изохром одинаковой интенсивности делают вывод о том, что исследуемое излучение является линейно поляризованным. При этом каждое кольцо-изохрома, являясь линией одинакового фазового сдвига, соответствует конусу лучей с одинаковым углом падения α . Ветви «мальтийского креста» перпендикулярны друг другу, и одна из ветвей совпадает с осью пропускания анализатора.

При получении коноскопической картины в виде светлого «мальтийского креста» с двумя черными точками в центре между ветвями креста на фоне колец-изохром с интенсивностью, изменяющейся в каждом кольце от максимума к минимуму при переходе через ветви «мальтийского креста», делают вывод о том что исследуемое излучение является циркулярно поляризованным. При этом кольца-изохромы делятся ветвями слабо выраженного «мальтийского креста» на четыре части. При переходе через ветви «мальтийского креста» интенсивность каждой 1/4 части изохромы последовательно изменяется с минимальной на максимальную и наоборот.

Таблица 5.2 – Коноскопические картины оптически неактивных кристаллов

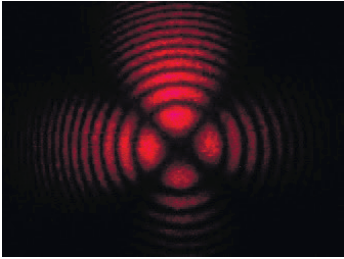

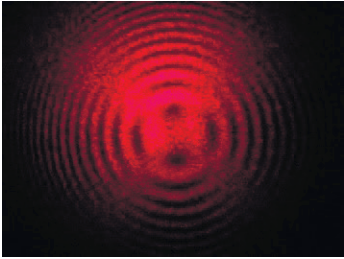
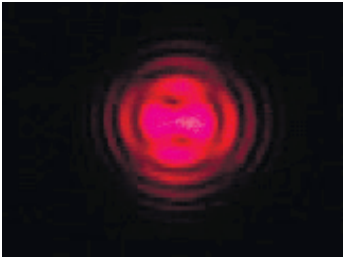
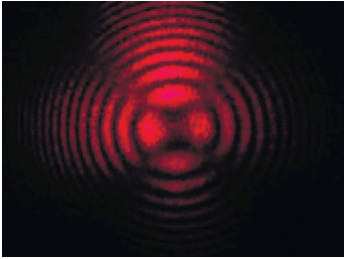
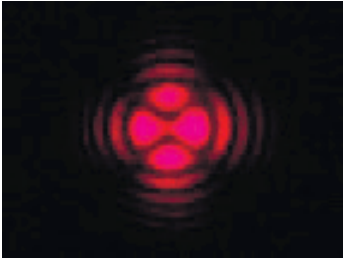
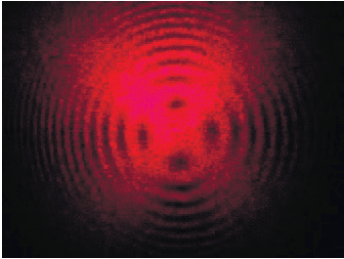
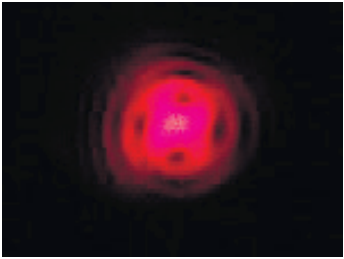
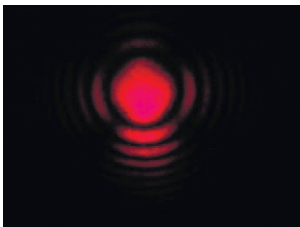
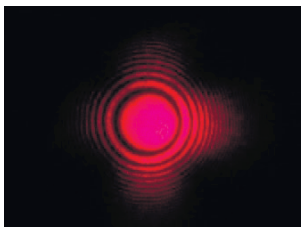
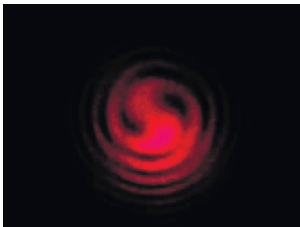
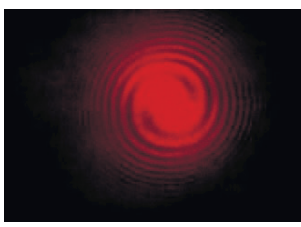
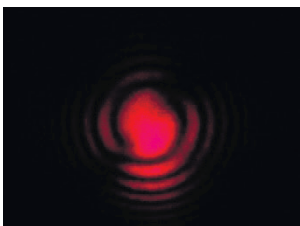
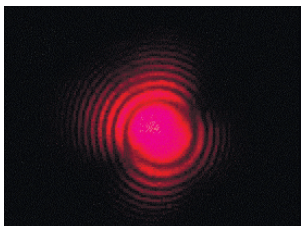
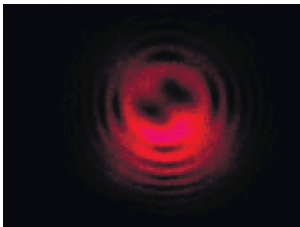
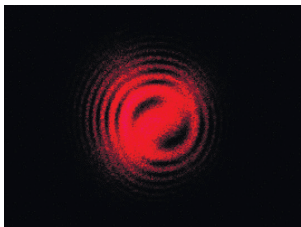
Форма поляризации излучения	Оптически неактивная кристаллическая пластинка LiNbO_3	Оптически неактивная кристаллическая пластинка $\text{DKDP KD}_2\text{PO}_4$
Естественное	Световое пятно	Световое пятно
Линейно поляризованное		
Циркулярно поляризованное		
Эллиптически поляризованное		
		

Таблица 5.3 – Коноскопические картины оптически активных кристаллов

Форма поляризации излучения	Оптически активная кристаллическая пластинка LiIO_3	Оптически активная кристаллическая пластинка TeO_2
Естественное	Световое пятно	Световое пятно
Линейно поляризованное		
Циркулярно поляризованное		
Эллиптически поляризованное		
		

При получении коноскопической картины в виде черного «мальтийского креста» с разрывом в центре на две части на фоне колец-изохром с интенсивностью, изменяющейся в каждом кольце от максимума к минимуму при переходе через ветви «мальтийского креста», или в виде светлого «мальтийского креста» с четырьмя минимумами в центре между ветвями креста на фоне колец-изохром с интенсивностью, изменяющейся в каждом кольце от максимума к минимуму при переходе через ветви «мальтийского креста», делают вывод о том что исследуемое излучение является эллиптически поляризованным. При этом в первом случае в центре картины обе части черного «мальтийского креста» имеют вид не прямых углов, вершины которых не соприкасаются. Кольца-изохромы делятся ветвями разорванного «мальтийского креста» на четыре части. При переходе через ветви «мальтийского креста» интенсивность каждой $1/4$ части изохромы последовательно изменяется с минимальной на максимальную и наоборот.

Наличие «мальтийского креста» в неактивном кристалле по всей области коноскопической картины для всех форм поляризации оптического излучения обусловлено следующим. В расходящемся пучке излучения всегда существуют лучи, главные плоскости которых перпендикулярны, а векторы \mathbf{E} лучей, лежащих в этих плоскостях, параллельны друг к другу. Такие лучи в кристаллической пластинке являются или только обыкновенными, или только необыкновенными и после действия анализатора дают на экране «мальтийский крест».

Пример 2 (табл. 5.3). В качестве кристаллической пластинки выбирают оптически активную кристаллическую пластинку (например, парателлурит TeO_2 , иодат лития LiIO_3). Оптическая активность таких кристаллов проявляется в направлениях, близких к оптической оси кристаллической пластинки в пределах углов от 0 до $5-7^\circ$.

При естественном излучении изменение коноскопической картины на экране прошедшего через пластинку излучения до и после поворота анализатора отсутствует в силу одинакового влияния на естественное излучение как оптически неактивной, так и активной пластинки. Поэтому при наличии светового пятна на экране до и после поворота анализатора, т. е. при отсутствии изменения коноскопической картины на экране, делают вывод об отсутствии поляризации излучения и о том, что исследуемое излучение является естественным.

При любом поляризованном излучении преобразование лучей в периферийной области происходит, как в неактивном кристалле. Поэтому в периферийной области коноскопической картины всегда наблюдается «мальтийский крест» на фоне изохром.

В области, близкой к оптической оси оптически активной кристаллической пластинки, расходящийся пучок излучения с любой поляризацией всегда имеет лучи с векторами \mathbf{E} или проекциями векторов \mathbf{E} , главные плоскости которых перпендикулярны, а векторы \mathbf{E} лучей, лежащих в этих плоскостях, или их проекции параллельны друг к другу. Благодаря эллиптическому двулучепреломлению пластинки эти лучи на выходе из нее имеют эллиптическую поляризацию и после действия анализатора дают на экране световое пятно.

Кроме того, оптическая активность вследствие эллиптического двулучепреломления влияет на форму изохром, изменяя их кольцевую форму на спиралевидную.

Поворот анализатора осуществляют до получения определенной коноскопической картины, по которой определяют форму поляризации. При получении коноскопической картины в виде центрального светового пятна равномерной интенсивности и черного «мальтийского креста» на периферии концентрических колец-изохром одинаковой интенсивности делают вывод о том, что исследуемое излучение является линейно поляризованным. При получении коноскопической картины в виде центрального светового пятна равномерной интенсивности и одной ветви светлого «мальтийского креста» на периферии спиралевидных изохром одинаковой интенсивности делают вывод о том, что исследуемое излучение является циркулярно поляризованным. При получении коноскопической картины в виде центрального светового пятна равномерной интенсивности и одной ветви черного «мальтийского креста» на периферии спиралевидных изохром с интенсивностью, изменяющейся в каждой спирали от максимума к минимуму при переходе через ветвь «мальтийского креста», или в виде центрального светового пятна равномерной интенсивности с двумя черными дугами в центре, симметричными одной ветви светлого «мальтийского креста», делают вывод о том, что исследуемое излучение является эллиптически поляризованным.

Таким образом, коноскопический метод проявляет большую чувствительность к поляризации излучения, а вид коноскопической картины кристаллической пластинки с входной гранью, перпендикулярной ее оптической оси, позволяет не только отличить естественное излучение от поляризованного, но и визуально определить формы поляризации излучения, что особенно удобно на стадии предварительной характеристики поляризационных свойств используемого излучения.

5.4 Влияние фазового сдвига оптического излучения на коноскопические картины кристаллов

В ходе эксперимента по визуализации форм поляризации излучения выявлено влияние фазового сдвига оптического излучения и, как следствие, влияние азимута и направления обхода эллипса поляризации излучения на вид коноскопической картины оптических кристаллов [230–233]. Эллиптически поляризованное излучение с различным фазовым сдвигом получено двумя способами: при изменении азимута входящего излучения поворотом поляризатора, а также с помощью поворота кварцевой пластинки $\lambda/4$ вокруг одной из кристаллофизических осей в плоскости ее входной грани. В общем случае при повороте фазовой пластинки на выходе из нее одновременно и непрерывно изменяются эллиптичность излучения и ориентация поляризационного эллипса (азимут выходящего излучения).

На рис. 5.4 приведены характеристики таких пластинок, рассчитанные по формулам:

$$\operatorname{tg} 2\chi = \operatorname{tg} 2\alpha \cdot \cos \delta; \quad (5.6)$$

$$\sin 2\gamma = \sin 2\alpha \cdot \sin \delta, \quad (5.7)$$

где χ – азимут излучения, вышедшего из пластинки; γ – эллиптичность излучения на выходе из пластинки; α – угол поворота пластинки относительно направления пропускания поляризатора; δ – фазовый сдвиг, вносимый пластинкой. Поляризационные эллипсы построены параметрическим способом [194].

Экспериментальные результаты, систематизированные в табл. 5.4, 5.5, соответствуют нумерации на графике (рис. 5.4).

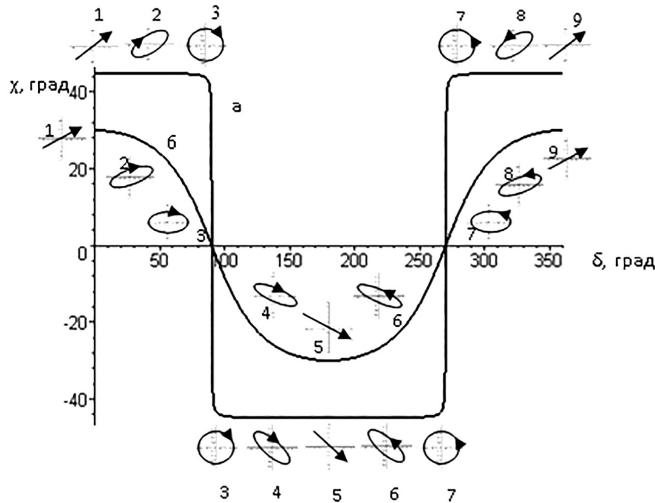


Рисунок 5.4 – Зависимость азимута выходящего излучения χ от величины вносимого фазового сдвига δ . Азимут входящего линейно поляризованного излучения α : кривая а – 45° ; кривая б – 30° . Схематично изображены эллипсы поляризации излучения на выходе из фазовой пластинки

В случае получения эллиптического излучения поворотом поляризатора вокруг оси пучка разность фаз, вносимая фазовой кристаллической пластинкой при нормальной ее ориентации, равна $\delta = \pi/2$, что соответствует оптической разности хода $\lambda/4$. При этом амплитуды векторов \mathbf{E} обыкновенного и необыкновенного лучей не равны друг другу. Ориентация осей эллипса поляризации выходящего излучения всегда совпадает с главными направлениями пластинки $\lambda/4$ при любом азимуте входящего излучения.

Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 и TeO_2 с эллиптически поляризованным излучением, полученным вышеописанным способом, приведены на рис. 5.5. Эксперимент показал, что для $\delta = \pi/2$ азимут падающего излучения и направление обхода вектором \mathbf{E} эллипса поляризации излучения влияют на вид коноскопических картин. При одинаковом азимуте эллипса поляризации, но противоположном направлении обхода (рис. 5.5 а, г) ось симметрии коноскопической картины поворачивается на $\sim 90^\circ$. При этом общий вид коноскопической картины сохраняется. Этот вывод можно сделать как для оптически неактивных кристаллов, так и для оптически активных кристаллов [230-233].

Таблица 5.4 – Влияние поляризации излучения на коноскопические картины кристаллов



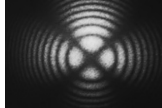
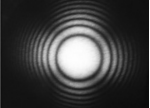


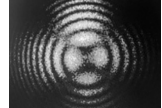
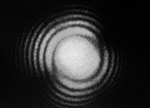



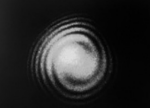
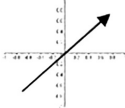

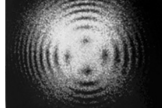


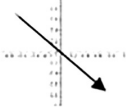



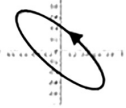
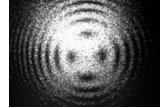
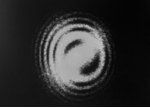


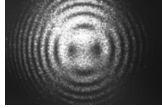
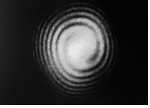



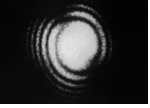

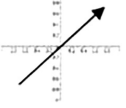

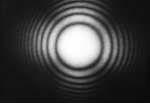


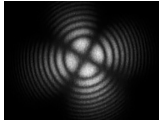
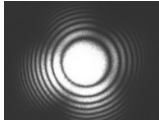

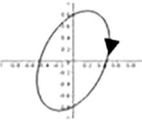
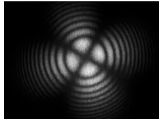
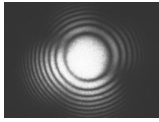

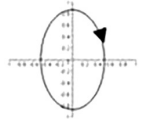

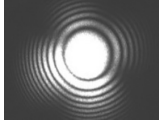


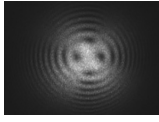
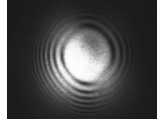
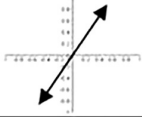

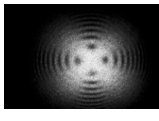
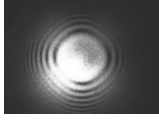


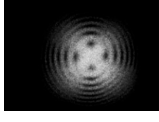



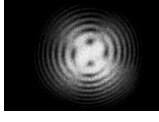
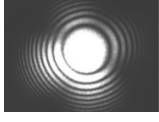
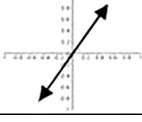

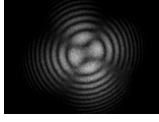
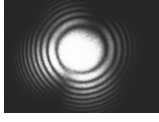
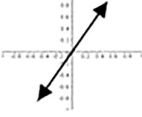


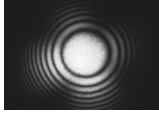
№	Поляризация входящего излучения $\alpha=45^\circ$	Разность фаз, вносимая фазовой пластинкой	Поляризация излучения на выходе из фазовой пластинки	Коноскопическая картина LiNbO_3	Коноскопическая картина TeO_2
1		$\delta = 0^\circ$			
2		$\delta = 45^\circ$			
3		$\delta = 90^\circ$			
4		$\delta = 135^\circ$			
5		$\delta = 180^\circ$			
6		$\delta = 225^\circ$			
7		$\delta = 270^\circ$			
8		$\delta = 315^\circ$			
9		$\delta = 360^\circ$			

Таблица 5.5 – Влияние поляризации излучения на коноскопические картины кристаллов (продолжение)

№	Поляризация входящего излучения $\alpha=60^\circ$	Разность фаз, вносимая фазовой пластинкой	Поляризация излучения на выходе из фазовой пластинки	Коноскопическая картина LiNbO_3	Коноскопическая картина TeO_2
1		$\delta = 0^\circ$			
2		$\delta = 45^\circ$			
3		$\delta = 90^\circ$			
4		$\delta = 135^\circ$			
5		$\delta = 180^\circ$			
6		$\delta = 225^\circ$			
7		$\delta = 270^\circ$			
8		$\delta = 315^\circ$			
9		$\delta = 360^\circ$			

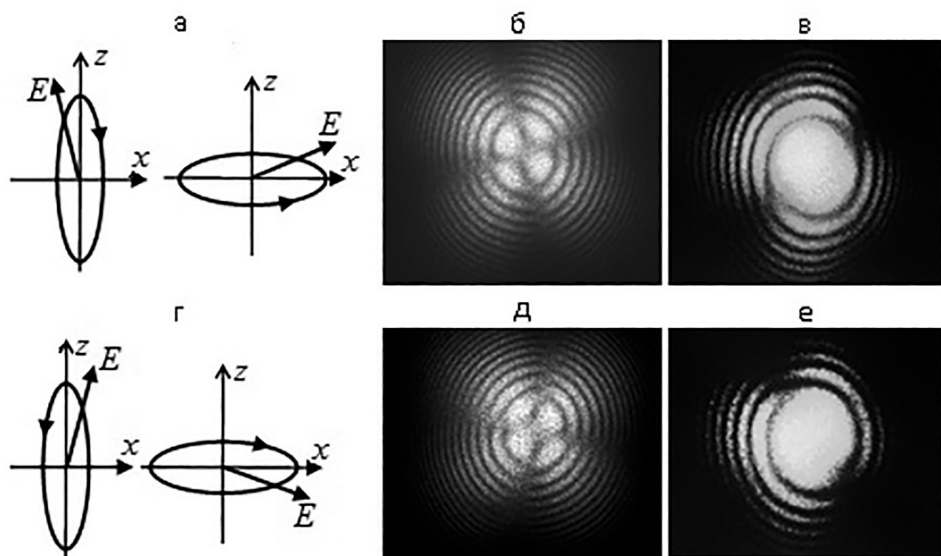


Рисунок 5.5 – Эллипсы поляризации излучения, полученного на выходе из пластинки $\lambda/4$ при повороте поляризатора (а, г):

E – направление электрического вектора излучения, входящего в пластинку $\lambda/4$; z – оптическая ось пластинки $\lambda/4$; б, д – коноскопические картины LiNbO_3 ; в, е – коноскопические картины TeO_2 , соответствующие эллипсам поляризации падающего излучения. Разность фаз $\delta = \pi/2$

Следует отметить, что при таком способе получения эллиптического излучения наблюдают коноскопические картины одного вида (рис. 5.5) как для отрицательных кристаллов, так и для положительных.

Во втором случае получения эллиптического излучения, чаще встречающегося в практических измерениях, азимут входящего в кристаллическую пластинку излучения остается постоянным и равным $\alpha = 45^\circ$ (диагональное положение пластинки), а величина δ изменяется. Такая ситуация возможна, если эллиптичность излучения изменяется, например, при повороте пластинки $\lambda/4$ вокруг вертикальной оси, параллельной одной из ее кристаллофизических осей в плоскости ее входной грани. Очевидно, что в этом случае эллипс поляризации входящего излучения будет непрерывно изменять свою форму и ориентацию.

Из уравнения (5.1) понятно, что при $\delta = 0$ и $\delta = \pi$ излучение сохранит линейную поляризацию, при этом во втором случае вектор E на выходе из пластинки повернется на 90° . При значениях $\delta = \pi/2$ и $\delta = 3\pi/2$ излучение приобретет циркулярную поляризацию с противоположными направлениями обхода. При значениях разности фаз $0 < \delta < \pi/2$ и $\pi/2 < \delta < \pi$, $\pi < \delta < 3\pi/2$ и $3\pi/2 < \delta < 2\pi$ излучение будет эллиптическим. При этом эллипс поляризации излучения для любых значений δ в указанных интервалах всегда ориентирован под углом 45° к главным направлениям кристаллической пластинки $\lambda/4$, но большая ось а эллипса расположена в противоположных квадрантах.

Проследим, как в этом случае ориентация эллипса поляризации излучения влияет на вид коноскопической картины кристалла (рис. 5.6). Су-

ственным отличием является то, что при эллиптическом излучении с разностью фаз $\delta \neq \pi/2$ появляются уже два характерных вида коноскопических картин с эллиптическим излучением [230–233].

Один вид коноскопической картины соответствует случаю, при котором азимуты входящего излучения и эллипса поляризации совпадают, и вектор \mathbf{E} входящего излучения, и большая ось эллипса поляризации находятся в одном квадранте, что происходит в интервале разности фаз $0 < \delta < \pi/2$ и $3\pi/2 < \delta < 2\pi$.

Второй вид картины соответствует случаю, при котором вектор \mathbf{E} входящего излучения и большая ось эллипса поляризации находятся в соседних квадрантах и составляют угол 90° , что происходит в интервале разности фаз $\pi/2 < \delta < \pi$ и $\pi < \delta < 3\pi/2$.

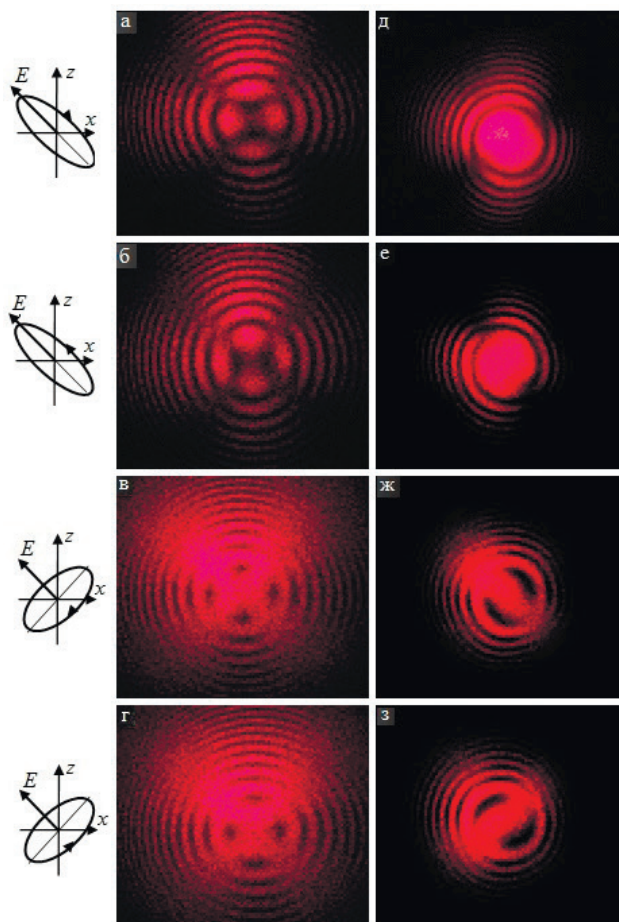


Рисунок 5.6 – Фотографии коноскопических картин ниобата лития LiNbO_3 (а, б, в, г) и оптически активного кристалла TeO_2 (д, е, ж, з) с эллиптическим излучением и соответствующие эллипсы поляризации излучения: z – оптическая ось кварцевой пластинки $\lambda/4$; \mathbf{E} – направление светового вектора на входе в пластинку $\lambda/4$

И в том и в другом случаях смена направления обхода вектора **Е** на противоположное при сохранении ориентации эллипса приводит к тому, что ось симметрии коноскопической картины поворачивается \sim на 90° .

Таким образом, азимут и направление обхода эллипса поляризации излучения влияют на вид коноскопических картин как оптически неактивных, так и оптически активных кристаллов с оптической осью, перпендикулярной входной грани.

Две разновидности коноскопических картин оптических кристаллов, как оптически активных, так и оптически неактивных с эллиптически поляризованным излучением, существенно отличаются друг от друга [230–233]. Различие коноскопических картин связано с различным интервалом изменения разности фаз эллиптического излучения, что, в свою очередь, приводит к совпадению или несовпадению азимута, входящего в пластинку $\lambda/4$ излучения, и азимута эллипса поляризации на выходе из нее. Установлено, что смена направления обхода вектора **Е** на противоположное при сохранении ориентации эллипса поляризации приводит к тому, что ось симметрии коноскопической картины поворачивается на $\sim 90^\circ$.

Для кристаллических пластинок с оптической осью, расположенной в плоскости входной грани, коноскопическая картина с линейно поляризованным излучением представляет собой две системы гипербол (рис. 5.7). С циркулярно и эллиптически поляризованным излучением в целом вид коноскопической картины сохраняется, при этом происходит некоторое изменение интенсивности гипербол и их смещение относительно центра поля зрения.

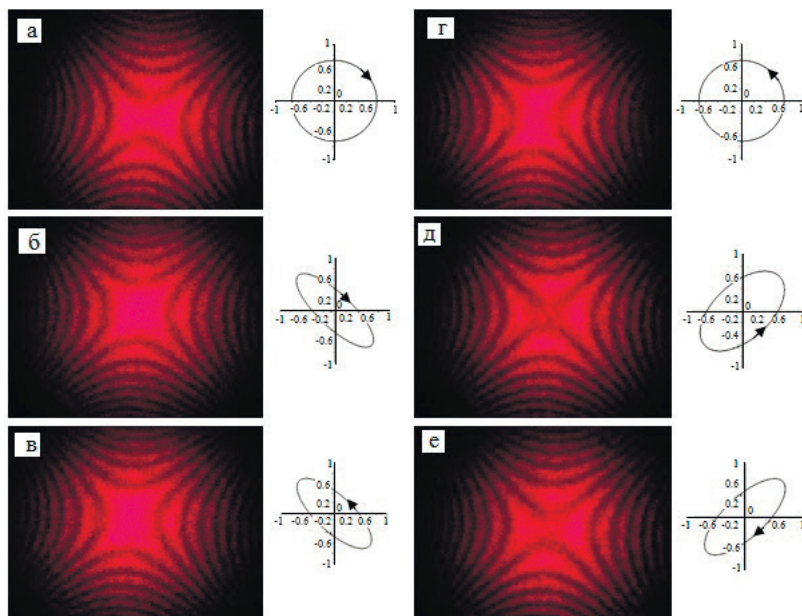


Рисунок 5.7 – Коноскопические картины KTiOPO_4 в срезе, параллельном оптической оси, и соответствующие эллипсы поляризации излучения. Эллиптичность излучения $\gamma = 0,99$ (а); $\gamma = 0,33$ (б); $\gamma = -0,37$ (в); $\gamma = -0,99$ (г); $\gamma = -0,55$ (д); $\gamma = 0,39$ (е)

5.5 Сравнительный анализ поляризационных свойств фазовой пластинки $\lambda/4$ при повороте ее вокруг нормали к входной грани и повороте поляризатора

Традиционным поворотом пластинки $\lambda/4$ или поляризатора вокруг оси, нормальной к поверхности пластинки, можно получить все формы эллиптической поляризации, включая и предельные – линейную и эллиптическую [107]. При этом направления главных осей эллипсов колебаний остаются параллельными главным осям пластинки $\lambda/4$ (рис. 3.8, 3.9). При постоянном фазовом сдвиге $\delta = (2k+1)\pi/2$ изменение форм поляризации излучения происходит только за счет изменения амплитуд колебаний векторов \mathbf{E} обыкновенного и необыкновенного лучей, что приводит к получению после фазовой пластинки линейно поляризованного излучения с направлением вектора \mathbf{E} под углом 90° к оси пропускания анализатора и излучения с правой и левой циркулярными и эллиптическими поляризациями с различной ориентацией только в плоскости входной грани большой оси эллипса по отношению к первоначальному направлению быстрой оси пластинки.

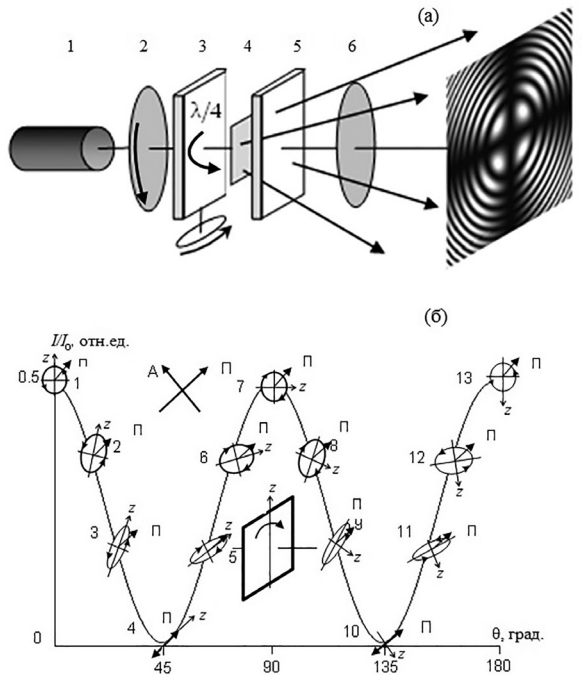


Рисунок 5.8 – Схематичное изображение установки (а) и форм (б) поляризации излучения на выходе из кварцевой пластинки $\lambda/4$ при повороте ее вокруг нормали к плоскости входной грани через 15° :

z – оптическая ось пластинки; Π и A – оси пропускания поляризатора и анализатора. Поляризатор и анализатор скрещены. Угол θ , град: 1 – 0; 2 – 15; 3 – 30; 4 – 45; 5 – 60; 6 – 75; 7 – 90; 8 – 105; 9 – 120; 10 – 135; 11 – 150; 12 – 165; 13 – 180

При нормальном падении узкого параллельного пучка лучей на фазовую пластинку $\lambda/4$ с ориентацией вектора \mathbf{E} излучения под углом 45° к главным направлениям пластинки на выходе из нее всегда получается циркулярно поляризованное излучение, характеризующееся фазовым сдвигом $\delta = \pi/2$ (разностью хода $\lambda/4$) между обыкновенным и необыкновенным лучами.

На графике изменения интенсивности излучения (длина волны $\lambda = 632,8$ нм), прошедшего через поляризатор – кварцевую пластинку $\lambda/4$ – анализатор, схематично изображены формы поляризации излучения, вышедшего из пластинки $\lambda/4$, при повороте пластинки вокруг нормали к поверхности пластинки (рис. 5.8) и при повороте поляризатора (рис. 5.9). Угол θ – угол поворота пластинки от ее первоначального положения. При первоначальном положении пластинки угол между одним из главных ее направлений и осью пропускания поляризатора составляет 45° .

На рис. 5.8 фазовый сдвиг, вносимый вращающейся пластинкой, составляет величину $\delta=90^\circ$, одинаковую для всех углов поворота θ . Эллиптичность выходящего излучения e : 1 – (-1); 2 – (-0,58); 3 – (-0,27); 4 – 0; 5 – 0,27; 6 – 0,58; 7 – 1; 8 – 0,58; 9 – 0,27; 10 – 0; 11 – (-0,27); 12 – (-0,58); 13 – (-1). Азимут большой оси эллипса поляризации выходящего излучения $\alpha_{\text{вс}}$, град: 1 – не определен; 2 – 75; 3 – 60; 4 – 45; 5 – 30; 6 – 15; 7 – не определен; 8 – (-15); 9 – (-30); 10 – (-45); 11 – (-60); 12 – (-75); 13 – не определен (рис. 5.8).

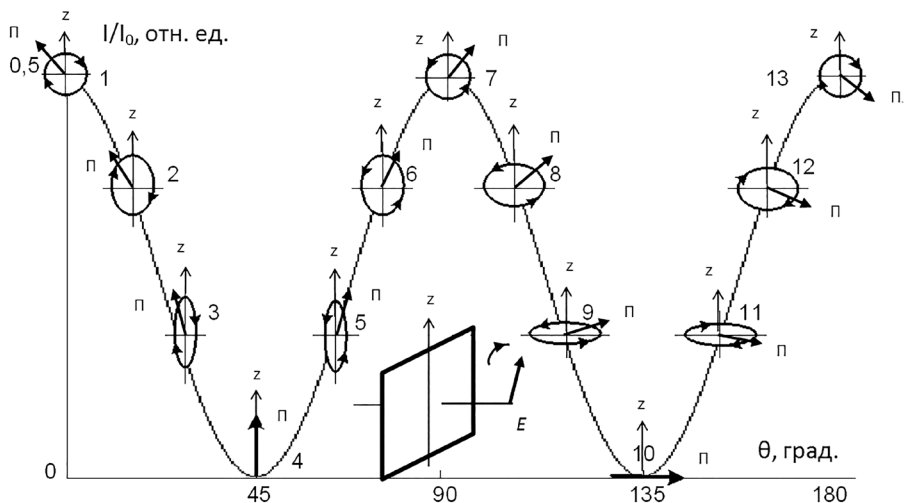


Рисунок 5.9 – Схематичное изображение состояния поляризации излучения ($\lambda = 632,8$ нм) на выходе из кварцевой пластинки $\lambda/4$ при повороте поляризатора через 15° :

z – оптическая ось пластинки; π – ось пропускания поляризатора. Поляризатор и анализатор скрещены. Угол θ , град: 1 – 0; 2 – 15; 3 – 30; 4 – 45; 5 – 60; 6 – 75; 7 – 90; 8 – 105; 9 – 120; 10 – 135; 11 – 150; 12 – 165; 13 – 180

На рис. 5.9 фазовый сдвиг равен $\delta = 90^\circ$ для всех углов θ (пластинка $\lambda/4$ остается неподвижной). Эллиптичность излучения на выходе из пластинки e : 1 – 1; 2 – 0,58; 3 – 0,27; 4 – 0; 5 – (-0,27); 6 – (-0,58); 7 – (-1); 8 – (-0,58); 9

– (–0,27); 10 – 0; 11 – 0,27; 12 – 0,58; 13 – 1. Азимут большой оси эллипса поляризации выходящего излучения $\alpha_{\text{вс}}$, град: 1 – не определен; 2, 3, 4, 5, 6 – 90; 7 – не определен; 8, 9, 10, 11, 12 – 0; 13 – не определен (рис. 5.9).

При освещении кристаллической пластинки излучением с поляризацией, полученной при вращении кварцевой фазовой пластинки или поляризатора, на экране наблюдают коноскопические картины (рис. 5.10–5.13) [203].

Следует отметить, что коноскопическая картина с эллиптически поляризованным излучением, например, точки 3 и 9 на рис. 5.11, повернута на угол около 90° при одинаковом азимуте большой оси эллипса поляризации излучения, но противоположном направлении обхода.

При одинаковом направлении обхода и азимуте, отличающемся в пределах $15\text{--}45^\circ$, коноскопические картины практически не отличаются (например, точки 6 и 9 на рис. 5.10, 5.11). При отличии азимута большой оси эллипса поляризации на 90° (например, точки 6 и 12 на рис. 5.11) коноскопические картины заметно развернуты друг относительно друга. В точках 4 и 10 на рис. 5.11 и 5.13 коноскопическая картина с линейным излучением содержит черный «мальтийский крест».

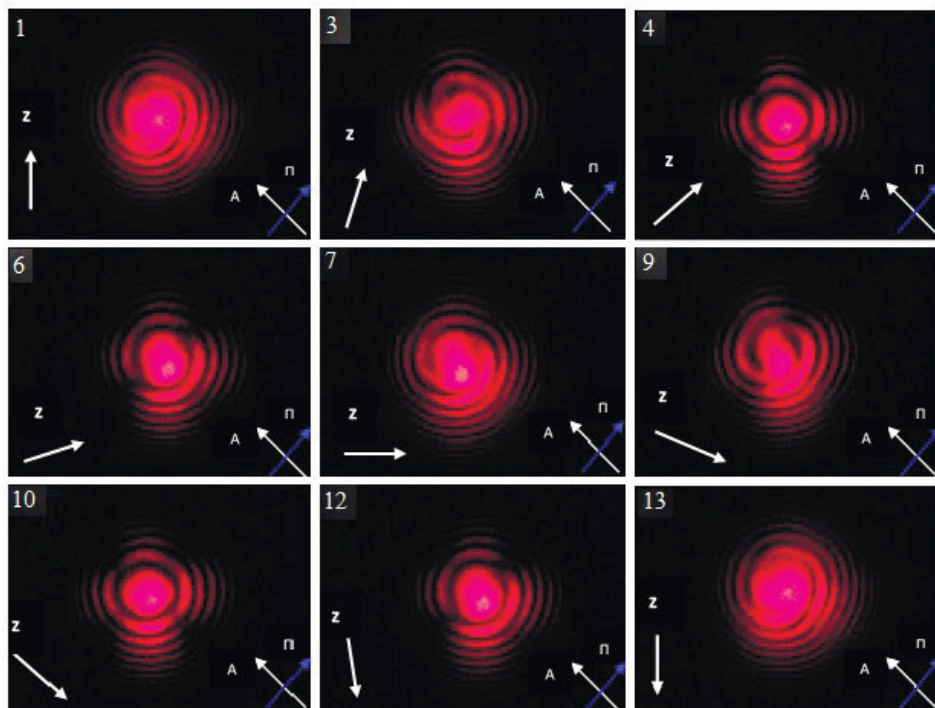


Рисунок 5.10 – Серия коноскопических картин оптически активного кристалла парателлурита (TeO_2) при повороте кварцевой фазовой пластинки $\lambda/4$ через 15° вокруг нормали к входной грани. Фотографии 1, 13 – левоциркулярное излучение; 7 – правозиркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.8

Для коноскопических картин оптически неактивных кристаллов с циркулярно поляризованным излучением характерно наличие двух черных точек, расположенных на линии, параллельной оптической оси фазовой пластинки $\lambda/4$, при различных оптических знаках $\lambda/4$ и кристалла (фотографии 1, 7, 13 на рис. 5.11 и 5.13). При повороте пластинки $\lambda/4$ вокруг нормали к входной грани, а следовательно, и повороте ее оптической оси, коноскопические картины с циркулярным излучением при разном направлении обхода отличаются. В случаях 1 и 13 на рис. 5.11 оптическая ось пластинки $\lambda/4$ занимает вертикальное положение и, соответственно, две точки при этом расположены на одной вертикальной прямой.

В случае 7 на рис. 5.11 оптическая ось пластинки $\lambda/4$ занимает горизонтальное положение и две черные точки на коноскопической картине также расположены на горизонтальной прямой.

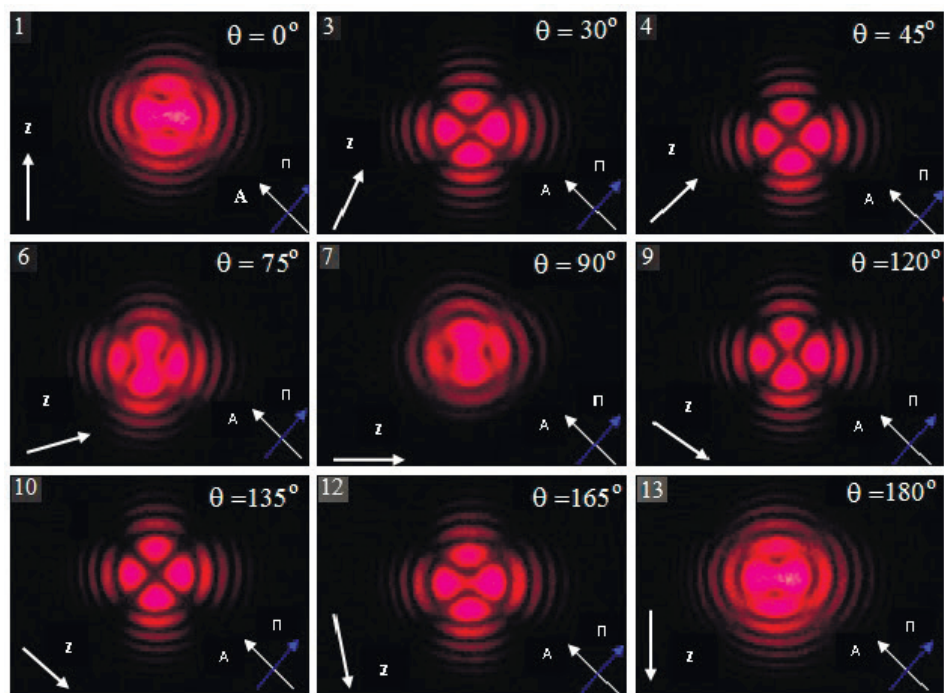


Рисунок 5.11 – Серия коноскопических картин кристалла DKDP (KD_2PO_4) при повороте кварцевой фазовой пластинки через 15° вокруг нормали к входной грани:

1, 13 – левациркулярное излучение; 7 – правациркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера соответствуют номерам на графике рис. 5.8

При неподвижной пластинке $\lambda/4$ (повороте поляризатора) коноскопические картины с циркулярным излучением при разном направлении обхода одинаковы, две точки при этом расположены на одной вертикальной пря-

мой, параллельной оптической оси фазовой пластинки (фотографии 1, 7, 13 на рис. 5.12).

Для коноскопических картин оптически активных кристаллов с эллиптически поляризованным излучением (точки 3, 6, 9, 12 на рис. 5.10, 5.12) характерно отсутствие «мальтийского креста», разрыв центрального кольца-изохромы и нестыковка последующих изохром. Общий вид картины принципиально не изменяется при изменении направления обхода и азимута большой оси эллипсов поляризации. Несколько изменяется наклон оси симметрии коноскопической картины.

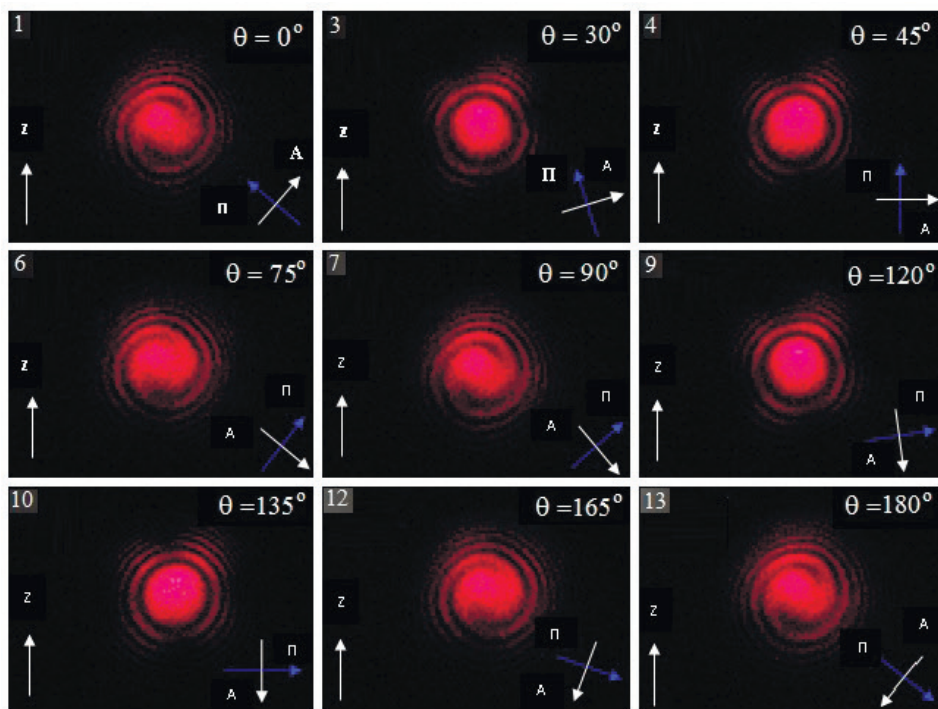


Рисунок 5.12 – Серия коноскопических картин оптически активного кристалла парателлурита (TeO_2) при повороте поляризатора (поляризатор и анализатор скрещены). Фотографии 1, 13 – правоциркулярное излучение; 7 – левоциркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.9

Для коноскопических картин оптически активных кристаллов с циркулярно поляризованным излучением характерно наличие двух спиралей, вложенных друг в друга (фотографии 1, 7, 13 на рис. 5.10 и 5.12). При повороте фазовой пластинки спирали на фотографии 7 ориентированы под 90° по отношению к фотографиям 1 и 13 на рис. 5.10. При неподвижной фазовой пластинке спирали расположены одинаково при разном направлении обхода (фотографии 1, 7, 13 на рис. 5.12). Коноскопические картины в точ-

ках 4 и 10 рис. 5.12 оптически активных кристаллов соответствуют линейно поляризованному излучению при скрещенных поляризаторе и анализаторе (при повороте анализатора до скрещенного с поляризатором положения на рис. 5.9).

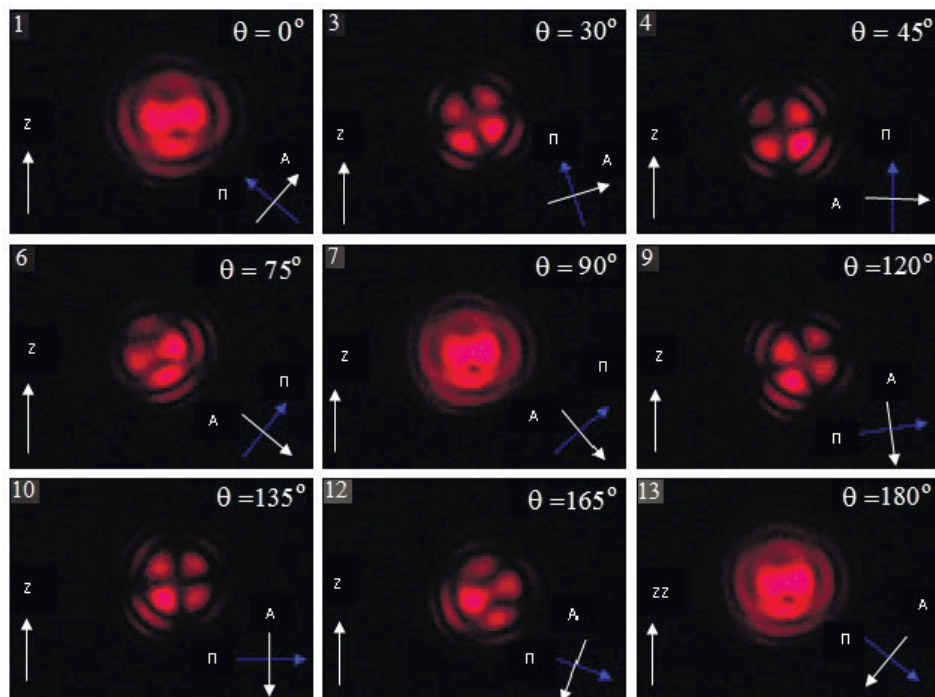


Рисунок 5.13 – Серия коноскопических картин оптически неактивного кристалла DKDP (KD_2PO_4) при повороте поляризатора. Поляризатор и анализатор скрещены: 1, 13 – правоциркулярное излучение; 7 – левоциркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.9

Таким образом, при повороте фазовой пластинки вокруг оси оптической системы в интервале $0-180^\circ$ наблюдают линейно поляризованное излучение с направлением вектора \mathbf{E} под углом 90° к оси пропускания анализатора, циркулярно и эллиптически поляризованные излучения с правым и левым направлениями вращения с различными ориентациями в плоскости входной грани осей эллипсов поляризации по отношению к первоначальной ориентации быстрой оси пластинки.

Достоинством устройства для преобразования форм поляризации излучения является возможность получения значительного диапазона эллиптической поляризации излучения при фазовом сдвиге $\delta = (2k + 1)\pi/2$ с ориентацией эллипсов поляризации в плоскости входной грани пластинки.

Однако возможность преобразования форм поляризации излучения ограничена величиной фазового сдвига $\delta = (2k + 1)\pi/2$, не позволяющего

получать поляризацию излучения при других значениях δ , что является недостатком известного устройства. Это обусловлено заданной толщиной пластинки, определяющей величину фазового сдвига δ , которая остается постоянной при любом повороте пластинки.

Из сравнения двух известных способов изменения форм поляризации излучения – с помощью поворота фазовой пластинки $\lambda/4$ вокруг нормали к входной грани и с помощью поворота поляризатора – следует, что при одинаковом фазовом сдвиге $\pi/2$ вращение пластинки дает возможность получить больший диапазон форм поляризации излучения за счет различного азимута большой оси эллипса поляризации излучения.

Эллиптическое излучение, получаемое на выходе из пластинки $\lambda/4$ при ее традиционном повороте, дает возможность наблюдать только один вид коноскопической картины при различных оптических знаках $\lambda/4$ и кристаллической пластинки, что в одинаковой мере относится к коноскопическим картинам как оптически активных, так и оптически неактивных кристаллов.

5.6 Преобразование поляризации излучения нетрадиционным поворотом фазовой пластинки $\lambda/4$

Поворот фазовой пластинки вокруг оси, параллельной ее входной грани (совпадающей с одной из ее кристаллофизических осей), приводит к изменению поляризации излучения на выходе из нее [161, 183]. Благодаря повороту фазовой кристаллической пластинки вокруг оси, параллельной ее входной грани, например вертикальной оси (кристаллофизической или оптической), увеличивается длина оптического пути, пройденного излучением, что приводит к изменению величины фазового сдвига δ при постоянной толщине пластинки d . Это позволяет получить на выходе из фазовой пластинки все формы поляризации излучения, о которых судят по интенсивности излучения. При этом для исследования интенсивности прошедшего через систему излучения используют систему скрещенных поляризатора и анализатора, оси пропускания которых расположены взаимно перпендикулярно, и фотоприемник. Ориентация фазовой пластинки изображена на рис. 5.14 а.

Точность отсчета углов при повороте пластинки на гониометре равна 5 угловым секундам. Расходимость лазерного излучения, используемого в эксперименте, составляет 3,5 угловых минут. Первоначально в расчетах толщина используемой фазовой пластинки, изготовленной в заводских условиях, в направлении нормали предполагалась равной 3,3038 мм, что соответствует величине фазового сдвига $\delta = \pi/2$, эквивалентного разности хода $(m+1)\lambda/4$ ($\lambda = 632,8$ нм). При проведении эксперимента обнаружено, что толщина пластинки в направлении нормали отличается от расчетной и наиболее близка к 3,3004 мм. На рис. 5.15 представлен график зависимости интенсивности излучения, прошедшего через оптическую систему с анализатором, от угла поворота фазовой пластинки. На графике видно, что значение интенсивности прошедшего излучения при 0° отличается от значения $I = 0.5I_{\max}$, характерного для пластинки $\lambda/4$.

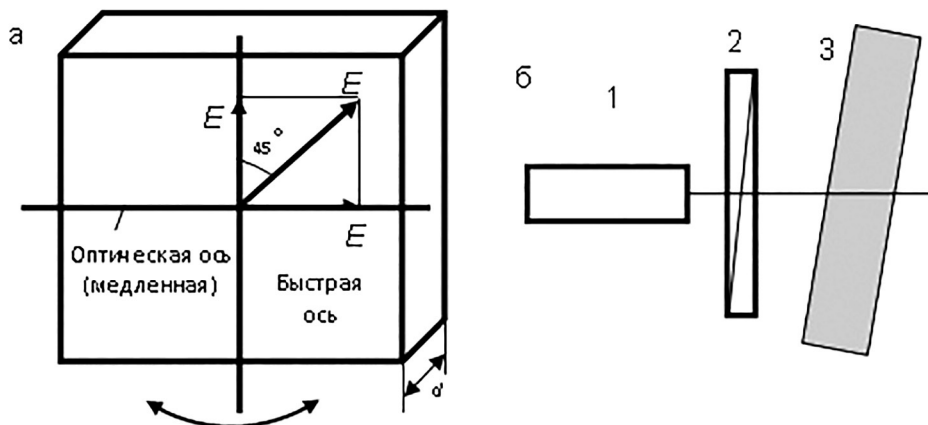


Рисунок 5.14 – Возможная ориентация фазовой пластинки (а) и схема устройства для преобразования форм поляризации излучения (б) (вид сверху):
 1 – He-Ne-лазер; 2 – поляризатор; 3 – фазовая пластинка $\lambda/4$

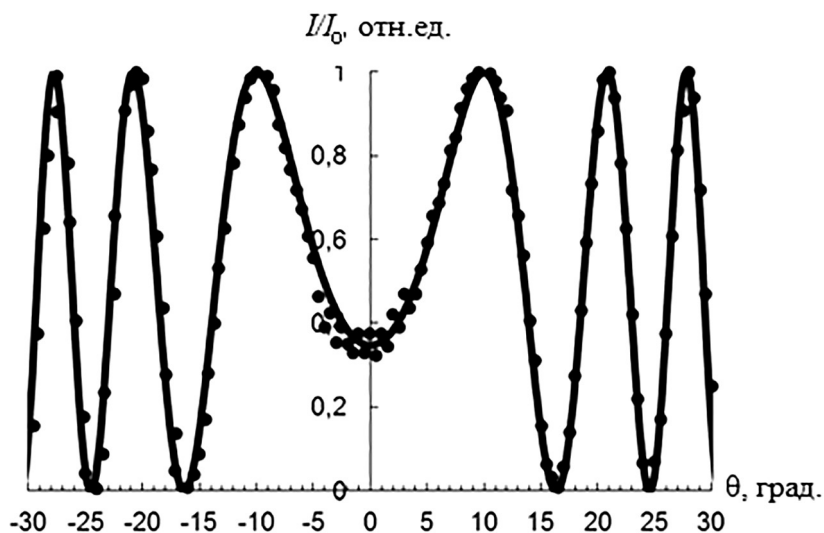


Рисунок 5.15 – Угловая зависимость интенсивности излучения, прошедшего через систему «поляризатор – фазовая пластинка – анализатор», от угла поворота фазовой пластинки вокруг вертикальной оптической оси. Сплошная линия – теоретические значения, точки – экспериментальные данные

Угловая зависимость интенсивности прошедшего излучения от угла поворота фазовой пластинки (рис. 5.15) представляет собой периодически осциллирующую кривую в интервале от 0 до $\pm 30^\circ$. На интервале от 0 до $\pm 18,7^\circ$ получены все формы поляризации излучения после фазовой пластинки. После угла поворота $18,7^\circ$ процесс преобразования форм поляризации излучения повторяется.

На угловом интервале $0 \pm 4^\circ$ экспериментальной кривой наблюдаются (при повороте пластинки) осцилляции интенсивности проходящего через пластинку излучения, что связано с проявлением многолучевой интерференции.

Данная зависимость при градуировке пластинки позволяет определить характерные угловые точки, соответствующие разной эллиптичности излучения (рис. 5.16 а, б) и составить своеобразный паспорт пластинки. Зависимость азимута выходящего излучения от величины фазового сдвига приведена на рис. 5.17. Градуировка осуществлялась при постепенном повороте фазовой пластинки вокруг вертикальной оси. При этом определялась с помощью анализатора и фоторегистрирующей системы форма поляризации излучения в пучке после фазовой пластинки. Необходимо отметить, что в эксперименте не учитывались факторы, являющиеся незначительными: разные коэффициенты отражения для s - и p -компонент; не учитывалось, что при повороте пластинки вокруг вертикальной оси проекции вектора \mathbf{E} излучения на главные направления пластинки не равны друг другу. При разработке прецизионной системы изменения поляризации излучения эти факторы следует учитывать.

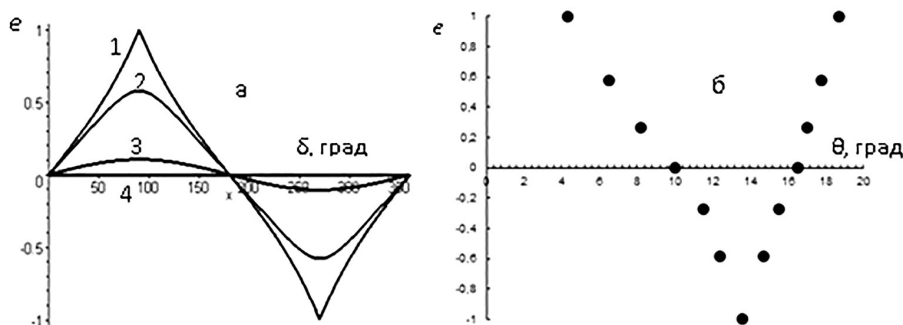


Рисунок 5.16 – Теоретическая зависимость эллиптичности излучения, прошедшего через систему «поляризатор – кристаллическая пластинка», от величины фазового сдвига δ (а). Азимут излучения, входящего в пластинку: 1 – 45° ; 2 – 30° , 60° ; 3 – 15° , 75° ; 4 – 0° , 90° . Экспериментальная зависимость эллиптичности излучения, прошедшего через систему «поляризатор – фазовая пластинка», от угла поворота пластинки θ вокруг вертикальной оптической оси (б)

При углах поворота $4,3^\circ$, $13,6^\circ$, $18,7^\circ$ на выходе из пластинки возникает циркулярно поляризованное излучение. При угле поворота $\theta = 4,3^\circ$ фазовый сдвиг $\delta = \pi/2$, конец вектора \mathbf{E} движется по часовой стрелке при наблюдении навстречу лучу (правая циркулярная поляризация). При угле поворота $\theta = 13,6^\circ$ фазовый сдвиг δ между обыкновенным и необыкновенным лучами увеличивается до значения $\delta = 3\pi/2$ и на выходе из пластинки возникает излучение с левой циркулярной поляризацией. При угле поворота пластинки $\theta = 18,7^\circ$ фазовый сдвиг δ достигает значения $\delta = 5\pi/2$ и излучение на выходе из нее снова приобретает правую циркулярную поляризацию. При повороте

фазовой пластинки на угол $\theta = 10^\circ$ величина фазового сдвига достигает значения π и на выходе из пластинки возникает линейно поляризованное излучение с направлением вектора \mathbf{E} под углом 90° к направлению вектора \mathbf{E} входящего излучения. При повороте фазовой пластинки на угол $\theta = 16,5^\circ$ величина фазового сдвига достигает значения 2π и на выходе из пластинки возникает линейно поляризованное излучение с сохранением первоначального направления вектора \mathbf{E} . Для углов поворота пластинки в интервалах $4,3^\circ < \theta < 10^\circ$; $10^\circ < \theta < 13,6^\circ$; $13,6^\circ < \theta < 16,5^\circ$; $16,5^\circ < \theta < 18,7^\circ$ на выходе из пластинки возникает эллиптически поляризованное излучение. Эллипсы поляризации имеют различную эллиптичность, правое и левое направление вращения вектора \mathbf{E} и ориентированы под различными углами относительно горизонтальной оси пластинки.

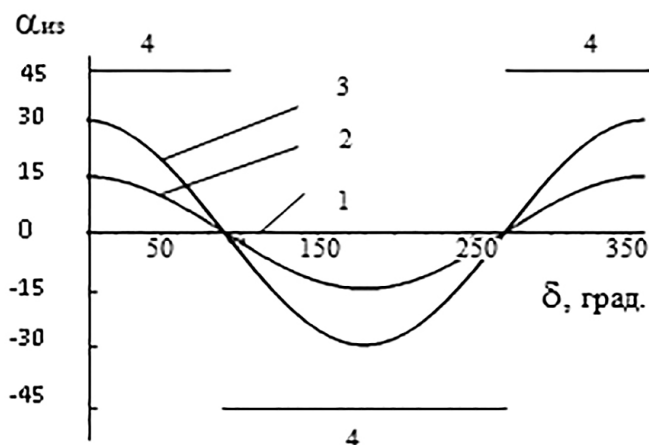


Рисунок 5.17 – Зависимость азимута эллиптического излучения на выходе из системы «поляризатор – кристаллическая пластинка» от величины фазового сдвига δ . Азимут излучения, входящего в пластинку: 1 – 0° ; 2 – 15° ; 3 – 30° ; 4 – 45°

На графике изменения интенсивности излучения, прошедшего через поляризатор – пластинку $\lambda/4$ – анализатор, схематично изображены формы поляризации прошедшего излучения при повороте пластинки вокруг оптической оси (ось z), расположенной вертикально (рис. 5.18), и при повороте вокруг вертикальной кристаллофизической оси (оси x или y) (рис. 5.19). Фазовый сдвиг δ определен по выражению [160, 191]:

$$\delta = 2 \arctg \sqrt{I_{\perp} / I_{\parallel}}, \quad (5.8)$$

где I_{\perp} и I_{\parallel} – интенсивности излучения, прошедшего через поляризатор – фазовую пластинку – анализатор, при скрещенных и параллельных поляризаторе и анализаторе.

В общем случае изменением угла поворота фазовой пластинки можно увеличивать длину оптического пути, определяющую фазовый сдвиг δ , и в итоге при разных значениях фазового сдвига δ на выходе из фазовой пластинки получить все формы поляризации излучения, оси эллипсов которых лежат в различных плоскостях, не совпадающих с плоскостью входной грани пластинки.

На рис. 5.18 фазовый сдвиг δ , вносимый пластинкой при ее повороте, град: 1 – 90; 2 – 120; 3 – 150; 4 – 180; 5 – 210; 6 – 240; 7 – 270; 8 – 300; 9 – 330; 10 – 360; 11 – 390; 12 – 420; 13 – 450. Эллиптичность выходящего излучения, e : 1 – 1; 2 – 0,58; 3 – 0,27; 4 – 0; 5 – (-0,27); 6 – (-0,58); 7 – (-1); 8 – (-0,58); 9 – (-0,27); 10 – 0; 11 – 0,27; 12 – 0,58; 13 – 1. Азимут большой оси эллипса поляризации выходящего излучения $\alpha_{из}$, град: 1 – не определен; 2, 3, 4, 5, 6 – 45; 7 – не определен; 8, 9, 10, 11, 12 – (-45); 13 – не определен (рис. 5.18).

На рис. 5.19 фазовый сдвиг δ , град: 1 – 90; 2 – 120; 3 – 150; 4 – 180; 5 – 210; 6 – 240; 7 – 270; 8 – 300; 9 – 330; 10 – 360; 11 – 390; 12 – 420; 13 – 450.

Эллиптичность e : 1 – (-1); 2 – (-0,58); 3 – (-0,27); 4 – 0; 5 – 0,27; 6 – 0,58; 7 – 1; 8 – 0,58; 9 – 0,27; 10 – 0; 11 – (-0,27); 12 – (-0,58); 13 – (-1). Азимут большой оси эллипса поляризации выходящего излучения $\alpha_{\delta c}$, град: 1 – не определен; 2, 3, 4, 5, 6 – (-45); 7 – не определен; 8, 9, 10, 11, 12 – 45; 13 – не определен (рис. 5.19).

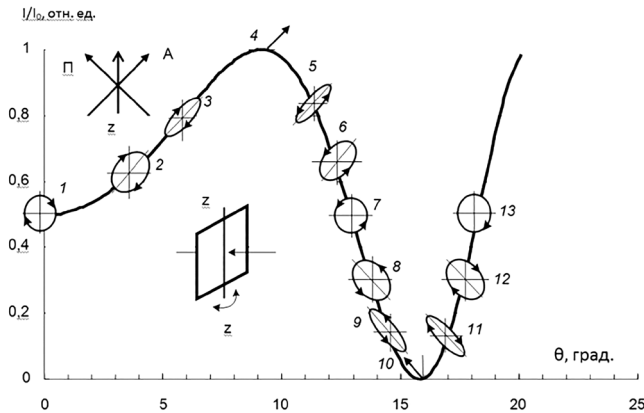


Рисунок 5.18 — Схематичное изображение состояния поляризации излучения ($\lambda = 632,8$ нм) на выходе из фазовой пластинки $\lambda/4$ при ее повороте вокруг вертикальной оптической оси:

z – оптическая ось; Π и A – оси пропускания поляризатора и анализатора. Угол θ , град: 1 – 4,3; 2 – 6,5; 3 – 8,2; 4 – 10; 5 – 11,5; 6 – 12,4; 7 – 13,6; 8 – 14,7; 9 – 15,5; 10 – 16,5; 11 – 17; 12 – 17,8; 13 – 18,7

Коноскопические картины, полученные при освещении кристаллической пластинки излучением с различным состоянием поляризации, приведены на рис. 5.20-5.23.

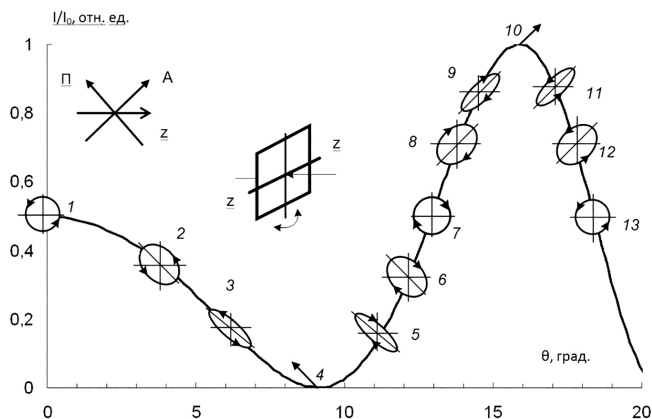


Рисунок 5.19 – Схематичное изображение состояния поляризации излучения ($\lambda=632,8$ нм) на выходе из фазовой пластинки $\lambda/4$ при ее повороте вокруг вертикальной кристаллофизической оси: z – оптическая ось; P и A – оси пропускания поляризатора и анализатора. Угол θ , град: 1 – 4,3; 2 – 6,5; 3 – 8,2; 4 – 10; 5 – 11,5; 6 – 12,4; 7 – 13,6; 8 – 14,7; 9 – 15,5; 10 – 16,5; 11 – 17; 12 – 17,8; 13 – 18,7

При анализе соответствующих серий коноскопических картин оптически неактивных кристаллов на рис. 5.21, 5.23 следует отметить, что появился новый по сравнению с рис. 5.11 и 5.13 вид коноскопических картин с эллиптически поляризованным излучением (фотографии 3, 6 на рис. 5.21 и фотографии 9, 12 на рис. 5.23). Кроме того, на фотографии 4 (рис. 5.21) и фотографии 10 (рис. 5.23) зарегистрирована коноскопическая картина с линейным излучением, вектор E которого параллелен оси пропускания анализатора. Такой картины на рис. 5.11 и 5.13 не наблюдалось. На фотографиях 1 (рис. 5.21, 5.23) (при неподвижной пластинке $\lambda/4$ и $\Delta = \pi/2$) коноскопические картины с циркулярно поляризованным излучением также содержат две черные точки, расположенные вдоль оптической оси пластинки $\lambda/4$. При величине фазового сдвига, отличном от $\pi/2$, положение черных точек уже не соответствует положению оптической оси пластинки.

Для оптически активных кристаллов с эллиптически поляризованным излучением наблюдаются коноскопические картины (фотографии 3, 6 на рис. 5.20 и фотографии 9, 12 на рис. 5.22), отсутствующие на рис. 5.11 и 5.13. Фотография 4 на рис. 5.20 и фотография 10 на рис. 5.23 регистрируют коноскопические картины с линейным излучением с вектором E , параллельным оси пропускания анализатора. Такие коноскопические картины также отсутствуют на рис. 5.10 и 5.12.

Для коноскопических картин оптически активных кристаллов с циркулярно поляризованным излучением также характерно наличие двух спиралей, вложенных друг в друга (фотографии 1, 7, 13 на рис. 5.20 и 5.22).

Таким образом, использование поворота плоскопараллельной кристаллофизической пластинки вокруг вертикальной оси, совпадающей с одной из кристаллофизических осей, расширяет экспериментальные возможности

по сравнению с поворотом фазовой пластинки или поляризатора вокруг оси, совпадающей с осью лазерного пучка.

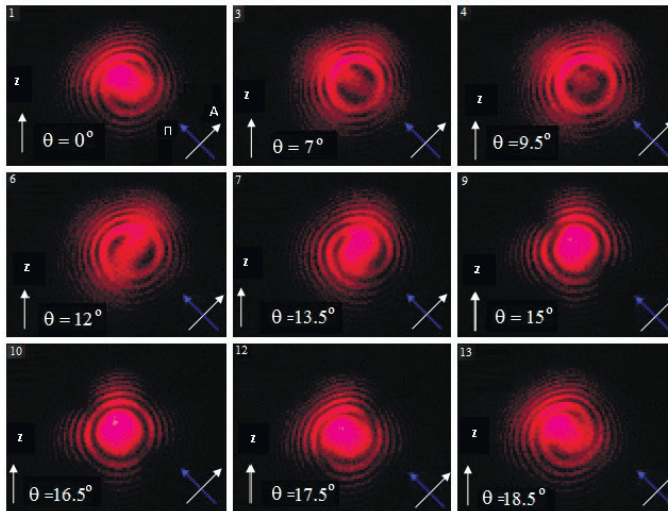


Рисунок 5.20 – Серия коноскопических картин оптически активного кристалла парателлуриита (TeO_2) при изменении поляризации излучения с помощью поворота фазовой пластинки вокруг вертикальной оптической оси: 1, 13 – правоциркулярное излучение; 7 – левоциркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.18

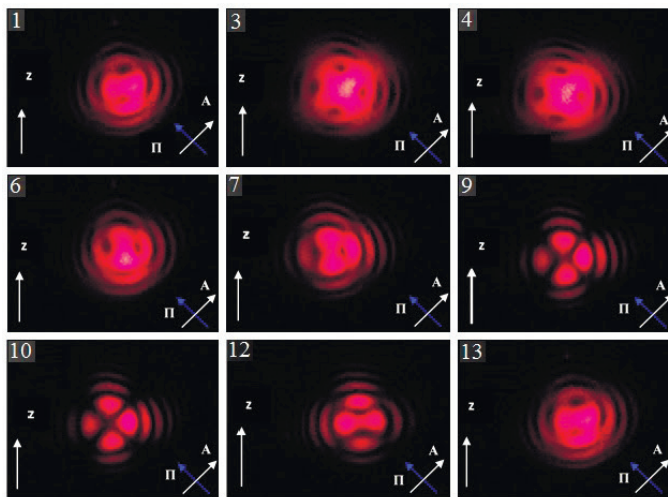


Рисунок 5.21 – Серия коноскопических картин оптически неактивного кристалла DKDP (KD_2PO_4) при изменении поляризации излучения с помощью поворота фазовой пластинки вокруг вертикальной оптической оси:

1, 13 – правоциркулярное излучение; 7 – левоциркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.18

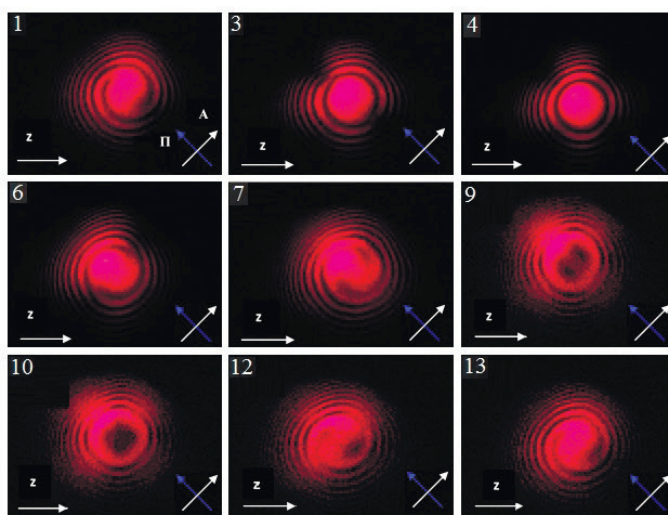


Рисунок 5.22 – Серия коноскопических картин оптически активного кристалла парателлурита (TeO_2) при изменении поляризации излучения с помощью поворота фазовой пластинки вокруг вертикальной кристаллофизической оси:

1, 13 – левоциркулярное излучение; 7 – правоциркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.19

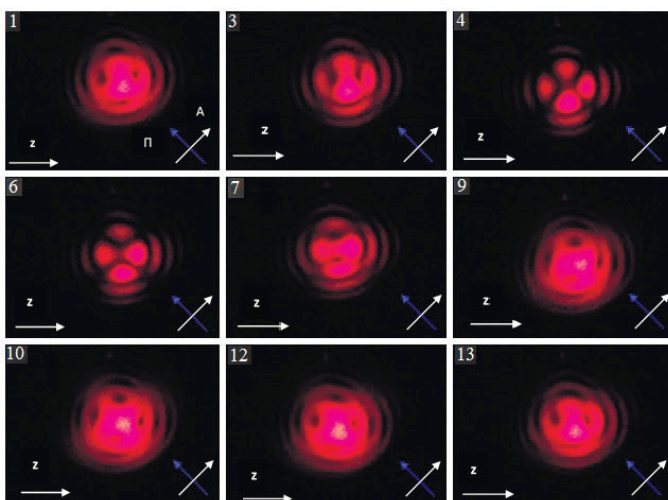


Рисунок 5.23 – Серия коноскопических картин оптически неактивного кристалла DKDP (KD_2PO_4) при изменении поляризации излучения с помощью поворота фазовой пластинки вокруг вертикальной кристаллофизической оси:

1, 13 – левоциркулярное излучение; 7 – правоциркулярное излучение; 4, 10 – линейное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.19

5.7 Определение расположения оптической оси в плоскости входной грани фазовой пластинки $\lambda/4$

Знание расположения оптической оси фазовой пластинки является важным при настройке и работе оптических систем, так как именно относительно оптических осей ориентируются элементы, используемые в системах модуляции излучения, поляризационно-оптических методах исследования напряжений для преобразования, анализа и контроля состояния поляризации излучения [160, 171, 191, 192].

Использование компенсатора с известным расположением оптической оси, вводимого в параллельный пучок лучей после исследуемой кристаллической пластинки, позволяет определить расположение быстрой и медленной осей фазовой пластинки [160, 171, 191, 192], однако существует определенная трудность или даже невозможность подбора фазовых компенсаторов с известными оптическими параметрами, идентичными параметрам исследуемой пластинки. Кроме того, определение требует значительных временных затрат, что обусловлено несколькими этапами определения положения оптической оси в плоскости входной грани фазовой анизотропной кристаллической пластинки $\lambda/4$.

Результаты эксперимента показали, что для определения расположения оптической оси в плоскости входной грани фазовой пластинки $\lambda/4$ можно использовать не только параллельный, но и расходящийся пучок излучения, получая и анализируя коноскопическую картину кристаллической пластинки любой толщины с известным оптическим знаком (компенсатора), размещенной после исследуемой пластинки $\lambda/4$ [163, 234] (в эксперименте в качестве компенсатора использована кристаллическая пластинка LiNbO_3 с входной гранью, перпендикулярной оптической оси, толщиной 10 мм; в качестве исследуемой пластинки – кварцевая фазовая пластинка $\lambda/4$). В оптическую систему (рис. 5.24) после поляризатора вводят пластинку $\lambda/4$ и, вращая ее вокруг оси пучка, наблюдают за изменением коноскопической картины кристаллической пластинки 5. Поляризатор и анализатор скрещены.

При совпадении в процессе вращения оптической оси исследуемой пластинки $\lambda/4$ с осью пропускания поляризатора излучение после $\lambda/4$ станет линейно поляризованным. Коноскопическая картина компенсатора (LiNbO_3) на экране приобретет традиционный вид концентрических колец-изохром, пересеченных в центре картины черным «мальтийским крестом». При дальнейшем вращении $\lambda/4$ излучение после нее становится эллиптически поляризованным [107], что соответствует отклонению оптической оси $\lambda/4$ на промежуточный угол от 0 до 45° от оси пропускания поляризатора. Коноскопическая картина компенсатора (LiNbO_3) постепенно изменяется. При угле 45° между оптической осью пластинки $\lambda/4$ и осью пропускания поляризатора излучение после $\lambda/4$ станет циркулярно поляризованным. Коноскопическая картина LiNbO_3 с таким излучением приобретет вид, изображенный на рис. 5.24. В целом при полном обороте пластинки $\lambda/4$ коноскопическая картина компенсатора (LiNbO_3) с циркулярно поляризованным излучением появится на экране 4 раза.

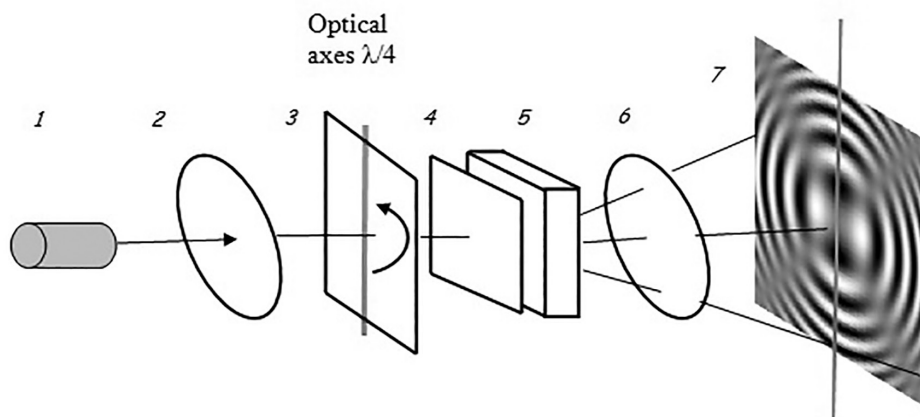


Рисунок 5.24 – Схема оптической установки: 1 – He-Ne-лазер; 2 – поляризатор; 3 – кварцевая пластинка $\lambda/4$ (положительный оптический знак); 4 – рассеиватель; 5 – компенсатор (кристаллическая пластинка LiNbO_3 с отрицательным оптическим знаком); 6 – анализатор, скрещенный с поляризатором; 7 – полупрозрачный экран

Такой же результат можно получить, если в ту же оптическую систему ввести пластинку $\lambda/4$ и зафиксировать ее неподвижно, а скрещенные поляризатор и анализатор синхронно вращать вокруг оси пучка излучения.

По результатам экспериментальных исследований установлено [203, 234], что оптическая ось в плоскости входной грани исследуемой фазовой пластинки $\lambda/4$ ориентирована параллельно линии, соединяющей две черные точки в коноскопической картине при разных оптических знаках $\lambda/4$ и компенсатора, и перпендикулярно – в случае одинаковых оптических знаков $\lambda/4$ и компенсатора (рис. 5.25). При этом возможны только два варианта расположения двух симметричных относительно центра картины черных точек между ветвями креста. Две черные точки располагаются или на горизонтали, или на вертикали коноскопической картины, что обусловлено установкой оси пропускания поляризатора под углом 45° к вертикали.

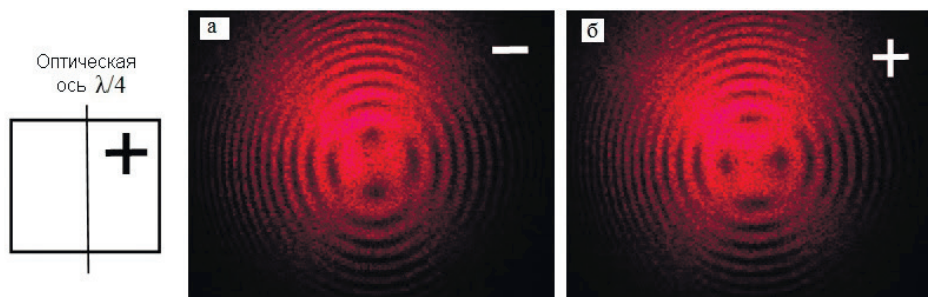


Рисунок 5.25 – Фазовая пластинка $\lambda/4$ и компенсатор имеют различные оптические знаки (а), и фазовая пластинка $\lambda/4$ и компенсатор имеют одинаковые оптические знаки (б)

Положение оптической оси в плоскости входной грани пластинки $\lambda/4$ устанавливают из условия, что оптическая ось параллельна линии, соединяющей две черные точки в коноскопической картине. Следовательно, оптическая ось располагается или по вертикали, или по горизонтали в плоскости входной грани исследуемой кристаллической фазовой пластинки $\lambda/4$.

Следует отметить, что коноскопическую картину, изображенную на рис. 5.25, возможно получить в данной оптической системе при любом взаимном расположении поляризатора и анализатора. Однако прямая линия, проведенная через две черные точки (минимумы) в центре картины, будет параллельна или перпендикулярна оптической оси $\lambda/4$ только при скрещенном расположении поляризатора и анализатора.

Предложенный способ определения расположения оптической оси в плоскости входной грани пластинки $\lambda/4$ прост и удобен в экспериментальных условиях тем, что не требует специальных дорогостоящих устройств. Вместо этого в качестве компенсатора может быть использована практически любая кристаллическая пластинка с известным оптическим знаком, вырезанная перпендикулярно оптической оси.

5.8 Сравнительный анализ поляризационных свойств кристаллических пластинок с различным расположением оптической оси

В устройстве для преобразования форм поляризации излучения [206] использовалась пластинка $\lambda/4$, вырезанная параллельно оптической оси. При нормальной ориентации такой пластинки ее толщина и разность фаз δ влияют на конечный эффект, вносимый в состояние поляризации излучения, ограничивая расходимость используемого излучения. Вследствие наличия значительной первоначальной разности фаз для обыкновенного и необыкновенного лучей $2\pi d(n_o - n_e)/\lambda$, обусловленной толщиной пластинки (d (1-3мм); λ – длина волны; n_o и n_e – показатели преломления для обыкновенного и необыкновенного лучей соответственно) для получения циркулярно поляризованного излучения целесообразно использовать фазовые пластинки с минимальными толщинами. Изменения азимута входящего излучения или величины разности фаз δ приводят к изменению эллиптичности и азимута излучения на выходе из пластинки в широком диапазоне значений [191]. Кроме того, на состояние поляризации излучения в пластинках $\lambda/4$ оказывает влияние многолучевая интерференция [107], проявляющаяся в виде осцилляций интенсивности проходящего через пластинку излучения при ее небольших наклонах или изменениях длины волны падающего излучения. Это усложняет получение циркулярно поляризованного излучения при нормальной ориентации пластинки. На практике мешающие влияния компенсируются соответствующей настройкой оптической системы. Оптическая ось фазовой пластинки должна быть ориентирована точно горизонтально или вертикально; ось пропускания поляризатора должна составлять с оптической осью пластинки угол $\pm 45^\circ$. При некоторых отклонениях от нормального положения падающего излучения относительно пластинки на выходе из пластинки излучение становится эллиптическим.

Отметим, что одним из достоинств данного метода изменения поляризации излучения является периодичность появления заданной поляризации излучения при повороте пластинки, а также возможность наблюдения физических процессов при непрерывном изменении эллиптичности излучения.

Другой возможностью изменения состояния поляризации излучения является применение плоскопараллельной пластинки, вырезанной перпендикулярно оптической оси [192]. В этом случае достоинства метода связаны с тем, что при нормальном прохождении лучей через пластинку величина фазового сдвига составляет $\delta = 0^\circ$. При повороте пластинки на определенный угол θ разность фаз увеличивается от 0 до достаточно больших значений, что приводит к изменению эллиптичности от 0 ($\theta = 0$) до максимальных значений (циркулярно поляризованное излучение), повторяющихся периодически при дальнейшем повороте пластинки. Отметим, что апертурно-угловая характеристика θ_a пластинки в полтора-два раза больше по сравнению со случаем, когда оптическая ось расположена в плоскости пластинки (θ_a – угол поворота пластинки, при котором выходящее из пластинки излучение циркулярно поляризовано).

Расчеты, выполненные для кристаллических пластинок MgF_2 и LiNbO_3 одинаковой толщины ($d = 1$ мм), приведены на рис. 5.26. Кристалл кварца, имеющий значение $(n_o - n_e)$, меньшее по сравнению со значениями для MgF_2 , исключен из расчетов из-за мешающего влияния естественной оптической активности.

При проведении эксперимента лазерное излучение, прошедшее через поляризатор, направление пропускания которого расположено под углом α относительно вертикальной оси поворота пластинки, попадает на кристаллическую пластинку, которая находится под углом θ (угол падения луча на пластинку). Выходящий из пластинки луч приобретает эллиптичность. Расчет эллиптичности (γ) и степени поляризации (P) для излучения, прошедшего через анализатор и кварцевую пластинку, производится на основании выражений (δ – разность фаз) [192]:

$$\gamma = 0.5 \arcsin 2\alpha \sin \delta, \quad (5.9)$$

$$P = \frac{1 - \operatorname{tg}^2 \gamma}{1 + \operatorname{tg}^2 \gamma}. \quad (5.10)$$

При расположении анализатора за плоскопараллельной кристаллической пластинкой (поляризатор и анализатор скрещены), выходящее излучение из анализатора поляризовано линейно. Интенсивность этого излучения рассчитывается на основании выражения:

$$I = 0.5 I_0 (1 - \cos \delta) \sin^2 2\alpha. \quad (5.11)$$

При изменении угла поворота пластинки θ изменяются интенсивность, эллиптичность и степень поляризации.

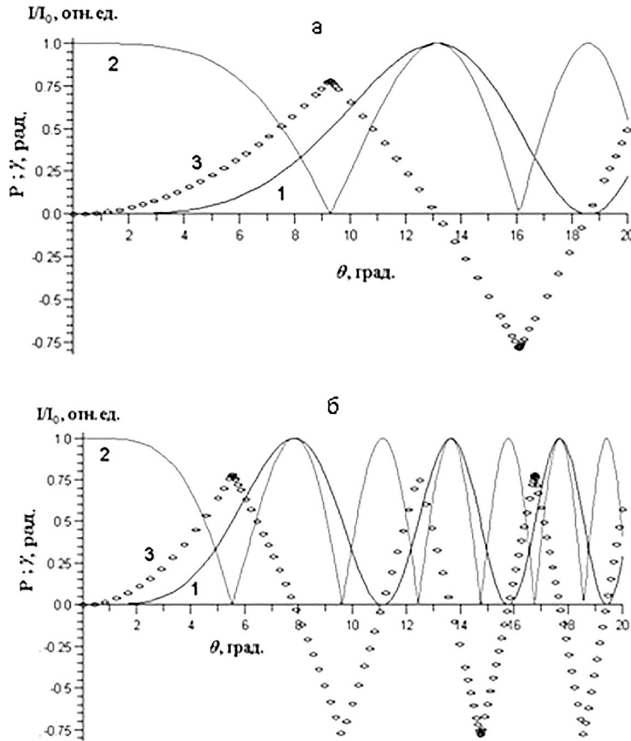


Рисунок 5.26 – Рассчитанная зависимость интенсивности I/I_0 (1), степени поляризации P (2) и эллиптичности γ (3) от угла θ . $\alpha = 45^\circ$. Отсчет γ производится в радианах; P – в пределах от 0 до 1. Толщина пластинки 1 мм. Оптическая ось перпендикулярна входной грани пластинки: а – MgF_2 ; б – LiNbO_3

По экспериментально измеренной относительной интенсивности выходящего излучения достаточно просто найти значения степени поляризации излучения и его эллиптичности. Определение степени поляризации и эллиптичности производится следующим образом: измеряется относительная интенсивность излучения I/I_0 , выходящего из системы «поляризатор – пластинка – анализатор», затем анализатор убирается. По графикам находят значения P и γ , соответствующие измеренному значению I/I_0 . Плоскопараллельные кристаллические пластинки располагаются на столике гониометра ГС – 5 (точность отсчета углов – 5 угловых секунд). Графики легко градуируются относительно углов θ .

При прецизионных измерениях необходим учет френелевского отражения от поляризатора, анализатора и плоскопараллельной пластинки.

Сравнение показателей преломления для кристаллов (MgF_2 , LiNbO_3) позволяет сделать вывод, что MgF_2 наиболее предпочтителен, так как разность $(n_o - n_e)$ гораздо меньше, чем у кристалла LiNbO_3 , что для кристалла MgF_2 приводит к большим значениям апертурно-угловой характеристики θ_a (θ_a

$\sim 9^\circ$; для кристалла $\text{LiNbO}_3 \sim 5^\circ$). Кроме того, значительно меньшие коэффициенты преломления для MgF_2 по сравнению с LiNbO_3 приводят к меньшему френелевскому отражению излучения от пластинки, что приводит к меньшим значениям ошибок измерения. Экспериментальные результаты для кристаллической пластинки LiNbO_3 толщиной 0,62 мм, вырезанной из кристалла ниобата лития перпендикулярно оптической оси, приведены на рис. 5.27. Эксперимент проведен аналогично вышеописанному с фазовой пластинкой $\lambda/4$.

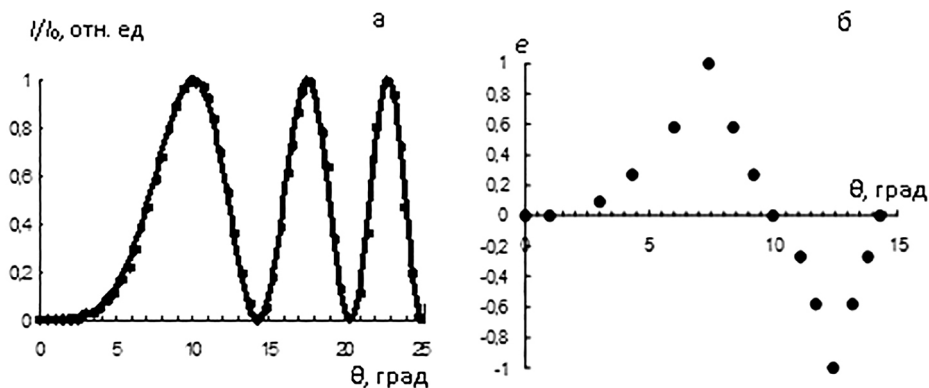


Рисунок 5.27 – Зависимость интенсивности I/I_0 излучения ($\lambda=0,6328$ мкм), прошедшего поляризатор – пластинку ниобата лития – анализатор, от угла поворота θ пластинки вокруг вертикальной оси (а). Сплошная кривая – теоретические значения; точки – экспериментальные. Толщина пластинки 0,62 мм. Экспериментальная зависимость эллиптичности излучения, прошедшего поляризатор – пластинку ниобата лития от угла поворота θ пластинки вокруг вертикальной оси (б)

Рис. 5.28 схематично показывает состояние поляризации излучения при повороте пластинки, вырезанной перпендикулярно оптической оси. При угле поворота $\theta = 0^\circ$ (точка 1 на рис. 5.28) фазовый сдвиг $\delta = 0^\circ$, излучение на выходе из пластинки ниобата лития линейно поляризовано. При угле поворота $\theta = 7,4^\circ$ (рис. 5.25) фазовый сдвиг δ между обыкновенным и необыкновенным лучами увеличивается до значения 90° и на выходе из пластинки возникает излучение с правой циркулярной поляризацией. При угле поворота пластинки $\theta = 12,4^\circ$ (точка 10 на рис. 5.27) фазовый сдвиг δ достигает значения 270° и излучение на выходе из нее приобретает левую циркулярную поляризацию. При повороте пластинки на угол $\theta = 10^\circ$ (рис. 5.25) величина фазового сдвига достигает значения 180° и на выходе из пластинки возникает линейно поляризованное излучение с направлением вектора \mathbf{E} под углом 90° к направлению вектора \mathbf{E} входящего излучения. При повороте пластинки на угол $\theta = 14,3^\circ$ (точка 13 рис. 5.27) величина фазового сдвига достигает значения 360° и на выходе из пластинки возникает линейно поляризованное излучение с сохранением первоначального направления вектора \mathbf{E} .

Для углов поворота пластинки в интервалах $0^\circ < \theta < 7,4^\circ$ (точки 2, 3 на рис. 5.28); $7,4^\circ < \theta < 10^\circ$ (точки 5, 6 на рис. 5.28); $10^\circ < \theta < 12,4^\circ$ (точки 8, 9 на рис.

5.28); $12,4^\circ < \theta < 14,3^\circ$ (точки 11, 12 на рис. 5.28) на выходе из пластинки возникает эллиптически поляризованное излучение.

Эллипсы поляризации имеют различную эллиптичность, правое и левое направление вращения вектора \mathbf{E} и ориентированы под углами $+45^\circ$ и -45° относительно горизонтальной оси пластинки. После угла поворота $\theta = 14,3^\circ$ процесс преобразования форм поляризации излучения повторяется. Диапазон состояний поляризации излучения и виды коноскопических картин, полученных при изменении поляризации излучения поворотом пластинки ниобата лития и фазовой кварцевой пластинки вокруг вертикальной оси, аналогичны (рис. 5.29).

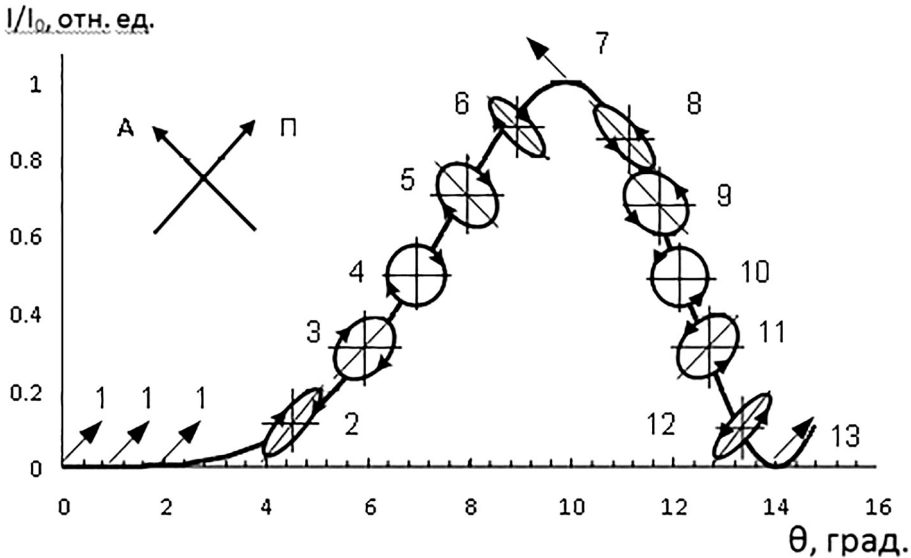


Рисунок 5.28 – Схематичное изображение поляризации излучения на выходе из пластинки ниобата лития толщиной 0,62 мм при повороте вокруг вертикальной оси.

Угол θ , град: 1 – 0; 2 – 4,3; 3 – 6; 4 – 7,4; 5 – 8,4; 6 – 9,2; 7 – 10; 8 – 11,7; 9 – 11,7; 10 – 12,4; 11 – 13,2; 12 – 13,8; 13 – 14,3. Фазовый сдвиг δ , град: 1 – 0; 2 – 30; 3 – 60; 4 – 90; 5 – 120; 6 – 150; 7 – 180; 8 – 210; 9 – 240; 10 – 270; 11 – 300; 12 – 330; 13 – 360. Эллиптичность e : 1 – 0; 2 – 0,27; 3 – 0,58; 4 – 1; 5 – 0,58; 6 – 0,27; 7 – 0; 8 – (-0,27); 9 – (-0,58); 10 – (-1); 11 – (-0,58); 12 – (-0,27); 13 – 0. Азимут большой оси эллипса поляризации выходящего излучения, град: 1, 2, 3, 4, 11, 12, 13 – $(+45^\circ)$; 5, 6, 7, 8, 9, 10 – (-45°)

При оценке эллиптичности излучения, получаемого с помощью фазовой пластинки, вырезанной параллельно оптической оси, учитывались следующие факторы: погрешности амперметра и гониометра, расходимость пучка излучения, погрешность установки поляризатора и анализатора, погрешность установки вертикальной кристаллофизической оси пластинки, случайная погрешность измерений, толщина пластинки. Влияние названных факторов на эллиптичность излучения в данном случае составляет величину 5–6%.

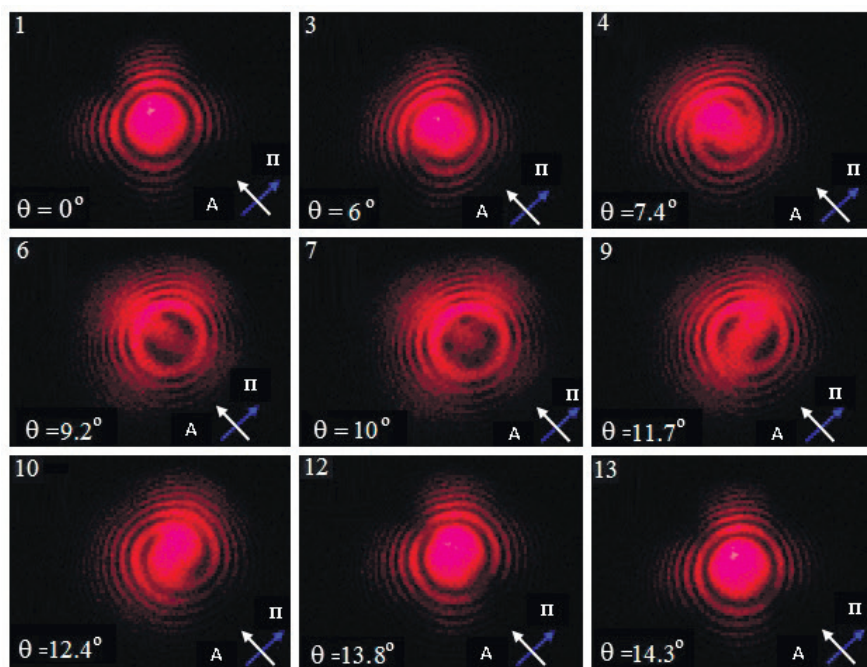


Рисунок 5.29 – Серия коноскопических картин оптически активного кристалла параллелурита (TeO_2) при изменении поляризации излучения с помощью поворота пластинки ниобата лития (LiNbO_3) толщиной 0,62 мм вокруг вертикальной оси:

1, 7, 13 – линейное излучение; 4 – правоциркулярное излучение; 10 – левоциркулярное излучение; 3, 6, 9, 12 – эллиптическое излучение. Номера фотографий соответствуют номерам на графике рис. 5.28

На оценку эллиптичности излучения, получаемого с помощью кристаллической пластинки, вырезанной перпендикулярно оптической оси, не влияет погрешность определения толщины пластинки. Кроме того, отсутствует необходимость ориентировки кристаллофизических осей, лежащих в плоскости входной грани пластинки. Влияние названных факторов на эллиптичность излучения в данном случае составляет величину 3–4%.

Таким образом, использование поворота плоскопараллельной кристаллической пластинки вокруг оси, совпадающей с одной из кристаллофизических осей, расширяет экспериментальные возможности по сравнению с поворотом фазовой пластинки или поляризатора вокруг оси, совпадающей с осью лазерного пучка.

Предлагаемый подход к проектированию фазовых пластинок обеспечивает достаточно высокую точность поляризационных преобразований и их стабильность во времени, что важно для большинства практических применений. Разработанная методика имеет универсальный характер и может применяться при производстве фазовых пластинок из оптических кристаллов для различных длин волн.

5.9 Использование оптических свойств системы из двух кристаллических пластинок для управления поляризацией излучения

Фазовые пластинки, работающие в широких спектральных областях [235–247], необходимы в поляризационной спектроскопии с применением перестраиваемых лазеров, интерференционно-поляризационных фильтрах с подстройкой длины волны пропускания, широкополосных компенсаторах, а также для обработки изображений. Фазовые пластинки одинаковой толщины обычно вырезают из одноосных двулучепреломляющих кристаллов параллельно оптической оси и собирают, ориентируя их на вычитание, получая пластинки нулевого порядка.

Фазовые пластинки для разных спектральных диапазонов изготавливают из разных кристаллических материалов. Кристаллический кварц в основном применяется для УФ, видимой и ближней ИК-областей в интервале 0,19–2,5 мкм. Монокристаллический фторид магния в основном используется в диапазоне 0,19–7 мкм. В ИК-диапазоне 2,5–13 мкм – монокристаллические CdS и CdSe. Все перечисленные кристаллы обладают сходными величинами показателя преломления (от 0,012 до 0,007) и являются положительными одноосными кристаллами.

Свойства двух анизотропных пластинок, вырезанных из одного и того же кристалла и находящихся между поляризатором и анализатором, представляют определенный интерес. Особенностью характеристик для оптического излучения, прошедшего через две кристаллические пластинки с расположением оптических осей в плоскости пластинок, является то, что в случае расположения оптических осей пластинок взаимно перпендикулярно их свойства аналогичны свойствам одной пластинки с оптической осью, перпендикулярной плоскости пластинки.

На рис. 5.30 а приведена угловая зависимость: I/I_0 – интенсивности прошедшего излучения; P – степени поляризации; γ – эллиптичности для одной пластинки MgF_2 , оптическая ось которой перпендикулярна ее входной грани. На рис. 5.30 б приведены те же самые зависимости I/I_0 , P , γ для двух одинаковых пластинок, оптические оси которых находятся в плоскости входной грани и взаимно перпендикулярны.

Интенсивность пропускания системы I/I_0 при скрещенных анализаторе и поляризаторе определялась по формуле:

$$I = I_0 \sin^2 (\Delta/2). \quad (5.12)$$

Степень поляризации P находится на основании выражения:

$$P = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min}), \quad (5.13)$$

где I_{\max} , I_{\min} – максимальное и минимальное значения интенсивности излучения, прошедшего через пластинки. Обычно выражение (5.13) используется для частично-поляризованного излучения, но в данном случае применяется

в качестве характеристики эллиптически поляризованного излучения. Эллиптичность излучения, прошедшего через пластинки:

$$\gamma = \arctg\left(\frac{b}{a}\right), \quad (5.14)$$

где a, b – длины большой и малой осей эллипса поляризации излучения.

При наличии анализатора излучение за системой линейно поляризовано, для управления эллиптичностью проходящего через систему излучения анализатор из системы убирается (излучение линейно поляризовано, если $P = 1, \gamma = 0$; если излучение циркулярно поляризовано, то $P = 0, \gamma = 0,78$ рад ($\gamma = 45^\circ$)).

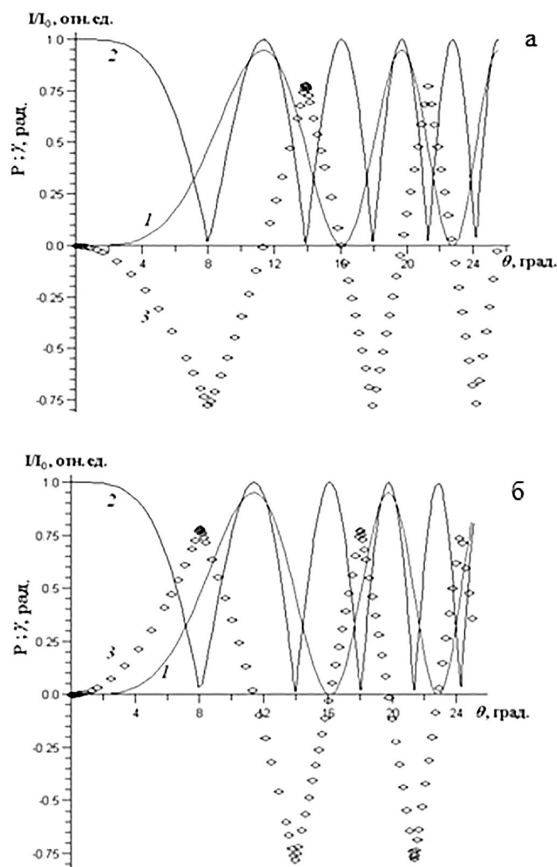


Рисунок 5.30 – Зависимость интенсивности I/I_0 (1), степени поляризации P (2) и эллиптичности γ (3) от угла θ между падающим лучом и нормалью к плоскости пластинки: а – одна пластинка MgF_2 толщиной 1,33 мм; б – две пластинки MgF_2 с одинаковой толщиной 1,33 мм (оптические оси находятся в плоскости пластинок и взаимно перпендикулярны)

Из сравнения рис. 5.30 а и б видно, что система из двух пластинок с оптическими осями, лежащими в плоскости пластинок, при взаимно-перпендикулярном расположении осей является своеобразным эквивалентом одной пластинки, у которой оптическая ось перпендикулярна плоскости пластинки. Такие свойства двух пластинок позволяют менять эллиптичность, степень поляризации, разность фаз для обыкновенного и необыкновенного лучей в широких пределах за счет изменения угла между оптическими осями и наклона пластинок. Возможность использования двух кристаллических пластинок в качестве прецизионного инструмента значительно расширяет экспериментальную базу при поляризационных измерениях.

Спектр пропускания кристаллической пластинки, помещенной между поляризатором и анализатором, состоит из чередующихся светлых и темных областей [235, 236]. Периодически изменяются также по всему спектру примерно в таких же интервалах эллиптичность и степень поляризации прошедшего излучения. В целом спектр эллиптичности является периодическим: например, в определенных областях имеется циркулярно поляризованное излучение. Длины волн для циркулярно поляризованного излучения в соседних областях отличаются на определенный интервал $\Delta\lambda$ и повторяются по всему спектру.

На рис. 5.31 приведены спектры пропускания I/I_0 , степени поляризации P и эллиптичности γ для одной плоскопараллельной пластинки толщиной 1,33 мм, вырезанной из кристалла MgF_2 . Оптическая ось находится в плоскости пластинки. Пластика расположена вертикально и может быть повернута вокруг вертикальной оси, не лежащей в плоскости пластинки, на угол θ (угол между оптическим лучом и нормалью к поверхности пластинки). Главные направления поляризатора и анализатора взаимно ортогональны. Угол α – между главным направлением поляризатора и одним из главных направлений пластинки. Оптическая ось пластинки может быть расположена горизонтально (рис. 5.31 а) или вертикально (рис. 5.31 б). На поляризатор направляется сколлимированный пучок широкополосного излучения, при этом смена направления оптической оси приводит к изменению степени поляризации и эллиптичности широкополосного излучения. Для одной пластинки изменение значений I/I_0 , P , и γ происходит в небольшой области спектра, например, для пластинки MgF_2 толщиной 1,33 мм это область порядка 100 Å.

При наличии за пластинкой анализатора из системы выходит линейно поляризованное излучение, промодулированное по интенсивности, при отсутствии анализатора интенсивность по всему спектру остается неизменной, а значения P и γ промодулированы по спектру (рис. 5.31).

В сильной степени свойства системы из двух кристаллических пластинок проявляются в спектре широкополосного сколлимированного излучения, проходящего по нормали к поверхности пластинок.

По сравнению с одиночными фазовыми пластинками фазосдвигающие системы более удобны для практического использования, так как открывают дополнительные возможности за счет конструкции и настройки системы, позволяя задавать необходимые поляризационные параметры излучения [236–247].

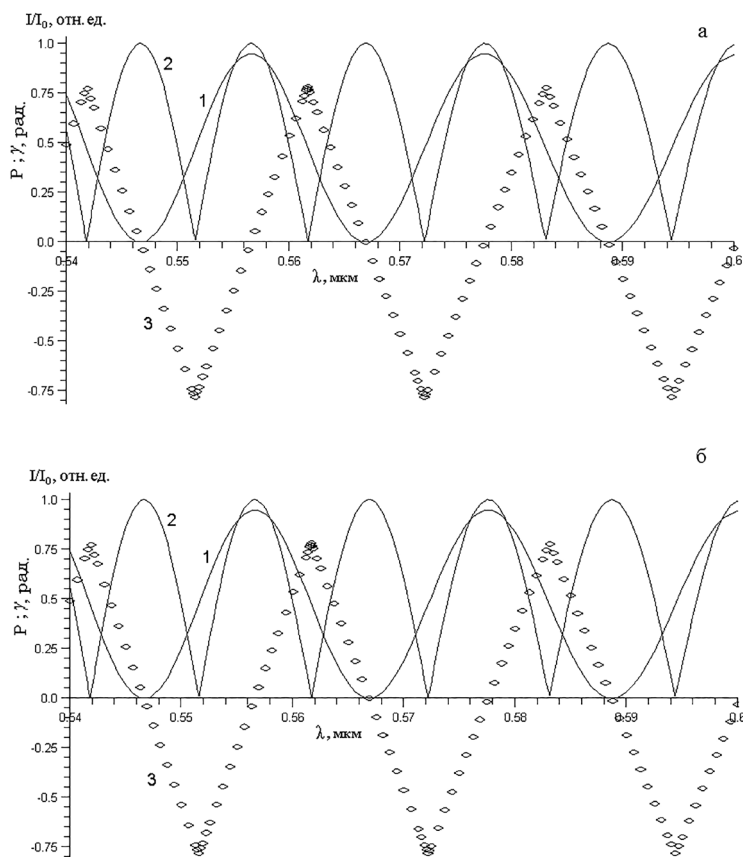


Рисунок 5.31 – Зависимость интенсивности I/I_0 (1), степени поляризации P (2) и эллиптичности γ (3) для одной пластинки от длины волны. $\theta = 10^\circ$; $\alpha = 45^\circ$. Отсчет γ производится в радианах; P – в пределах от 0 до 1. Толщина пластинки MgF_2 1.33 мм. Оптическая ось: а – горизонтальна; б – вертикальна

Если оптические оси находятся в плоскости таких пластинок и параллельны, то две пластинки ведут себя при пропускании широкополосного излучения как пластинка суммарной толщины [197]. Их спектр пропускания состоит из чередующихся максимумов и минимумов, находящихся на расстояниях порядка $100\text{--}150 \text{ \AA}$ ($I = I_0 \sin^2 \frac{\delta}{2}$; I_0 – интенсивность падающего света, I – интенсивность прошедшего света; поляризатор и анализатор скрещены; δ – разность фаз обыкновенного и необыкновенного лучей на выходе из обеих пластинок).

Если оптические оси взаимно перпендикулярны, две пластинки ведут себя как пластинка, толщина которой равна разности толщин [197]. Спектр пропускания в этом случае также состоит из чередующихся максимумов и минимумов, но расстояние между ними значительно увеличивается по мере уменьшения эффективной толщины $d_{\text{эф}} = d_1 - d_2$, где d_1 и d_2 – толщина ка-

ждой из двух пластинок. Этот эффект объясняется интерференцией обыкновенных и необыкновенных лучей, т. е. определенной разностью фаз δ этих лучей на выходе из пластинок:

$$\delta = (2\pi/\lambda) \{ (n^e d_1 + n^o d_2) - (n^o d_1 + n^e d_2) \} = (2\pi/\lambda) (n^e - n^o) (d_1 - d_2), \quad (5.15)$$

где λ – длина волны; n^o и n^e – главные значения показателей преломления для обыкновенного и необыкновенного лучей соответственно.

Такие свойства двух скрещенных оптическими осями кристаллических пластинок, казалось бы, должны наблюдаться и для их углового спектра (коноскопических картин). Наблюдения показали, что такая аналогия существует, но только для небольшой угловой апертуры лучей. Это обусловлено тем, что угловая зависимость необыкновенного показателя преломления при наклонном падении на пластинки в плоскости оптических осей и в перпендикулярной плоскости различна. Эффективная разность фаз в этом случае:

$$\delta = (2\pi/\lambda) \{ (n^e d_1 + n^o d_2) - (n^o d_1 + n_i^e d_2) \} = (2\pi/\lambda) (n^e - n^o) d_1 - (n_i^e - n^o) d_2, \quad (5.16)$$

где n_i^e – показатель преломления необыкновенного луча в плоскости главного сечения кристалла, зависящий от угла падения луча относительно нормали к пластинкам и не равный n^e . Разность фаз δ не может быть значительно уменьшена из-за $n_i^e \neq n^e$.

Несмотря на небольшую угловую область существования аналога, имеется возможность создания системы из двух пластинок с эффективной малой оптической толщиной (или вообще равной нулю) для двух реальных пластинок конечной и произвольной толщины.

На рис. 5.32, 5.33 приведены спектры пропускания и эллиптичности, когда сколлимированное широкополосное излучение проходит через две скрещенные оптическими осями кристаллические пластинки под разными углами θ [205]. Видно, что эллиптичность можно задать примерно одну и ту же во всей видимой области спектра. При необходимости длины волн, соответствующие, например, циркулярно поляризованному излучению, можно просканировать по всей области видимого спектра, изменяя величину угла θ . Таким образом, изменяя эффективную толщину двух пластинок (поворачивая пластинки на определенный угол θ) можно управлять в значительных пределах распределением эллиптичности и степени поляризации по спектру.

Таким образом, регулируемая составная фазовая пластинка представляет собой устройство с широкими возможностями использования и заменяет целый ряд обычных фазовых пластин [236—247].

Поворот составной пластинки нулевого порядка из MgF_2 в пределах углового интервала $\theta = 5-15^\circ$ позволяет использовать устройство как полуволновую и четвертьволновую фазовую пластинку, настраиваемую на любую длину волны в интервале 0,3–0,7 мкм (рис. 5.34). Расчеты, проведенные для аналогичного устройства из SiO_2 , показывают те же возможности для интервала углов поворота $\theta = 6-20^\circ$.

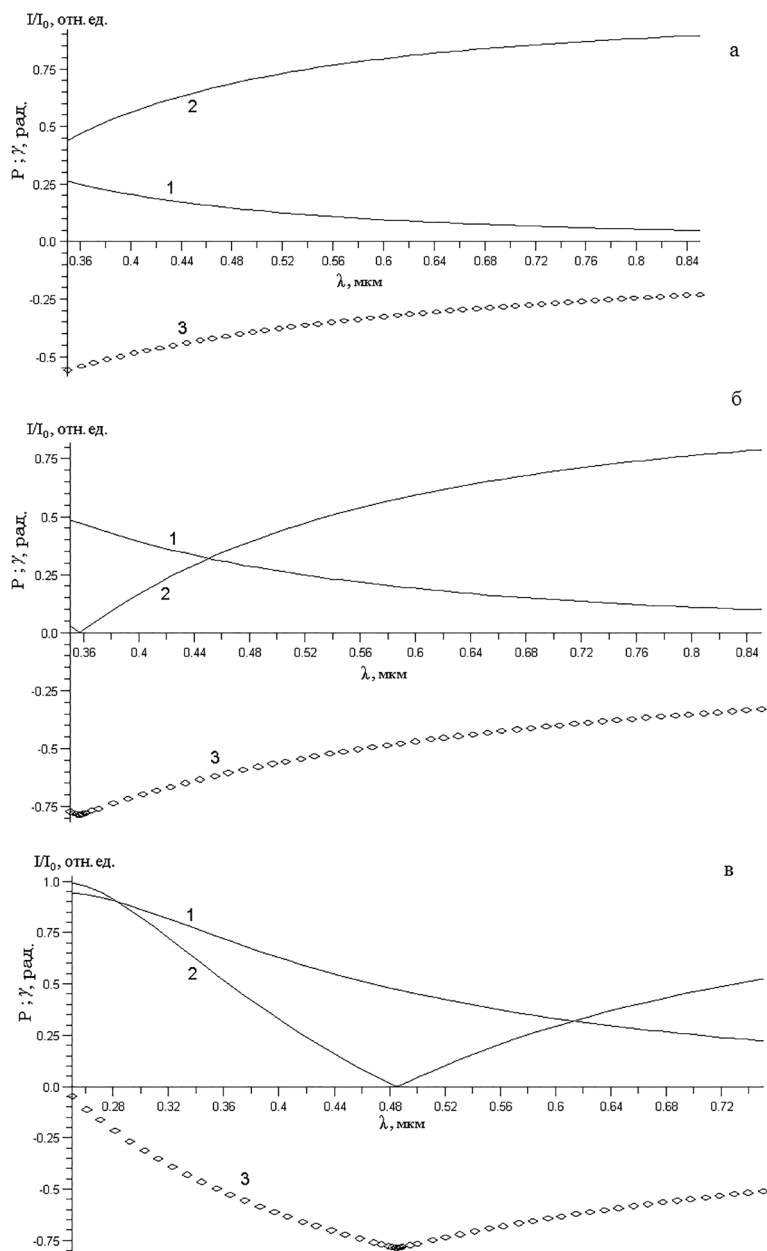


Рисунок 5.32 – Зависимость интенсивности I/I_0 (1), степени поляризации P (2) и эллиптичности γ (3) для двух пластинок MgF_2 . Каждая пластинка толщиной 1,33 мм. Оптические оси расположены в плоскости пластинок и ортогональны друг другу. Значение угла θ , град: а – 5, б – 6, в – 7; $\alpha = 45^\circ$. Отсчет γ производится в радианах; P – в пределах от 0 до 1

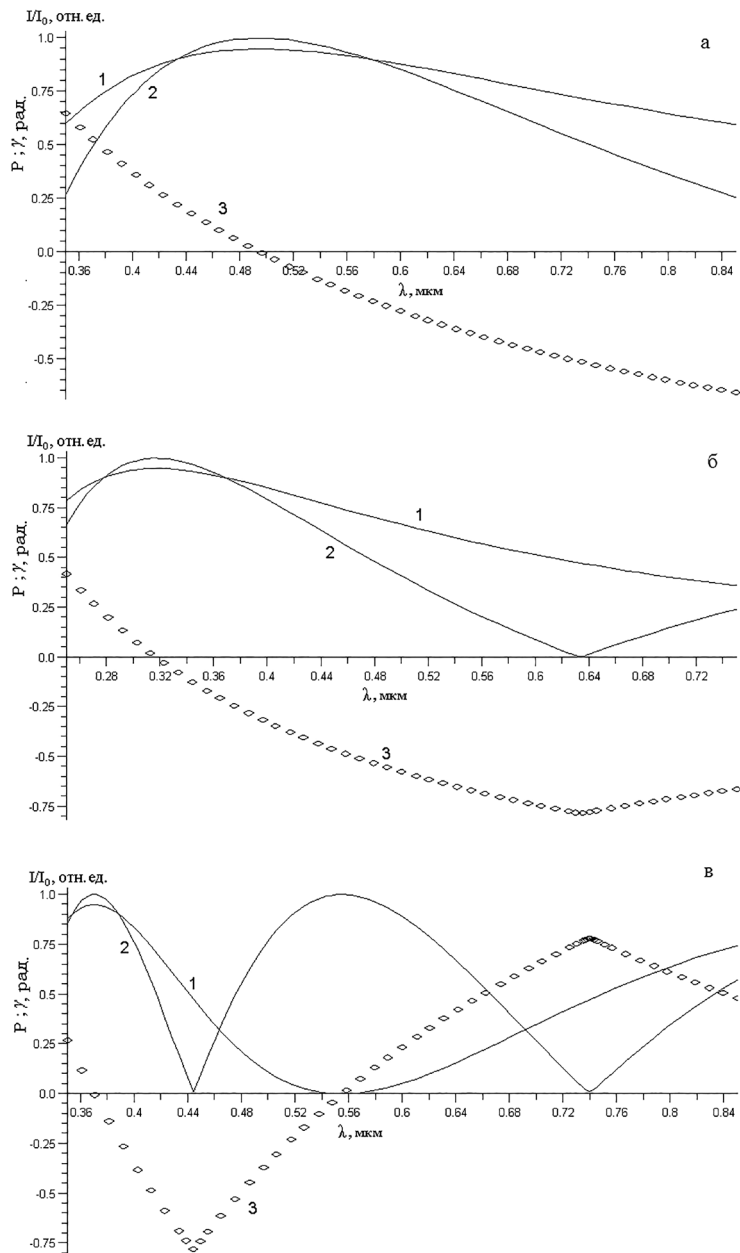


Рисунок 5.33 – Зависимость интенсивности I/I_0 (1), степени поляризации P (2) и эллиптичности γ (3) для двух пластинок MgF_2 . Каждая пластинка толщиной 1,33 мм. Оптические оси расположены в плоскости пластинок и ортогональны друг другу. Значение угла θ , град: а – 8, б – 10, в – 15; $\alpha = 45^\circ$. Отсчет γ производится в радианах; P – в пределах от 0 до 1

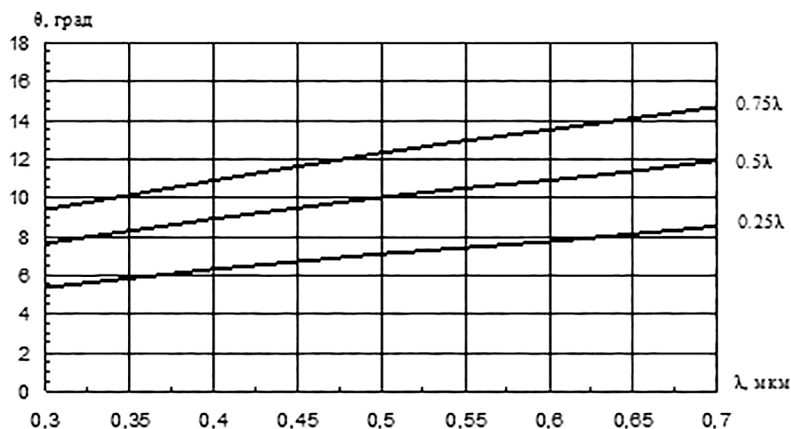


Рисунок 5.34 –Спектральная зависимость волновой задержки при повороте составной фазовой пластинки из двух кристаллических пластинок MgF_2 толщиной 1,33 мм каждая. Точки пересечения с кривыми фазовых задержек показывают длины волн и углы поворота составной фазовой пластинки, при которых она является четвертьволновой ($0,25\lambda$ и $0,75\lambda$) и полуволновой ($0,5\lambda$)

Интерес представляет система, состоящая из двух кристаллических пластинок, расположенных последовательно друг за другом так, что угол между их оптическими осями равен нулю, вырезанных перпендикулярно оптической оси из отрицательного и положительного кристаллов [157]. Такую систему можно поворачивать относительно оси y (рис. 5.35), меняя угол между оптической осью и направлением волновой нормали. В первоначальном положении излучение распространяется вдоль оптической оси каждой пластинки. При отклонении от оптической оси излучение в пластинке разбивается на обыкновенный и необыкновенный лучи. Разность фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами, которая наберется при прохождении излучения через каждую пластинку в отдельности, определяется из соотношения:

$$\delta = \left(\frac{2\pi d}{\lambda} \left(\sqrt{n_e^2(\beta_e) - \sin^2 \varphi_i} \right) \right), \quad (5.17)$$

где d – толщина одной из пластинок; λ – длина волны излучения; n_o , $n_e(\beta_e)$ – показатели преломления обыкновенного и необыкновенного лучей; β_e – угол преломления необыкновенных лучей; φ_i – угол падения лучей на пластинку.

Результирующая разность фаз, вносимая обеими пластинками, находится путем сложения результатов для каждой пластинки в отдельности при одинаковых углах падения. На рис. 5.36 представлены результаты расчетов для системы, состоящей из оптически активных кристаллов парателлуриата (положительный оптический знак) и иодата лития (отрицательный оптический знак). При расчете разности фаз, возникающей за счет двулучепреломления кристалла, оптическая активность не учитывалась. Из рис. 5.36 следует, что, подбирая толщину одной из пластинок, можно управлять

результатирующей разностью фаз двух пластинок. Кривая 1 (рис. 5.36) соответствует разности фаз для одной пластинки парателлурита толщиной 3 мм, кривая 5 – одной пластинке иодата лития толщиной 3 мм. Если наложить одну пластинку на другую, то результирующая разность фаз соответствует кривым 2, 3, 4. При увеличении толщины пластинки парателлурита (кривые 2, 3) разность фаз двух пластинок можно сделать очень малой. При толщине пластинки парателлурита 5.185 мм и иодата лития 3 мм результирующая разность фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами равна нулю.

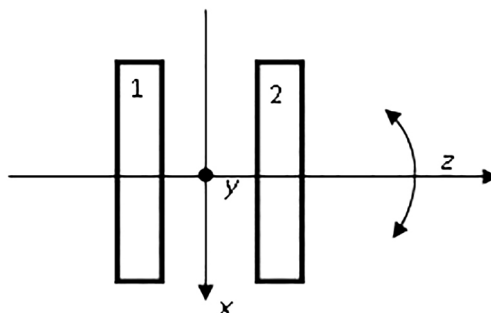


Рисунок 5.35 – Расположение пластинок в системе (вид сверху)

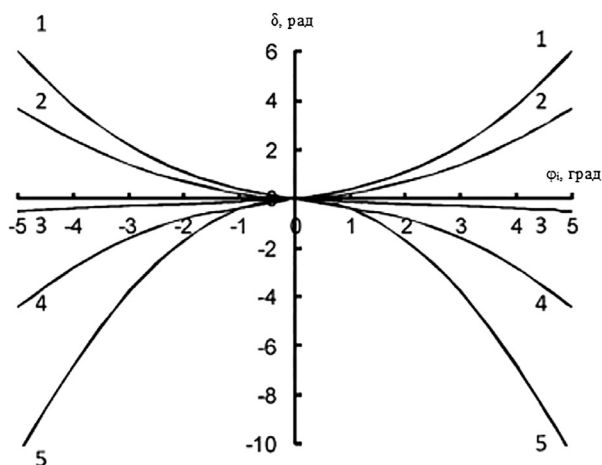


Рисунок 5.36 – Разность фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами при наклонном падении под углом φ_i лучей на плоскопараллельные пластинки: 1 – одна пластинка TeO_2 ($d = 3$ мм); 2 – LiJO_3 ($d = 3$ мм) и TeO_2 ($d = 3$ мм); 3 – LiJO_3 ($d = 3$ мм) и TeO_2 ($d = 7$ мм); 4 – LiJO_3 ($d = 3$ мм) и TeO_2 ($d = 3$ мм); 5 – LiJO_3 ($d = 3$ мм)

При расположении плоскопараллельных положительной и отрицательной кристаллических пластинок под некоторым углом друг к другу систе-

ма приобретает необычные свойства. На рис. 5.37 схематически показано расположение пластинок друг относительно друга. В исходном состоянии луч падает на пластинку нормально (угол падения лучей на пластинку φ_i равен нулю). Для второй пластинки угол падения определяется из соотношения:

$$\varphi_i' = \varphi_i - \omega, \quad (5.18)$$

где ω – угол между оптическими осями пластинок (или угол между входными гранями пластинок). Для частного случая, когда излучение падает нормально на первую пластинку, угол падения φ_i' равен углу между оптическими осями ω .

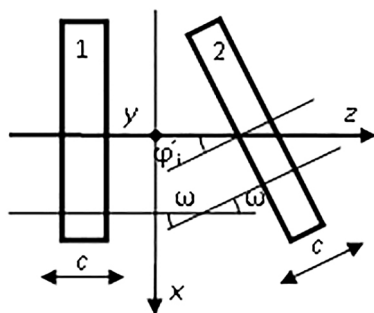


Рисунок 5.37 – Схема расположения (вид сверху) кристаллических пластинок. Пластинки вырезаны перпендикулярно оптической оси

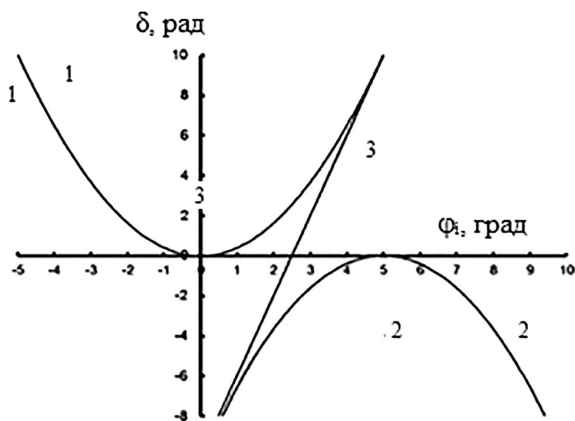


Рисунок 5.38 – Зависимость разности фаз от угла падения при ориентации пластинок под углом $\omega = 5^\circ$: 1 – одна пластинка TeO_2 ($d = 5$ мм); 2 – LiIO_3 ($d = 3$ мм); 3 – две пластинки (LiIO_3 и TeO_2)

На рис. 5.38 представлены зависимости разности фаз от угла падения для системы из двух пластинок, вырезанных перпендикулярно оптической оси, при разной толщине пластинок и разных углах между оптическими осями пластинок. На графиках видно, что слева относительно точки пересечения кривой 3 с горизонтальной осью система аналогична положительному кристаллу, с другой стороны (справа) – соответствует отрицательному кристаллу. Сама точка пересечения соответствует оптической оси системы кристаллических пластинок.

На рис. 5.39 представлены расчеты разности фаз для оптической системы, состоящей из кристаллических пластинок иодата лития с одинаковым оптическим знаком.

В отличие от предыдущих случаев зависимость, характеризующая результирующую разность фаз $\delta = \delta_1 + \delta_2$, по форме не отличается от разности фаз, вносимой каждой пластинкой в отдельности, и обусловлена ориентацией пластинок относительно друг друга (угол ω). Минимальная разность фаз, создаваемая двумя идентичными пластинками при данной ориентации их относительно друг друга, составляет 1,6 рад. Именно этому значению разности фаз соответствует направление отрезка zz , которое обусловлено положением кривой 3 (рис. 5.39) и может быть названо псевдооптической осью системы, состоящей из двух пластинок.

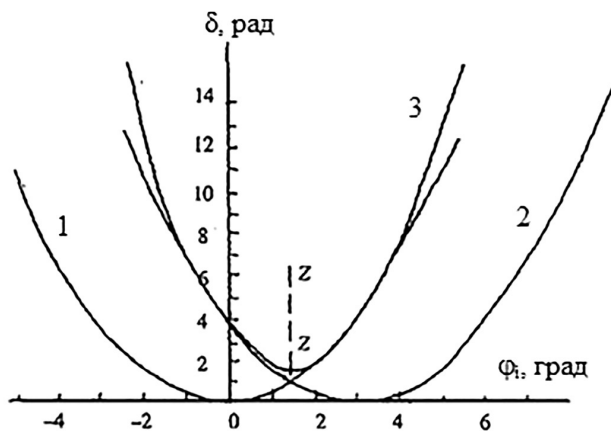


Рисунок 5.39 – Зависимость разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами в кристаллической пластинке иодата лития от угла падения:

1 – первая пластинка ($d = 3$ мм); 2 – вторая пластинка ($d = 3$ мм); 3 – соответствует двум пластинкам одинаковой толщины. Угол между пластинками $\omega = 3^\circ$

Если система состоит из пластинок разной толщины, то кривая, характеризующая результирующую разность фаз (разность фаз, вносимая оптической системой), смещается в сторону кривой, соответствующей пластинке с большей толщиной. На рис. 5.40 представлены рассчитанные кривые разности фаз.

сти фаз, вносимые пластинками ($d_1 = 1,26$ мм и $d_2 = 3,10$ мм), вырезанными из положительного кристалла парателлуриата перпендикулярно оптической оси. Видно, что результирующая кривая 3 смещается в сторону кривой 2, соответствующей пластинке с большей толщиной d_2 . Минимум кривой 3 соответствует углу $\varphi_i = 14^\circ$, что совпадает с псевдооптической осью системы из двух пластинок.

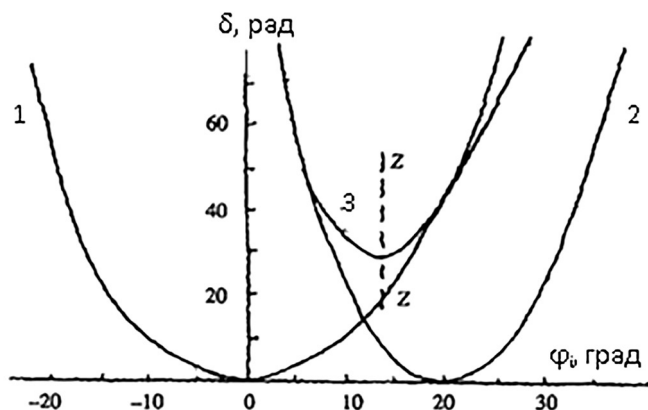


Рисунок 5.40 — Зависимость разности фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами в кристаллической пластинке парателлуриата от угла падения: 1 — первая пластинка ($d = 1,26$ мм); 2 — вторая пластинка ($d = 3,10$ мм); 3 — соответствует двум пластинкам с различной толщиной. Угол между пластинками $\omega = 20^\circ$

5.10 Влияние схемы наблюдения на коноскопические картины оптических кристаллов

Коноскопическая картина, традиционно наблюдаемая в поляризационном микроскопе, формируется излучением, проходящим через кристалл, помещенный между линейными поляризатором и анализатором. Для получения циркулярного излучения как в поляризационном микроскопе, так и в оптической системе (рис. 5.41) достаточно часто используется фазовая пластинка $\lambda/4$, применение которой в коноскопическом методе приводит к весьма необычным коноскопическим картинам, открывающим новые возможности их практического применения в различных оптических устройствах [248].

При внесении в оптическую схему пластинки $\lambda/4$ после поляризатора (с углом 45° между осью пропускания поляризатора и оптической осью $\lambda/4$) на кристалл через рассеиватель 3 падает циркулярно поляризованное излучение. Как следствие, коноскопическая картина оптического кристалла, изображенная на рис. 5.42 а, видоизменяется. Для оптически неактивного кристалла в центре коноскопической картины появляются две черные

точки, а изохромы изменяют свою интенсивность при переходе через ветви «мальтийского креста» (рис. 5.42 б).

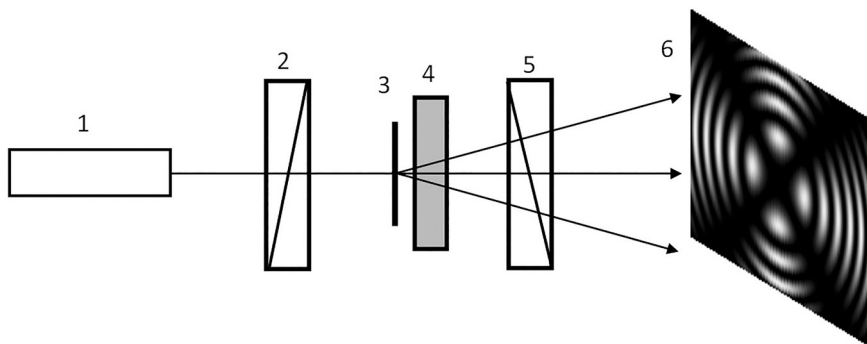


Рисунок 5.41 – Схема установки: 1 – He-Ne-лазер; 2 – линейный поляризатор; 3 – рассеиватель; 4 – плоскопараллельная кристаллическая пластинка; 5 – линейный анализатор; 6 – экран

Интересным фактом оказалось, что перемещение этой же пластинки $\lambda/4$ в положение между кристаллом и анализатором (наблюдение с циркулярным анализатором) сохраняет вид коноскопической картины (рис. 5.42 б). В этом случае через рассеиватель 3 на кристалл и пластинку $\lambda/4$ падает линейно поляризованное излучение, а коноскопическая картина сохраняет вид, характерный для циркулярно поляризованного излучения. Это объясняется тем, что коноскопическая картина (рис. 5.42 б) является результатом наложения коноскопических картин кристалла (рис. 5.42 а) и пластинки $\lambda/4$ (в виде двух систем гипербол). Вследствие достаточно малой толщины пластинки $\lambda/4$ гиперболы находятся далеко за пределами центра картины вне поля зрения, а центральная часть коноскопической картины совпадает с рис. 5.42 б.

В сингулярной оптике анализатор циркулярной поляризации, помещенный после кристалла, широко используется для создания оптических вихрей и управления их геометрическим положением, а также величиной и знаком топологического заряда [149, 150].

В классическом коноскопическом методе внесение в оптическую схему наблюдения циркулярного поляризатора или циркулярного анализатора позволяет определить оптический знак кристалла. При известном оптическом знаке пластинки $\lambda/4$ две черные точки в центре картины появляются или в первом и третьем квадрантах, или во втором и четвертом квадрантах в зависимости от оптического знака исследуемого кристалла [160].

Кроме того, поворот пластинки $\lambda/4$ с известным оптическим знаком вокруг вертикальной оси, лежащей в плоскости ее входной грани, приводит к смещению изохром на коноскопической картине (в направлении от периферии к центру или наоборот), что также позволяет определить оптический знак кристалла без использования кварцевого клина [118].

Эта же схема наблюдения позволяет по коноскопической картине кристалла достаточно быстро определить положение оптической оси

в плоскости входной грани пластинки $\lambda/4$ по ее параллельности с линией, соединяющей две черные точки в коноскопической картине (при этом кристалл и пластинка $\lambda/4$ должны иметь разные оптические знаки) [164].

При размещении двух пластинок $\lambda/4$ – до и после кристалла в составе циркулярного поляризатора и циркулярного анализатора – «мальтийский крест» перестает затенять коноскопическую картину, полностью исчезает, оставляя хорошо различимую систему колец-изохром, что позволяет контролировать наличие оптических дефектов (рис. 5.42 в).

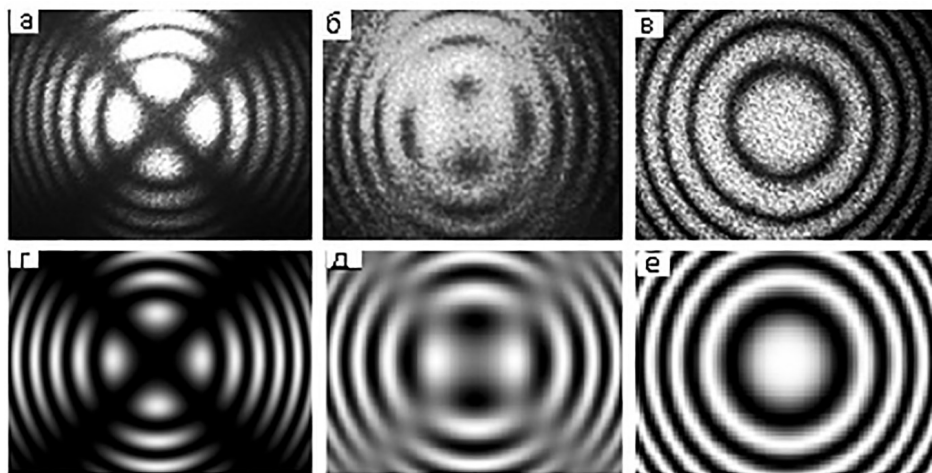


Рисунок 5.42 – Коноскопические картины монокристалла LiNbO_3 , полученные в оптической системе: а, г – с линейным поляризатором и линейным анализатором; б, д – с циркулярным поляризатором и линейным анализатором; в, е – с линейным поляризатором и циркулярным анализатором; з, ж – с циркулярным поляризатором и циркулярным анализатором. Оптическая ось перпендикулярна входной грани кристалла. Поляризатор и анализатор скрещены; а, б, в – результаты эксперимента; г, д, е – теоретически рассчитанные коноскопические картины

Еще раз отметим, что все коноскопические картины (рис. 5.42) приведены для одного и того же кристалла.

Расчеты, выполненные с применением программы компьютерной математики Maple, достаточно хорошо согласуются с экспериментом.

Коноскопическая картина монокристалла LiNbO_3 , полученная в оптической системе с линейными поляризатором и анализатором, рассчитана на основании выражения для интенсивности:

$$I = I_0 (\cos^2 \chi - \sin 2\varphi \sin 2(\varphi - \chi) \sin^2 \frac{\delta}{2}). \quad (5.19)$$

Выражение для расчета коноскопической картины этого же монокристалла с циркулярным поляризатором и линейным анализатором имеет вид:

$$I = 0.5I_0 (1 + \sin 2\beta \sin \delta). \quad (5.20)$$

Интенсивность излучения, прошедшего через монокристалл ниобата лития, помещенный между циркулярными поляризатором и анализатором, описывается выражением:

$$I = I_0 \sin^2 \delta / 2. \quad (5.21)$$

При внесении в оптическую систему (рис. 5.41) с оптически активным кристаллом пластинки $\lambda/4$ после поляризатора (наблюдение с циркулярным поляризатором) коноскопическая картина на экране видоизменяется. При этом система колец-изохром (рис. 5.43 а) трансформируется в две спирали, вложенные одна в другую (рис. 5.43 б), а светлый «мальтийский крест» наблюдается на периферии поля зрения. Направление закручивания спиралей от периферии к центру (правое или левое при взгляде навстречу лучу) соответствует направлению вращения вектора \mathbf{E} оптически активным кристаллом [162].

Расчеты, выполненные для оптически активных кристаллов с применением программы компьютерной математики Maple (рис. 5.43 г, е), достаточно хорошо согласуются с экспериментом.

Вид коноскопических картин, полученных в оптической системе (рис. 5.41) для кристаллов с оптической осью, лежащей в плоскости входной грани кристалла, практически нечувствителен к любым перемещениям пластинки $\lambda/4$. Картины сохраняют вид двух систем гипербол, осью симметрии одной из которых является оптическая ось кристалла. При этом происходит некоторое смещение гипербол относительно центра картины и изменение их интенсивности.

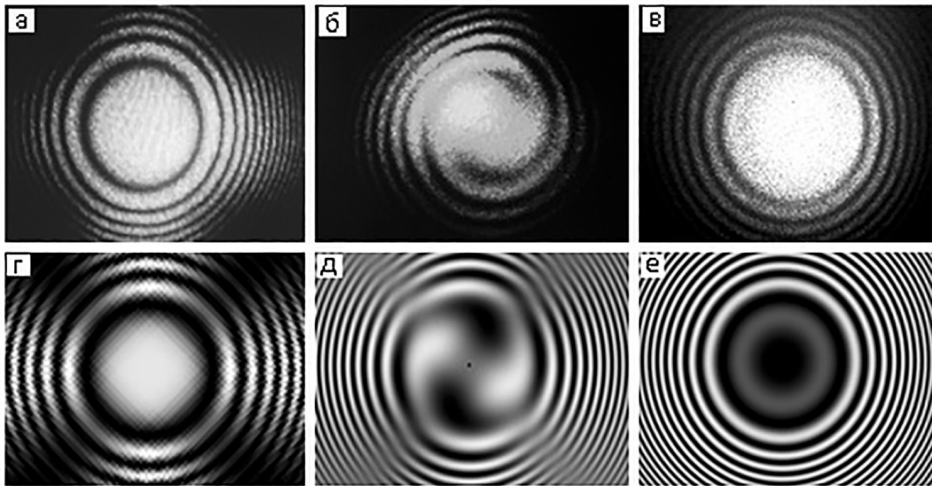


Рисунок 5.43 – Коноскопические картины монокристалла TeO_2 , полученные в оптической системе:

а, г – с линейным поляризатором и линейным анализатором; б, д – с циркулярным поляризатором и линейным анализатором; с линейным поляризатором и циркулярным анализатором; в, е – с циркулярным поляризатором и циркулярным анализатором. Оптическая ось перпендикулярна входной грани кристалла. Поляризатор и анализатор скрещены; а, б, в – результаты эксперимента; г, д, е – теоретически рассчитанные коноскопические картины

Помимо перечисленных особенностей возможно получить нетрадиционные коноскопические картины. Для этого в системе наблюдения коноскопических картин используется слабо расходящийся широкоапертурный пучок излучения (рис. 5.44 [249]). Коноскопические картины наблюдаются в виде параллельных полос, колец, эллипсов и других фигур на фоне изображения кристалла [249]. При увеличении угла 2θ (при приближении кристалла к диафрагме) коноскопическая картина плавно трансформируется в два семейства гипербол.

Пучок лучей должен иметь такие поперечные размеры, чтобы каждая точка поверхности кристалла была освещена лучами, идущими в заданных направлениях. Тогда каждая точка изображения на экране соответствует определенной точке на поверхности входной грани кристалла. При наличии в кристалле дефектов показателя преломления, возникших, например, за счет фоторефракции, на фоне коноскопической картины появляются теневые изображения наведенных оптических неоднородностей показателя преломления.

Экспериментальная проверка различных схем наблюдения в коноскопическом методе показала, что существует возможность получения в одном эксперименте увеличенного объема информации, а также возможность выполнения ряда новых исследований.

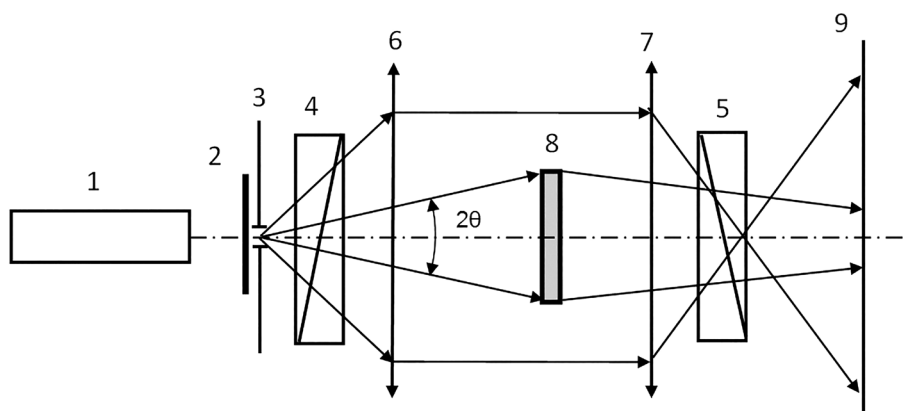


Рисунок 5.44 – Схема наблюдения в слабо расходящихся пучках излучения:

1 – He-Ne лазер; 2 – рассеиватель; 3 – диафрагма; 4, 5 – поляризатор и анализатор; 6, 7 – положительные линзы; 8 – плоскопараллельная кристаллическая пластинка; 9 – экран

Глава 6 КОНОСКОПИЧЕСКИЕ КАРТИНЫ ОПТИЧЕСКИ АКТИВНЫХ КРИСТАЛЛОВ

6.1 Волны гирации в оптически активных кристаллах

Естественная оптическая активность в кристаллах обычно описывается путем разложения линейно поляризованного излучения, распространяющегося вдоль оптической оси кристалла, на две циркулярные волны, имеющие разные направления обхода и разные показатели преломления. На выходе из кристалла эти волны складываются и дают линейно поляризованное излучение с вектором электрического поля, повернутым на некоторый угол. При отходе от оптической оси эти волны становятся эллиптическими. На выходе из кристалла они складываются и появляется эллиптически поляризованное излучение, при этом большая ось эллипса поляризации совершает колебания [107, 128, 129, 174, 179]. Помимо данного представления оптическую активность можно описать также методами, используемыми в основном в нелинейной оптике.

Предполагается, что в одноосном оптически активном кристалле распространяются две волны. Одна волна является обыкновенной, другая – необыкновенной, обе волны поляризованы линейно. При этом роль оптической активности сводится к тому, что часть энергии линейно поляризованной волны идет на раскачку электронов в направлении, перпендикулярном направлению поляризации входящего в кристалл излучения, появляется волна поляризации. Причиной этого в основном, вероятно, является пространственная дисперсия среды [107, 128, 129, 174, 179]. В свою очередь, волна поляризации, распространяющаяся в кристалле с такой же скоростью, что и входящая волна, возбуждает электромагнитную волну (волну, которую можно назвать волной гирации), распространяющуюся в кристалле со скоростью c/n , которая, в принципе, может отличаться от скорости входящей в кристалл волны (n – показатель преломления волны гирации). Полагая, например, что входящая волна – обыкновенная, а волна гирации – необыкновенная, из волнового уравнения можно определить амплитуду E_{\perp} волны гирации [129, 130]:

$$E_{\perp} = \frac{4\pi\omega^2 E_0 \alpha_{\perp}}{c^2(k_0^2 - k_{\perp}^2)} 2\sin\left[\frac{(k_{\perp} - k_0)z}{2}\right], \quad (6.1)$$

где E_0 – амплитуда напряженности электрического поля входящей в кристалл волны (обыкновенная волна); α_{\perp} – коэффициент, пропорциональный величине оптической активности, например, компоненте тензора гирации; c – скорость света; ω – частота; z – радиус-вектор (расстояние, пройденное волной в кристалле); k_0 , k_{\perp} – волновые векторы входящей волны и волны гирации соответственно.

Из-за изменения разности фаз между обыкновенной (входящей) и необыкновенной (волна гирации) волнами при изменении угла θ (угол между оптической осью кристалла и входящим в кристалл лучом) изменяются ус-

ловия фазового синхронизма для взаимодействующих волн, что приводит к осцилляции интенсивности необыкновенной волны (волны гирации) при отходе от оптической оси кристалла. Амплитуда волны гирации уменьшается с увеличением угла θ . При больших значениях угла θ интенсивность волны гирации становится малой. Выходящее из кристалла излучение, образованное за счет сложения входящего несколько ослабленного излучения и излучения волны гирации, эллиптически поляризовано. Большая ось эллипса поляризации при изменении угла θ совершает малые колебания.

Конечные физические выводы при распространении линейно поляризованного излучения через оптически активный кристалл в том и другом случаях описания одинаковы, различаются лишь способы описания. Изложенный выше способ описания привлекателен большей физичностью по сравнению со способом, в котором линейно поляризованное излучение разлагается на две компоненты – циркулярно или эллиптически поляризованное излучение. Причины (механизмы) появления оптической активности, как отмечено в [107, 128, 129, 174, 179], могут быть разными в разных кристаллах. Предполагается лишь, что все эти причины в конечном итоге приводят к появлению волны гирации (боковой компоненты поляризации кристалла).

Эксперимент по наблюдению волны гирации проводился следующим образом. Плоскопараллельная пластинка, изготовленная из кристалла парателлуриата (TeO_2 ; оптическая ось перпендикулярна входной грани пластинки), располагалась между скрещенными анализатором и поляризатором на специальном столике, который позволял повернуть кристалл вокруг вертикальной оси (кристаллофизической оси OX) на любой угол (угол между оптической осью и падающим лучом). Излучение, прошедшее через данную систему, регистрировалось фотоприемником и записывалось на регистрирующем приборе в соответствии с поворотом кристалла (рис. 6.1).

Чтобы при регистрации волны гирации устранить мешающее излучение, наиболее целесообразно исключить один из лучей (обыкновенный или необыкновенный), на которые разбивается в кристалле падающее излучение. То есть использовать случай, например, в нашей установке, когда плоскость пропускания поляризатора параллельна оси OX , относительно которой вращается кристалл. Тогда в двулучепреломляющем оптически неактивном кристалле может распространяться только одна волна – обыкновенная, которая полностью гасится анализатором, плоскость пропускания которого перпендикулярна плоскости пропускания анализатора. Волна гирации, появляющаяся в оптически активном кристалле при такой его установке, является необыкновенной и проходит через анализатор. Для оптически неактивного кристалла интенсивность вышедшего луча при любом повороте пластинки равна нулю.

Контроль настройки системы осуществлялся при использовании плоскопараллельной пластинки из оптически неактивного кристалла (ниобата лития), вырезанной перпендикулярно оптической оси. Зависимость интенсивности волны гирации, зарегистрированной на описанной выше установке для двулучепреломляющих оптически активных кристаллических пластинок кварца (SiO_2), иодата лития (LiIO_3) и парателлуриата (TeO_2), приведена на рис. 6.1 *а, б, в*. Интенсивность прошедшего излучения меняется при отходе лучей от оптической оси в соответствии с теоретическими представлениями.

Достоинством рассмотренного способа регистрации волны гирации в оптически активном кристалле является простота экспериментальной установки и возможность зарегистрировать влияние гиротропии кристалла на оптические свойства за счет излучения, выходящего из системы «поляризатор – кристалл – анализатор» и обусловленного только оптической активностью кристалла.

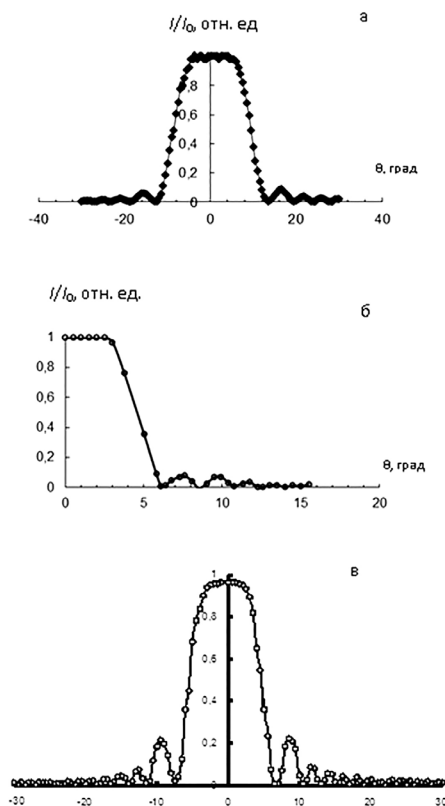


Рисунок 6.1 – Волна гирации: а – для кристаллической пластинки из кварца SiO_2 толщиной 3 мм; б – для кристаллической пластинки из иодата лития LiIO_3 толщиной 1,18 мм; в – для кристаллической пластинки из парателлурита TeO_2 толщиной 1,20 мм ($\lambda = 632,8$ нм)

6.2 Способ определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла

Угловая расходимость лазерного излучения характеризует изменение угла расхождения используемого светового пучка при пропускании света через оптические устройства. Интерферометрический метод измерения угловой расходимости лазерного излучения основан на измерении углового периода и подсчете числа наблюдаемых порядков интерференции в

отраженном (от плоскопараллельной пластинки – эталона Фабри – Перо) свете [250]. При этом сопоставляются картины интерференции монохроматического пучка света, возникающие в отраженном свете при освещении интерферометра Фабри – Перо пучками различной расходимости. Число наблюдаемых порядков интерференции возрастает пропорционально с увеличением расходимости падающего излучения. Поэтому при заданных расходимости анализируемого пучка света и углом разрешения интерферометра возникающая картина интерференции содержит количественную информацию о расходимости излучения рассматриваемого источника [250].

Угловая апертурная зависимость оптической активности кристалла характеризует ограничение поперечного сечения светового пучка при пропускании света через оптические устройства на основе оптической активности кристаллов и относится к вращателям оптического излучения, используемым для кодирования и декодирования оптических изображений и сигналов; приборам для измерения оптических характеристик в зависимости от положения плоскости поляризации излучения.

Проблема определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла заключается в выделении интенсивности прошедшего излучения, связанной только с оптической активностью кристалла, так как эффект двулучепреломления при направлениях распространения излучения в кристалле, отличных от оптической оси, значительно больше, чем влияние оптической активности.

Интенсивность излучения, прошедшего через оптически активный кристалл, зависит от расположения оптической и кристаллографических осей кристалла по отношению к оси оптической системы, которое влияет на интенсивность прошедшего излучения за счет двулучепреломления и оптической активности.

Интенсивность излучения, которая влияет на определение угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла, зависит от оптической активности кристалла. Но через кристалл одновременно проходит излучение за счет оптической активности, за счет двулучепреломления, и в направлениях, отличных от оптической оси кристалла, интенсивность прошедшего излучения за счет двулучепреломления на порядок и более превышает интенсивность прошедшего излучения за счет оптической активности. Превалирующее влияние двулучепреломления на интенсивность прошедшего излучения по сравнению с влиянием оптической активности искажает угловую апертурную характеристику оптической активности кристалла.

Способ определения угловой апертурной характеристики оптически активного кристалла, предложенный в работе [202], позволяет определить угловую апертурную характеристику для излучения с любой длиной волны и исключить потери интенсивности за счет изменения угла падения излучения. Способ, предложенный в работе [202], заключается в пропускании светового излучения по оси оптической системы, повороте кристалла, измерении зависимости интенсивности прошедшего излучения от угла поворота кристалла и выборе апертурного угла оптической активности кристалла из полученной зависимости.

Оптическая система, предложенная в [202], состоит из поляризатора с осью пропускания, расположенной под углом 45° к оптической оси кристалла, оптически активного кристалла кварца SiO_2 и анализатора. Кристалл устанавли-

ливают таким образом, что его оптическая ось перпендикулярна оси системы, которая лежит в горизонтальной плоскости вместе с двумя другими кристаллографическими осями. Оси пропускания поляризатора и анализатора взаимно перпендикулярны, т. е. они скрещены. Вектор **Е** прошедшего через поляризатор излучения расположен под углом 45° к оптической оси кристалла. В силу этого в кристалле падающее излучение разлагается на обыкновенный и необыкновенный лучи с разными показателями преломления n_o и n_e , но равными проекциями вектора **Е** на кристаллографические оси, одна из которых совпадает с оптической осью кристалла. Различие в показателях преломления обуславливает разную длину оптического пути и разность фаз, за счет которой вектор **Е** излучения повернется на угол α . Кроме того, на поворот вектора **Е** излучения влияет оптическая активность кристалла. Так как интенсивность прошедшего излучения за счет нее в 10^3 - 10^4 раз меньше, чем за счет двулучепреломления, то при наличии двулучепреломления $\Delta n = n_o - n_e \neq 0$ оптическая активность почти полностью исключается. При отсутствии двулучепреломления $\Delta n = 0$ оптическая активность проявляется и может достигать большой величины.

На анализатор попадает излучение с вектором **Е** под углом к оси пропускания анализатора, и он пропускает только составляющую, совпадающую с осью пропускания анализатора. Интенсивность прошедшего через анализатор излучения изменяется в зависимости от длины оптического пути и в подавляющей степени зависит от двулучепреломления в кристалле.

Для определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла его поворачивают вокруг его оптической оси, при этом снимают зависимость интенсивности прошедшего излучения от угла поворота. При этом угол падения излучения на систему не меняют, т. е. пропускают излучение по оси оптической системы. В случае поворота кристалла на некоторый угол относительно оптической оси все элементы системы влияют на положение вектора **Е** излучения аналогично, так же, как и в предыдущем случае. Однако длина оптического пути излучения в кристалле и разность фаз между обыкновенным и необыкновенным лучами будут различными в зависимости от угла поворота кристалла. Интенсивность прошедшего излучения зависит в основном от величины двулучепреломления (от разности фаз, пропорциональной углу поворота) и в малой степени от оптической активности кристалла и меняется периодически от 0 до максимального значения в зависимости от угла поворота кристалла. Анализатор пропускает изменяющуюся составляющую прошедшего излучения от 0 до \max . Следовательно, интенсивность прошедшего излучения будет изменяться при различных углах поворота кристалла.

Угловая зависимость интенсивности прошедшего излучения от угла поворота кристалла представляет собой периодически осциллирующую кривую в интервале от 0 до $\pm 40^\circ$, у которой интенсивность излучения имеет несколько максимумов примерно одинакового по амплитуде значения и минимумов, равных нулю. Интенсивность в каждом максимуме за счет оптической активности составляет 10^{-3} - 10^{-4} от интенсивности прошедшего излучения за счет двулучепреломления. Зависимость интенсивности за счет оптической активности от угла поворота совпадает по периоду осцилляций с зависимостью интенсивности за счет двулучепреломления от угла поворота. Из полученной зависимости выбирают угловой интервал в градусах по ширине центрального

максимума между нулевыми значениями интенсивности, который составляет $2-3^\circ$. Следовательно, угловая апертурная характеристика оптической активности кристалла $2-3^\circ$ позволяет использовать пучки с расходимостью $2-3^\circ$.

Достоинством этого способа является возможность определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла для любой длины волны. Кроме того, при определении угловой апертурной характеристики исключаются искажения за счет отсутствия угловой зависимости интенсивности излучения, прошедшего через поляризатор и анализатор. Недостаток этого способа – в большой погрешности измерения апертурного угла, обусловленной присутствием в интенсивности излучения преобладающего значения интенсивности за счет влияния двулучепреломления, максимальное значение которого проявляется для излучения с вектором E , расположенным под углом к оптической оси. Погрешность определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла в данном способе составляет 30-50 %, что приводит к значительной ошибке в выборе угловой расходимости излучения в используемых приборах.

Способ определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла, предложенный в [251], имеет высокую точность определения апертурного угла и низкую погрешность измерений за счет исключения влияния двулучепреломления на интенсивность прошедшего излучения. Это достигается следующим: в способе определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла, предложенном в работе [202], оптическую ось кристалла располагают вдоль оси оптической системы, а ось пропускания поляризатора устанавливают перпендикулярно горизонтальной плоскости. Такое расположение оптической оси кристалла относительно оси оптической системы для определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла позволяет на порядок повысить точность ее определения за счет исключения влияния двулучепреломления на интенсивность прошедшего излучения [129, 130].

Это обусловлено тем, что двулучепреломление за счет совпадения оптической оси кристалла с направлением излучения в кристалле не проявляется и интенсивность прошедшего излучения зависит только от оптической активности кристалла. Исключение влияния двулучепреломления на интенсивность прошедшего излучения как фактора, искажающего угловую апертурную характеристику оптической активности кристалла, позволяет резко повысить точность определения апертурной характеристики. Для определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла используют оптическую систему, ось которой лежит в горизонтальной плоскости. Система содержит поляризатор, оптически активный кристалл и анализатор с осью пропускания, перпендикулярной оси пропускания поляризатора. Поляризатор устанавливают так, что его ось пропускания перпендикулярна горизонтальной плоскости. Кристалл устанавливают так, что его оптическая ось совпадает с осью оптической системы. Одна кристаллофизическая ось кристалла вместе с оптической осью расположены в горизонтальной плоскости. Другая кристаллофизическая ось перпендикулярна им, т. е. является вертикальной кристаллофизической осью кристалла. Анализатор устанавливают так, что его ось пропускания перпендикулярна оси пропускания поляризатора.

Излучение с произвольным состоянием поляризации направляют на оптическую систему вдоль ее оси. После поляризатора вектор **Е** излучения параллелен вертикальной кристаллофизической оси кристалла, и его проекция на оптическую ось равна нулю. В таком случае в кристалле двулучепреломление не проявляется и на излучение влияет только оптическая активность. Под влиянием оптической активности излучение расщепляется на две компоненты, которые циркулярно поляризованы в противоположных направлениях. Они распространяются с разными фазовыми скоростями, соответствующими разным показателям преломления n_l и n_r . Разность фаз двух циркулярно поляризованных компонент равна 2α . На выходе из кристалла компоненты снова складываются и из кристалла выходит линейно поляризованное излучение, но его вектор **Е** повернут на угол α относительно первоначального положения. Угол поворота вектора **Е** определяется формулой:

$$\alpha = \frac{\pi d}{\lambda}(n_l - n_r), \quad (6.2)$$

где d – толщина кристалла; λ – длина волны.

Так как на анализатор попадает излучение с вектором **Е** под некоторым углом к оси пропускания анализатора, то он пропускает только проекцию вектора **Е**, совпадающую с осью пропускания анализатора. Таким образом, интенсивность прошедшего через оптическую систему излучения зависит от оптической активности кристалла.

Для определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла его поворачивают вокруг вертикальной кристаллофизической оси и снимают зависимость интенсивности прошедшего излучения от угла поворота кристалла. При этом угол падения излучения на оптическую систему не меняют, т. е. пропускают излучение по оси системы.

В случае поворота кристалла на некоторый угол относительно вертикальной кристаллофизической оси происходят следующие процессы. После поляризатора на кристалл падает излучение с вектором **Е**, параллельным вертикальной кристаллографической оси, поэтому в нем двулучепреломление не проявляется. Под влиянием оптической активности в направлениях, отличных от оптической оси кристалла, излучение разлагается на две эллиптически поляризованные компоненты [107]. При этом малый эллипс вписан в большой и форма эллипсов одинакова, но направления вращения противоположны. Большие оси эллипсов взаимно перпендикулярны. На выходе из кристалла компоненты снова складываются в линейно поляризованное излучение, но с вектором **Е**, расположенным под углом к исходному положению [107].

В результате поворота кристалла угол поворота вектора **Е** излучения меняется. При этом проекция вектора **Е** прошедшего излучения на ось пропускания анализатора периодически изменяется. Анализатор пропускает изменяющуюся составляющую вектора **Е** прошедшего излучения от максимума до нуля. Следовательно, интенсивность прошедшего через анализатор излучения меняется периодически от максимального значения до нуля в зависимости от угла поворота вектора **Е** и зависит только от оптической активности кристалла.

Полученная зависимость интенсивности прошедшего излучения от угла поворота кристалла представляет собой периодически осциллирующую кривую с постепенно уменьшающимся амплитудным значением интенсивности в максимумах. Уменьшение амплитуды осцилляций происходит вследствие уменьшения оптической активности при отклонении от оптической оси кристалла и проявления в этом случае влияния двулучепреломления на интенсивность прошедшего излучения.

Из полученной зависимости выбирают угловой интервал в градусах по центральному максимуму между нулевыми значениями интенсивности.

В результате эксперимента получена угловая зависимость прошедшего излучения от угла поворота кристалла, которая представляет собой в интервале $\pm 30^\circ$ от оси системы кривую, у которой интенсивность прошедшего излучения имеет максимальное значение при 0° и сохраняет постоянное значение в интервале $\pm 2-3^\circ$ с резким уменьшением до нуля при $\pm 6^\circ$ и последующими осцилляциями с постепенным уменьшением значений интенсивности в максимумах. В полученной зависимости угловая ширина центрального максимума между нулевыми значениями интенсивности прошедшего излучения составляет для данного кристалла 12° .

Следовательно, угловая апертурная характеристика оптической активности кристалла 12° соответствует пучку излучения с угловой расходимостью 12° .

Таким образом, принцип определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла заключается в изменении угла между падающим излучением и оптической осью кристалла (с помощью поворота кристалла вокруг его вертикальной кристаллофизической оси). При этом ось пропускания поляризатора расположена параллельно кристаллофизической оси кристалла, относительно которой кристалл поворачивается. Именно такая настройка оптической системы позволяет исключить влияние двулучепреломления на интенсивность прошедшего излучения как фактора, искажающего угловую апертурную характеристику оптической активности кристалла, и позволяет резко повысить точность определения апертурной характеристики [251].

6.3 Интерференционный способ определения поляризационных свойств волны гирации

Линейно поляризованное излучение, прошедшее оптически активный кристалл вдоль оптической оси, сохраняет свою поляризацию, но при этом меняется азимут выходящего излучения. При отходе от оптической оси в общем случае поляризация прошедшего излучения становится эллиптической [107].

В работе [252] подробно описаны изменения поляризации линейно поляризованного излучения с азимутом $\pm 45^\circ$ к горизонтали после прохождения его через оптически активный дифосфид кадмия (CdP_2) в зависимости от угла падения. Применялась установка с фотодиодом, соединенным с осциллографом [252]. В максимумах и минимумах интенсивности зарегистрирована линейная поляризация $+45$ и -45° . С точки зрения классической оптики переход от одной линейной поляризации к другой, ортогональной первой, осуществляется через различные виды эллиптической поляризации [160,

171, 192], однако для исследуемой в [252] пластинки из дифосфида кадмия данное положение не соблюдается. Увеличение интенсивности от минимума к максимуму при повороте образца происходит не за счет превращения линейной поляризации в эллиптическую с изменением формы и наклона эллипса, а только благодаря повороту плоскости поляризации линейно поляризованного света при отходе от оси на угол $10\text{--}12^\circ$.

Поляризационные свойства волны гирации оптически активного кристалла, например, кварца, можно охарактеризовать с использованием коноскопических картин кристаллов [253]. При изменении угла между оптической осью оптически активной пластинки и падающим лучом в установке [251] изменяется поляризация излучения, прошедшего через пластинку. Если далее на пути этого излучения поставить рассеиватель и кристалл, то после анализатора на экране можно наблюдать коноскопическую картину кристалла, вид которой позволяет оценить поляризацию излучения [142]. При углах поворота оптически активной пластинки (кварца) в интервале $\theta = 0\text{--}5^\circ$ на экране наблюдается коноскопическая картина кристалла ниобата лития, характерная для одноосного кристалла с линейно поляризованным излучением (рис. 6.2 а).

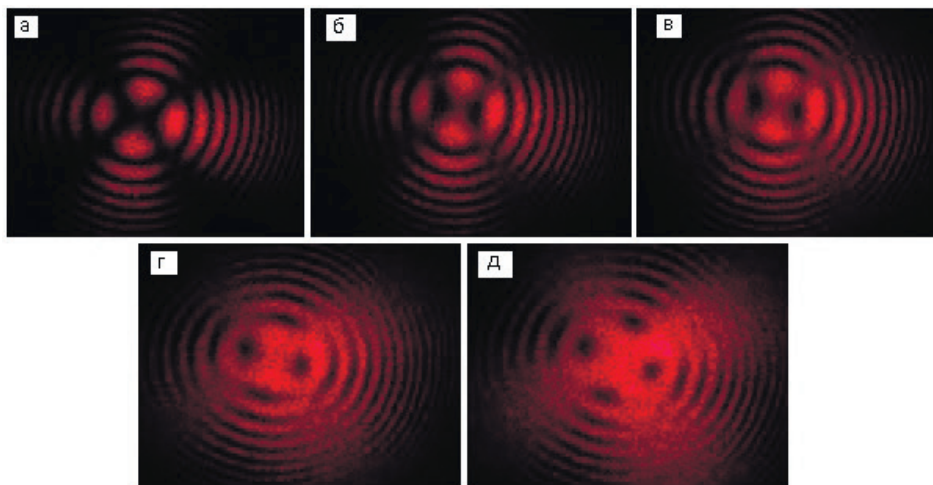


Рисунок 6.2 – Коноскопические картины кристалла ниобата лития. Углы поворота кварцевой пластинки θ (соответствуют рис. 6.1 а): а – $0\text{--}5^\circ$; б – $6\text{--}9^\circ$; в – $9,5\text{--}10^\circ$; г – $11\text{--}13^\circ$; д – 14°

При дальнейшем повороте на угол $\theta = 6\text{--}9^\circ$ коноскопическая картина изменяется, и ее вид соответствует эллиптическому излучению: черный «мальтийский крест» в центральной области начинает распадаться на две части, в периферийной области видна нестыковка изохром (рис. 6.2 б). При углах $\theta = 9,5\text{--}10^\circ$ излучение становится близким к циркулярному, и коноскопическая картина приобретает вид, изображенный на рис. 6.2 в – две черные точки в центре картины между ветвями «мальтийского креста», при переходе через которые интенсивность изохром изменяется с максимальной на минимальную и наоборот. Далее углы поворота $\theta = 11\text{--}13^\circ$ приводят к коноскопической картине снова

с эллиптическим излучением, но с противоположным направлением обхода и большой осью эллипса поляризации, повернутой на 90° (рис. 6.2 г). При угле $\theta = 14^\circ$ интенсивность волны гирации достигает минимума, коноскопическая картина (рис. 6.2 д) соответствует линейно поляризованному излучению с вектором \mathbf{E} , повернутым на 90° относительно первоначального положения. Коноскопические картины оптически активного кристалла парателлурита, наблюдаемые в этих же условиях, приведены на рис. 6.3.

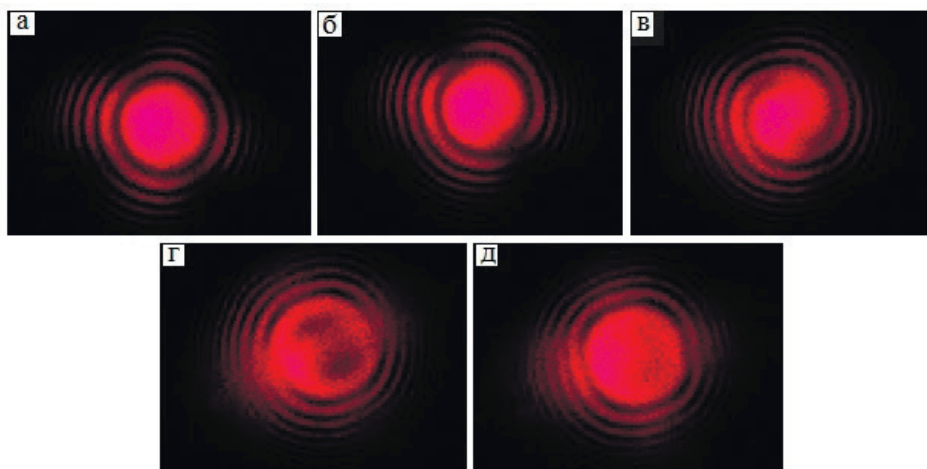


Рисунок 6.3 – Коноскопические картины оптически активного кристалла парателлурита. Углы поворота кварцевой пластинки θ (соответствуют рис. 6.1 а): а – $0-5^\circ$; б – $6-9^\circ$; в – $9,5-10^\circ$; г – $11-13^\circ$; д – 14°

Для коноскопической картины оптически активного кристалла с линейно поляризованным излучением характерно отсутствие «мальтийского креста» в центральной части, что соответствует углам поворота кварцевой пластинки $\theta = 0-5^\circ$ (рис. 6.3 а). Далее изохромы начинают искажаться, «мальтийский крест» исчезает – такой вид коноскопической картины соответствует эллиптическому излучению при $\theta = 6-9^\circ$ (рис. 6.3 б). Углы поворота $\theta = 9,5-10^\circ$ приводят к появлению излучения, проходящего через кварцевую пластинку, близкого к циркулярному, и коноскопическая картина парателлурита приобретает спиралевидную структуру, изображенную на рис. 6.3 в. При отходе от циркулярного излучения при $\theta = 11-13^\circ$ спиралевидная структура искажается, что соответствует эллиптическому излучению, но с противоположным направлением обхода и большой осью эллипса поляризации, повернутой на 90° (рис. 6.3 г). При угле $\theta = 14^\circ$ и минимуме интенсивности волн гирации коноскопическая картина парателлурита (рис. 6.3 д) соответствует линейно поляризованному излучению с вектором \mathbf{E} , повернутым на 90° относительно первоначального положения. Описанный метод может быть использован для визуализации характера поляризации излучения и для быстрого качественного определения степени его поляризации.

6.4 Способ определения направления вращения плоскости поляризации излучения и оптического знака по спиралевидной структуре в коноскопических картинах оптически активных кристаллов

Оптически активные кристаллы могут иметь две энантиоморфные модификации – правую и левую. При этом правые и левые кристаллы одного и того же вещества совершенно одинаковы по физическим свойствам, удельные вращения обеих модификаций равны между собой и отличие состоит только в знаке вращения [105-107]. Угол поворота плоскости поляризации излучения принято оценивать при наблюдении навстречу световому лучу. Если кристалл вращает плоскость поляризации излучения по часовой стрелке (направо), то его называют правовращающим, если против часовой стрелки (налево), его называют левовращающим [105-107]. Общепринято, что знак вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле определяют путем исследования коноскопической (интерференционной) картины кристалла, полученной в поляризованном сходящемся излучении [105-107].

Для оптически активной кристаллической пластинки правой или левой модификации с входной гранью, перпендикулярной оптической оси кристалла, коноскопическая картина с линейно поляризованным излучением представляет собой систему концентрических черных и светлых колец, каждое из которых является проекцией соответствующей области конуса излучения. Кроме того, в периферийной области картины наблюдается черный «мальтийский крест» со сторонами, параллельными осям пропускания поляризатора и анализатора. Возникновение креста обусловлено наличием в каждой области четырех фрагментов излучения с векторами E (обыкновенными для одной пары фрагментов и необыкновенными для другой пары), которые перпендикулярны оси пропускания анализатора. Проекцией такого излучения, задержанного анализатором, является черный крест.

Для активного кристалла в зоне действия его оптической активности черный крест отсутствует и наблюдается чередование однородных колец. В центре зоны действия оптической активности кристалла наблюдается световое пятно, которое является проекцией линейно поляризованного излучения, проходящего по оси конуса, с вектором E , повернутым относительно первоначального положения в результате действия оптической активности кристалла. Следующее черное кольцо является проекцией области линейно поляризованного излучения с вектором E , перпендикулярным оси пропускания анализатора. Соседнее светлое кольцо является проекцией области линейно поляризованного излучения с вектором E , параллельным оси пропускания анализатора.

Проблема определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле заключается в неоднозначности результата для кристаллических пластинок с большой величиной вращения плоскости поляризации излучения, превышающей 180° . Способ определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле, предложенный в работах [106, 107], основан на повороте вектора E излучения, прошедшего по оси кристалла, и на дисперсии (нормальной) вращения

плоскости поляризации излучения в кристалле (по длинам волн). Для определения знака вращения плоскости поляризации излучения в работах [106, 107] использовали оптическую систему, содержащую источник излучения, монохроматический светофильтр (например, красный или зеленый), поляризатор, исследуемую кристаллическую пластинку и анализатор. При этом поляризатор и анализатор являются скрещенными, т. е. их оси пропускания расположены взаимно перпендикулярно. Исследуемая кристаллическая пластинка вырезана из одноосного оптически активного кристалла так, что входная грань пластинки перпендикулярна оптической оси кристалла.

Вначале получают коноскопическую картину путем пропускания сходящегося излучения через оптическую систему с красным светофильтром. В центральной части зоны действия оптической активности крест отсутствует и располагается красное световое пятно.

Далее анализатор поворачивают на угол, при этом коноскопическая картина изменяется и при определенном угле красное пятно в центре картины гаснет. Измеряют угол поворота анализатора от первоначального положения до положения, соответствующего погасанию центрального красного светового пятна. Затем возвращают оптическую систему в исходное состояние, устанавливают зеленый светофильтр и получают коноскопическую картину с линейно поляризованным излучением в виде системы черных и зеленых колец, пересеченных черным «мальтийским крестом» в периферийной области. В центральной части зоны действия оптической активности крест отсутствует и располагается зеленое световое пятно.

Вновь анализатор поворачивают на угол от первоначального положения, коноскопическая картина изменяется и при определенном угле поворота зеленое пятно в центре картины гаснет. Измеряют угол поворота анализатора, соответствующий погасанию центрального зеленого пятна.

Для погасания центрального пятна при красном светофильтре анализатор поворачивают на меньший угол, чем для погасания центрального пятна при зеленом светофильтре. Это обусловлено тем, что угол вращения плоскости поляризации в кристалле для линейно поляризованного излучения, прошедшего красный светофильтр, меньше угла поворота плоскости поляризации в кристалле для излучения с зеленым светофильтром. Поэтому направление вращения анализатора от погасания с красным светофильтром к погасанию с зеленым светофильтром совпадает с направлением вращения плоскости поляризации излучения в исследуемой кристаллической пластинке. Это совпадение позволяет судить о знаке вращения плоскости поляризации излучения в исследуемой пластинке. При повороте плоскости поляризации излучения по часовой стрелке при взгляде навстречу лучу исследуемая кристаллическая пластинка является правовращающей, при повороте против часовой стрелки – левовращающей.

Достоинством способа является достоверность определения знака вращения плоскости поляризации излучения для широкого класса тонких оптически активных кристаллических пластинок с небольшой удельной величиной вращения плоскости поляризации прошедшего излучения.

Однако достоверность определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле снижается для любых толстых кристаллических пластинок и для тонких образцов с большой удельной величиной

вращения плоскости поляризации излучения, превышающей 180° . Снижение достоверности наблюдается в кристаллах, для которых угол между направлениями погасания с красным и зеленым светофильтрами равен 180° или превышает это значение. В этом случае определение направления поворота анализатора от первого погасания ко второму затруднительно в силу равновероятности поворота анализатора по и против часовой стрелки и может привести к ложному результату, т. е., например, правовращающий кристалл может быть определен как левовращающий. Кроме того, достоверность результата снижается за счет необходимости неоднократной настройки оптической системы в процессе исследования одного образца, обусловленной сменой светофильтров и регулировкой положения анализатора.

Способ определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле, основанный на сравнении коноскопических картин при прохождении линейно поляризованного излучения через эталонную и исследуемую кристаллические пластинки, устраняет недостатки вышеописанного аналога [106, 107].

Способ определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле заключается в сравнении коноскопических картин для зон действия оптической активности кристалла, полученных путем пропускания сходящегося линейно поляризованного излучения через эталонную пластинку и через комбинацию эталонной и исследуемой кристаллических пластинок. Вначале получают коноскопическую картину путем пропускания сходящегося линейно поляризованного излучения через оптическую систему с эталонной пластинкой.

Коноскопическая картина с таким излучением представляет собой систему концентрических черных и светлых колец, пересеченных на периферии черным «мальтийским крестом». В зоне действия оптической активности крест отсутствует и в центре располагается серое световое пятно, окруженное черным и светлым кольцами.

Далее за эталонной пластинкой устанавливают исследуемую кристаллическую пластинку и вновь получают коноскопическую картину. При этом в случае, если знак вращения плоскости поляризации излучения в исследуемой пластинке совпадает со знаком вращения излучения в эталонной пластинке, то вид коноскопической картины не меняется как на периферии, так и в зоне действия оптической активности. Наблюдают изменения в толщине черных и светлых колец в коноскопической картине, что обусловлено изменением разности хода лучей из-за увеличения оптического пути, связанного с добавлением исследуемой пластинки. В случае, если знак вращения плоскости поляризации излучения в исследуемой пластинке не совпадает со знаком вращения в эталонной пластинке, то в зоне действия оптической активности вид коноскопической картины меняется.

Коноскопическая картина в зоне действия оптической активности вместо ожидаемого от компенсации прямого черного креста имеет следующий вид.

Фрагменты излучения с направлением колебаний, параллельным оси пропускания поляризатора, смещенные в каждой области, образуют проекцию в виде черной четырехходовой спирали (спирали Эйри). Проекцией фрагментов излучения с направлением колебаний, параллельным оси пропуска-

ния анализатора, являются расположенные взаимно перпендикулярно две светлые фигуры «инь-ян».

При сохранении вида коноскопической картины в зоне действия оптической активности эталонной пластинки при внесении в оптическую систему исследуемой кристаллической пластинки делают вывод, что вращение плоскости поляризации излучения в исследуемой кристаллической пластинке совпадает по знаку с вращением плоскости поляризации излучения в эталонной пластинке.

При изменении вида коноскопической картины в зоне действия оптической активности эталонной пластинки и получения на ней спиралей Эйри в случае внесения в оптическую систему исследуемой кристаллической пластинки делают вывод, что вращение плоскости поляризации излучения в исследуемой кристаллической пластинке противоположно по знаку с вращением плоскости поляризации излучения в эталонной пластинке.

Достоинством способа определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле является более высокая степень достоверности определения знака вращения плоскости поляризации излучения в тонких кристаллических пластинках как с малой, так и с большой величинами удельного вращения плоскости поляризации излучения, превышающей 180° , за счет однозначности установления знака вращения.

Однако достоверность определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле снижается для любых толстых правовращающих и левовращающих кристаллических пластинок с любыми удельными величинами вращения плоскости поляризации излучения. Снижение достоверности в таких кристаллических пластинках обусловлено тем, что толщина толстой пластинки превышает длину когерентности и при прохождении излучения нарушается условие возникновения коноскопической картины. При увеличении толщины пластинки появляется добавочная разность хода между обыкновенным и необыкновенным лучами, которая превышает длину когерентности. Превышение приводит к нарушению корреляции между фазами обыкновенного и необыкновенного лучей, что обуславливает деполяризацию излучения на выходе из кристаллической пластинки. Необходимое условие получения коноскопической картины нарушается. Проекцией такого неполяризованного излучения является серое световое пятно на коноскопической картине.

Следовательно, сравнение коноскопических картин затруднительно в силу равновероятности получения серого светового пятна как в случае одинаковых по знаку вращения эталонной и исследуемой кристаллических пластинок, так и в случае противоположных по знаку вращения эталонной и исследуемой кристаллических пластинок. Это может привести к ложному результату, т. е., например, правовращающий кристалл может быть определен как левовращающий.

Проблема решается разработкой способа [162, 254] определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле, позволяющего с большой степенью вероятности определить знак вращения плоскости поляризации излучения в любой оптически активной кристаллической пластинке как в толстой, так и в тонкой, с любой величиной удельного вращения плоскости поляризации излучения.

Определение знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле можно выполнить, пропуская поляризованное

излучение через исследуемую кристаллическую пластинку. На экране получают коноскопическую картину в виде двух вложенных одна в другую спиралей и при наблюдении навстречу лучу по направлению закручивания ветвей судят о знаке вращения плоскости поляризации излучения. При этом при закручивании ветвей спиралей по часовой стрелке делают вывод о правом вращении плоскости поляризации излучения в исследуемой кристаллической пластинке, при закручивании ветвей спиралей против часовой стрелки – о левом вращении плоскости поляризации излучения в исследуемой кристаллической пластинке (рис. 6.4).

Именно воздействие циркулярно поляризованного излучения на исследуемую кристаллическую пластинку позволяет с большой степенью вероятности определить знак вращения плоскости поляризации излучения в любой по толщине исследуемой кристаллической пластинке.

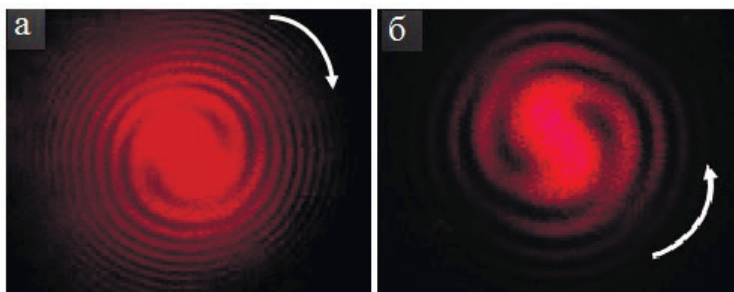


Рисунок 6.4 – Фотографии экспериментально полученных коноскопических картин правовращающего кристалла парателлурита (TeO_2) (а) и левовращающего кристалла иодата лития (LiNbO_3) (б). Толщина кристаллов, мм: а – 3,10; б – 1,18

Для осуществления способа определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле используют оптическую систему, предложенную в работах [162, 254], которая содержит источник излучения, поляризатор, фазовую четвертьволновую пластинку (компенсатор), главные направления которой составляют угол 45° с осью пропускания поляризатора, исследуемую кристаллическую пластинку, анализатор с осью пропускания, перпендикулярной оси пропускания поляризатора, и экран. Исследуемая кристаллическая пластинка вырезана из одноосного оптически активного кристалла так, что входная грань пластинки перпендикулярна оптической оси кристалла. Оптическая ось исследуемой пластинки совпадает с осью оптической системы. О знаке вращения плоскости поляризации излучения в исследуемой кристаллической пластинке **судят** по направлению закручивания ветвей спиралей на полученной коноскопической картине.

Благодаря двойной спирали четко выражено направление закручивания ветвей спиралей, что позволяет однозначно определить знак вращения плоскости поляризации излучения в исследуемой кристаллической пластинке.

При совпадении направления закручивания ветвей спиралей при наблюдении навстречу лучу с направлением поворота по часовой стрелке **делают вывод**, что исследуемая кристаллическая пластинка вращает плоскость поля-

ризации излучения вправо и, следовательно, является правовращающей. При направлении закручивания ветвей спиралей против часовой стрелки делают вывод, что исследуемая кристаллическая пластинка вращает плоскость поляризации излучения влево и, следовательно, является левовращающей.

Эксперимент по определению направления вращения плоскости поляризации проведен для следующих кристаллических пластинок.

Результаты определения знака вращения плоскости поляризации излучения в различных исследуемых кристаллических пластинках приведены в табл. 6.1. Из эксперимента видно, что использование описанного способа определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле позволяет определить знак вращения плоскости поляризации излучения в оптически активной кристаллической пластинке любой толщины.

Одновременно, кроме направления вращения плоскости поляризации излучения, коноскопическая картина в виде двойной спирали позволяет достоверно определить оптический знак оптически активного кристалла любой толщины [165]. Эксперимент показал следующие результаты (табл. 6.1.).

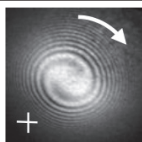
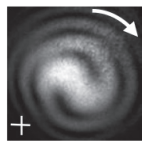
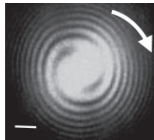
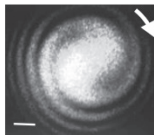
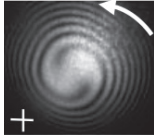
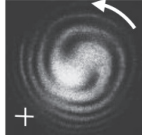
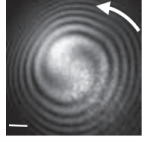
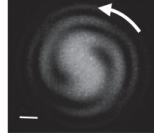
Коноскопическая картина исследуемой правовращающей оптически активной кристаллической пластинки любой толщины – как толстой, так и тонкой, со спиралевидными изохромами, закрученными по часовой стрелке, и с началами спиралей в первом и третьем квадрантах коноскопической картины характеризует правовращающий оптически активный кристалл с оптическим знаком, совпадающим с оптическим знаком компенсатора (в эксперименте – положительным). Следовательно, правовращающий оптически активный кристалл имеет положительный оптический знак.

Коноскопическая картина исследуемой правовращающей оптически активной кристаллической пластинки любой толщины – как толстой, так и тонкой, со спиралевидными изохромами, закрученными по часовой стрелке, и с началами спиралей во втором и четвертом квадрантах коноскопической картины характеризует правовращающий оптически активный кристалл с оптическим знаком, не совпадающим с оптическим знаком компенсатора. Следовательно, правовращающий оптически активный кристалл имеет отрицательный оптический знак.

Коноскопическая картина исследуемой левовращающей оптически активной кристаллической пластинки любой толщины – как толстой, так и тонкой, со спиралевидными изохромами, закрученными против часовой стрелки, и с началами спиралей во втором и четвертом квадрантах коноскопической картины характеризует левовращающий оптически активный кристалл с оптическим знаком, совпадающим с оптическим знаком компенсатора. Следовательно, левовращающий оптически активный кристалл имеет положительный оптический знак.

Коноскопическая картина исследуемой левовращающей оптически активной кристаллической пластинки любой толщины – как толстой, так и тонкой, со спиралевидными изохромами, закрученными против часовой стрелки, и с началами спиралей в первом и третьем квадрантах коноскопической картины характеризует левовращающий оптически активный кристалл с оптическим знаком, не совпадающим с оптическим знаком компенсатора. Следовательно, левовращающий оптически активный кристалл имеет отрицательный оптический знак.

Таблица 6.1 – Определение знака вращения плоскости поляризации излучения и оптического знака оптически активного кристалла

Знак вращения	№ примера	Наименование кристалла	Коноскопическая картина	Характеристика коноскопической картины	Оптический знак				
право-вращающих	1	TeO ₂ 7,0 мм		Двойная спираль началами в 1 и 3 квадрантах <table border="1" data-bbox="738 488 827 568"><tr><td>2</td><td>1</td></tr><tr><td>3</td><td>4</td></tr></table>	2	1	3	4	Положительный
	2	1							
	3	4							
	2	TeO ₂ 0,5 мм		Двойная спираль с началами в 1 и 3 квадрантах	Положительный				
3	LiJO ₃ 3,1 мм		Двойная спираль с началами во 2 и 4 квадрантах	Отрицательный					
4	LiJO ₃ 1,0 мм		Двойная спираль с началами во 2 и 4 квадрантах	Отрицательный					
лево-вращающих	5	TeO ₂ 3,0 мм		Двойная спираль с началами во 2 и 4 квадрантах	Положительный				
	6	TeO ₂ 1,2 мм		Двойная спираль с началами во 2 и 4 квадрантах	Положительный				
	7	LiJO ₃ 3,8 мм		Двойная спираль с началами в 1 и 3 квадрантах	Отрицательный				
	8	LiJO ₃ 0,3 мм		Двойная спираль с началами в 1 и 3 квадрантах	Отрицательный				

6.5 Особенности коноскопических картин кристаллических пластинок различной толщины

В работе [133] приведены коноскопические картины кристаллических пластинок различной толщины, изготовленных из правовращающего кварца ($\rho = 18,86$ град/мм; $n_o = 1,54263$; $n_e = 1,55169$ при длине волны $\lambda = 0,6328$ мкм). Коноскопические картины рассчитаны с помощью формул для интенсивности излучения, прошедшего через пластинку между скрещенными поляризатором и анализатором [107, 131]. Расчеты проведены с применением пакета компьютерной математики Maple [133]. При различной настройке оптической системы «поляризатор – кристаллическая пластинка – анализатор» возможно получение следующих результатов.

1. При вращении исследуемой кристаллической пластинки вокруг вертикальной оси, составляющей угол 45° с осями пропускания поляризатора и анализатора, полученная зависимость интенсивности прошедшего через систему излучения от угла поворота является «сечением» коноскопической картины под углом 45° относительно ветвей черного «мальтийского креста». Особенностью данной зависимости является то, что одновременно проявляются влияние двулучепреломления (интерференция между обычным и необыкновенным лучами) и влияние оптической активности. При распространении излучения вдоль и вблизи оптической оси заметно проявляется влияние оптической активности. В других направлениях, отличных от оптической оси, эффект двулучепреломления значительно превышает влияние оптической активности.

2. Для исследования влияния только оптической активности кристалла на интенсивность излучения, прошедшего через пластинку, используют другую настройку оптической системы, исключаящую влияние двулучепреломления. Ось пропускания поляризатора ориентируют горизонтально и вращают пластинку вокруг вертикальной оси, перпендикулярной оси пропускания поляризатора. В кристалле распространяется только один луч, в данном случае необыкновенный. При этом полученная зависимость – волна гирации – является «сечением» коноскопической картины в области горизонтальной ветви черного «мальтийского креста».

3. Кроме того, целесообразно рассчитать зависимость интенсивности излучения, прошедшего через систему с такой же оптически активной кристаллической пластинкой, но без учета оптической активности, т. е. под влиянием только двулучепреломления (с ориентацией системы, соответствующей случаю 1), и сравнить результаты расчета с экспериментом.

На рис. 6.5 приведены рассчитанные для кристаллов кварца коноскопические картины и зависимости, являющиеся «сечениями» коноскопических картин. Здесь же изображено направление осей пропускания анализатора и поляризатора, а также вектора E после кварцевой пластинки (перед анализатором) и угол поворота вектора E пластинкой. Экспериментально наблюдаемые зависимости коноскопических картин хорошо совпадают с рассчитанными.

Для тонкой пластинки толщиной 1 мм в центре картины отчетливо виден черный «мальтийский крест». Вектор E излучения при распространении

вдоль оптической оси поворачивается на угол $\alpha_n = 18,9^\circ$ от первоначального горизонтального положения. При этом интенсивность прошедшего излучения составляет примерно 10% от максимального значения (расчет всех зависимостей проведен без учета отражения). Оптическая активность проявляется крайне слабо, коноскопическая картина практически не отличается от картины неактивного кристалла. Волна гирации 1 приобретает нулевое значение приблизительно при угле $\theta = 25^\circ$.

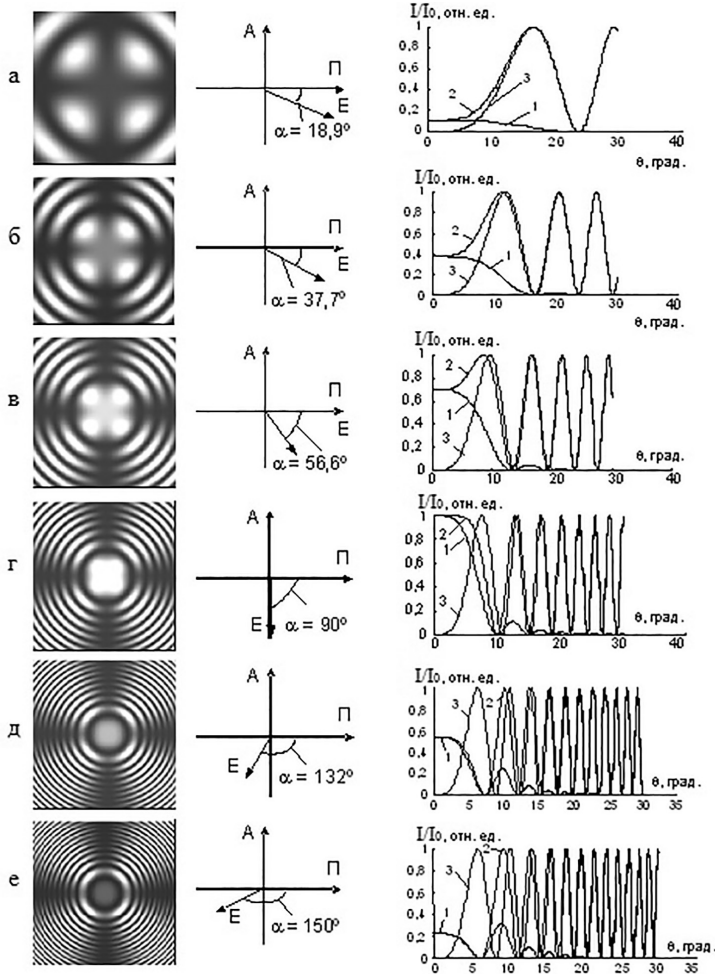


Рисунок 6.5 – Рассчитанные коноскопические картины для кварцевых плоскопараллельных пластинок; направление осей пропускания поляризатора, анализатора и вектора E после кварцевой пластинки; сечения коноскопических картин:

I/I_0 – интенсивность прошедшего через систему «поляризатор – пластинка – анализатор» излучения; θ – угол поворота пластинки. Сечения коноскопических картин: 1 – в области «мальтийского креста» (волна гирации); 2 – под углом 45° по отношению к «мальтийскому кресту»; 3 – под углом 45° без учета влияния оптической активности в кристалле. Толщина пластинки, мм: а – 1; б – 2; в – 3; г – 4,77; д – 7; е – 8

Зависимость 2, характеризующая совместное действие оптической активности и двулучепреломления, и зависимость 3, характеризующая только двулучепреломление, начинают совпадать со значений угла поворота пластинки $\theta = 10\text{--}12^\circ$. Для пластинки толщиной 2 мм вектор **E** излучения при распространении вдоль оптической оси поворачивается на угол $\alpha_n = 37,7^\circ$. Черный крест в центральной части картины светлеет, пропускание в центре картины составляет около 40%. Волна гирации 1 становится более отчетливой, появляются небольшие осцилляции. Минимумы, равные нулю (черные кольца), совпадают для всех трех зависимостей.

Для пластинки толщиной 3 мм вектор **E** излучения при распространении вдоль оптической оси кристалла поворачивается на угол $\alpha_n = 56,7^\circ$. «Мальтийский крест» в центральной части проступает светло-серым цветом. Пропускание излучения в центре картины составляет около 70%. Заметные осцилляции волны гирации 1 заканчиваются примерно для угла $\theta = 25^\circ$. Зависимости 2 и 3 начинают совпадать со значений угла поворота $\theta = 10\text{--}12^\circ$.

Для пластинки толщиной 4,77 мм вектор **E** излучения при распространении вдоль оптической оси поворачивается на угол $\alpha_n = 90^\circ$ и совпадает с осью пропускания анализатора. Пропускание излучения в центре картины составляет 100% (без учета отражения). «Мальтийский крест» в центральной части отсутствует. Волна гирации 1 и зависимость 2 в центральной части отличаются незначительно. Для волны гирации 1 пропускание в первом боковом максимуме составляет около 10%.

Для пластинок толщиной 7 и 8 мм угол $\alpha_n > 90^\circ$, что приводит к уменьшению интенсивности при распространении лучей вдоль оптической оси пластинки. Таким образом, данные результаты позволяют сделать вывод, что влияние оптической активности в кристалле кварца достаточно велико в области углов $\theta = 0\text{--}20^\circ$. Оптически активные кристаллы при небольшой толщине и малой величине удельной оптической активности проявляют свойства, как кристаллы только с двулучепреломлением. При увеличении толщины кристалла влияние оптической активности кристалла на коноскопические картины возрастает. Одной из главных деталей такого влияния является исчезновение «мальтийского креста» по центру коноскопической картины.

Для толстых пластинок, вырезанных параллельно оптической оси кристалла, наблюдается значительная зависимость коноскопических картин от толщины кристалла (рис. 6.6) [161].

Оказалось, что при небольшом повороте стеклянной пластинки, помещенной на столик гониометра перед кристаллической пластинкой КТР (KTiOPO_4) толщиной 7 мм, коноскопическая картина, состоящая из двух систем гипербол, изменяется. При повороте стеклянной пластинки в интервале приблизительно от $+45^\circ$ до -45° , минуя нормальное положение, гиперболы, расположенные горизонтально, одна за другой сходятся в одну точку, расположенную в центре картины, а вертикальные гиперболы – выходят из этой точки.

При обратном повороте стеклянной пластинки происходит противоположное движение гипербол. То есть для любого выбранного направления достаточно быстро меняется порядок интерференционной картины (полосы).

Наиболее вероятно, что это связано с небольшим изменением толщины кристалла, так как при повороте стеклянной пластинки область рассеянного пучка излучения слегка перемещается по кристаллу. Данный эффект может быть полезным, так как дает возможность достаточно точной оценки изменения толщины кристалла (0,1-1 мкм) при перемещении центра рассеянного пучка на небольшие расстояния, порядка 1-2 мм, связанной с неточностью его изготовления.

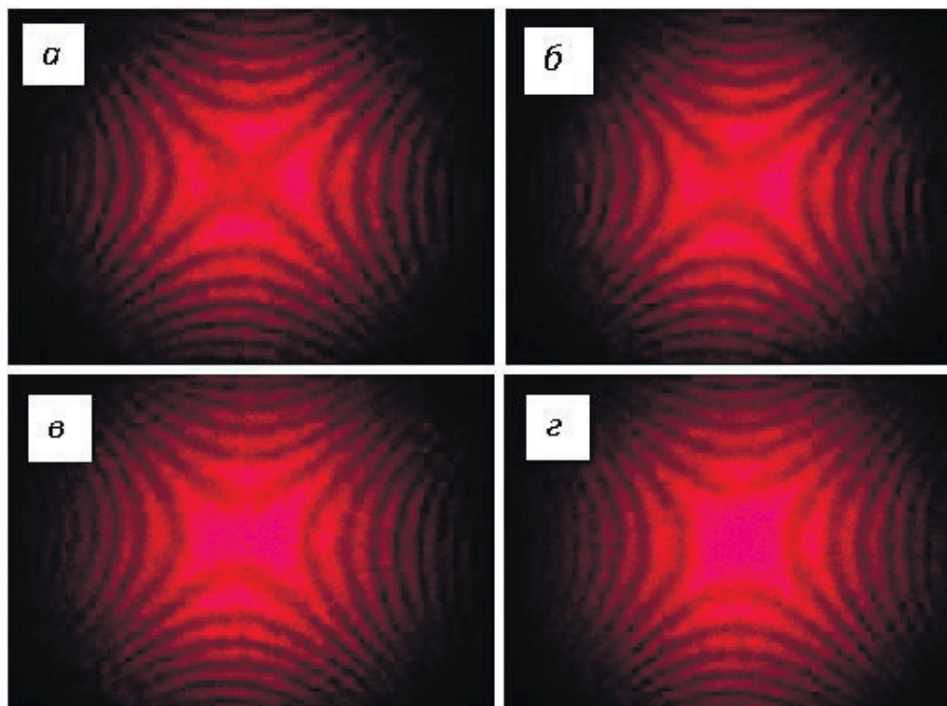


Рисунок 6.6 – Фотографии коноскопических картин кристаллической пластинки КТР (KTiOPO_4) толщиной 7 мм. Угол поворота стеклянной пластинки по отношению к положению a : $б - 2^\circ$; $в - 3^\circ$; $г - 5^\circ$

Коноскопические картины оптически активных кристаллов с циркулярным излучением также проявляют зависимость от толщины в направлении оптической оси кристалла при сохранении спиралевидной структуры в целом, как для правовращающих кристаллов (рис. 6.7 а-д), так и для левовращающих (рис. 6.7 е-з). В центральной области каждой коноскопической картины (рис. 6.7) независимо от толщины в отличие от коноскопических картин с линейным излучением (рис. 6.5) находится световое пятно равномерной интенсивности. При увеличении толщины пластинок возрастает число спиралевидных изохром в поле зрения, расстояния между ними сокращаются. При общем уменьшении масштаба картины уменьшается расстояние в центре поля зрения между окончаниями спиралей-изохром. «Мальтийский крест» слабо просматривается на периферии поля зрения и не зависит от толщины кристаллических пластинок.

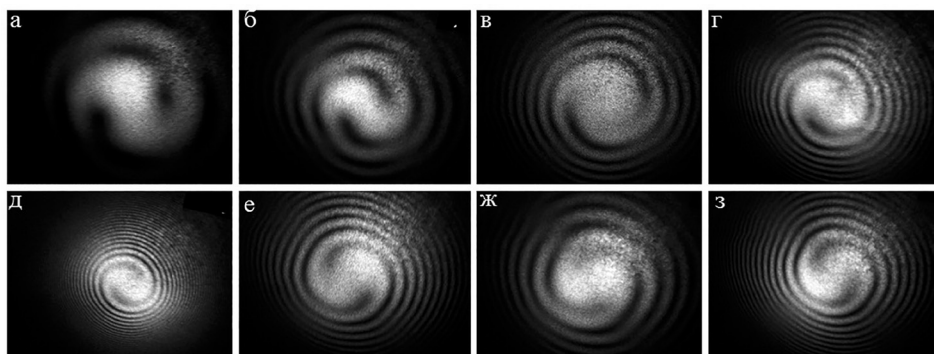


Рисунок 6.7 – Зависимость вида коноскопических картин с циркулярным излучением от толщины в направлении оптической оси кристалла: правовращающий кристалл TeO_2 : а – 0,3 мм; б – 0,5 мм; в – 1,0 мм; г – 3,1 мм; д – 7,0 мм; левовращающий кристалл TeO_2 : е – 3,1 мм; ж – 2,1 мм; з – 3,8 мм

6.6 Способ определения дефектов двулучепреломляющей кварцевой линзы по ее коноскопической картине

Материалом для линз, являющихся одними из основных элементов оптических систем, обычно служит оптическое и органическое стекло. Специальные линзы, предназначенные для работы в УФ-области спектра, изготавливают из анизотропных кристаллов кварца, фтористого лития и других материалов [160, 254].

При описании оптических свойств линзы чаще всего рассматривают лучи, падающие на нее под малым углом к оси, так называемый параксиальный пучок лучей [160, 254]. Интерес представляет случай освещения непараксиальным пучком лучей двулучепреломляющей оптической линзы, например, из кристаллического кварца, помещенной между скрещенными поляризатором и анализатором (рис. 6.8). В нашем эксперименте использована плосковыпуклая оптическая линза, изготовленная из правовращающего кварца и имеющая толщину в направлении оптической оси 3,8 мм, радиус сферической поверхности равен 42,4 см, длина хорды равна 27 мм, фокусное расстояние равно 80 мм.

Для такой линзы на экране за анализатором наблюдают коноскопическую картину [255], подобную коноскопической картине для плоскопараллельной оптической активной пластинки с кольцами-изохромами с центром на оси пучка; черный «мальтийский крест» в центре картины отсутствует. При повороте двулучепреломляющей кварцевой линзы вокруг вертикальной оси на выходе из нее поляризация излучения периодически изменяется от линейной до эллиптической, включая циркулярную. То есть двулучепреломляющую кварцевую линзу можно рассматривать как своеобразную фазовую пластинку с плавным криволинейным профилем. При повороте линзы на 180° вокруг вертикальной оси коноскопическая картина не меняется, а при вращении анализатора коноскопи-

ческая картина плосковыпуклой линзы меняется так, как изменяется картина плоскопараллельной оптически активной пластинки.

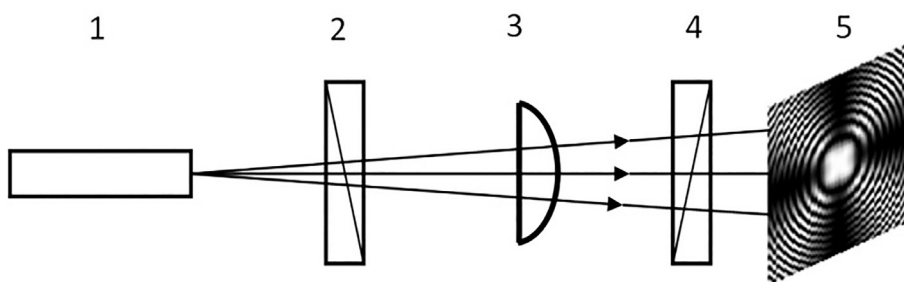


Рисунок 6.8 – Схема оптической системы для определения дефектов двулучепреломляющей линзы: 1 – источник сходящегося монохроматического излучения; 2 – поляризатор; 3 – кварцевая двулучепреломляющая линза; 4 – анализатор; 5 – экран

Экспериментально измеренные зависимости интенсивности прошедшего через поляризатор – плосковыпуклую кварцевую линзу – анализатор излучения ($\lambda = 632,8$ нм) от угла поворота линзы вокруг вертикальной оси приведены на рис. 6.9. Для сравнения на рис. 6.10 приведены аналогичные теоретические зависимости для плоскопараллельной кварцевой пластинки толщиной 3,8 мм.

В оптическом приборостроении кварцевая линза является одним из основных элементов, например, в оптической литографии, в поляризационной технике. Традиционно качество кварцевой линзы определяют интерференционными методами (с использованием параллельного пучка света). Интерференционный метод не требует сложного оборудования, но позволяет определить наличие только поверхностных дефектов кварцевой линзы [197].

Существует проблема определения как поверхностных, так и внутренних дефектов кварцевой линзы с помощью простого доступного оборудования.

Известен способ для определения дефектов любой линзы, как стеклянной, так и кварцевой двулучепреломляющей, предназначенный для обнаружения отступлений от ее правильной сферической поверхности [197]. Для определения дефектов линзы используют устройство, которое содержит последовательно расположенные источник параллельного монохроматического излучения и пробное стекло в виде калибра. Калибр выполнен из стекла, имеющего малый коэффициент расширения, и имеет большую точность по сравнению с исследуемой линзой. Калибр представляет собой пластинку с плоской верхней гранью и вогнутой сферической нижней гранью, радиус кривизны которой определяется с помощью сферометра.

Для определения дефектов исследуемой сферической поверхности линзы на нее устанавливают калибр с образованием воздушной прослойки, ограниченной контактной окружностью линзы и калибра. При этом слой воздуха постепенно утолщается в радиальном направлении от контактной окружности к центру линзы.

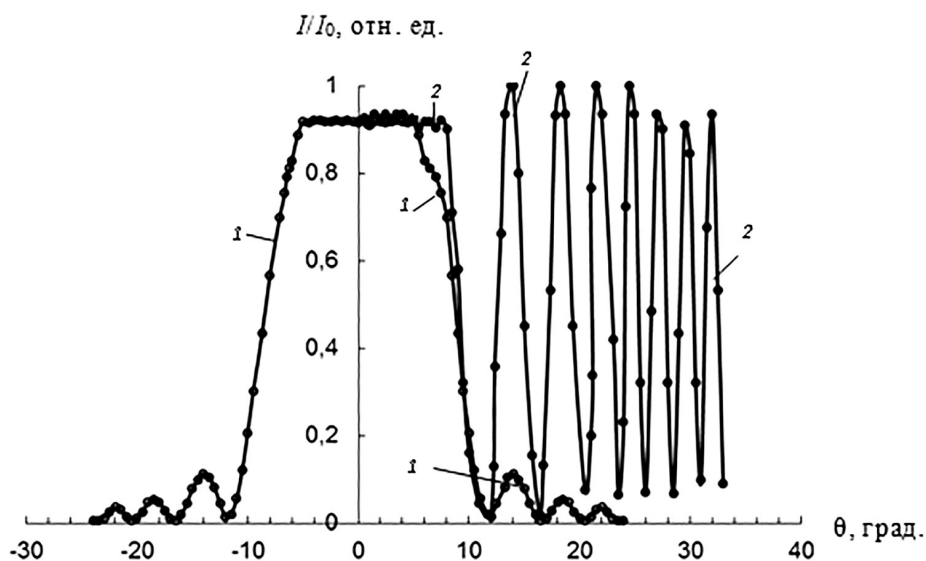


Рисунок 6.9 – Зависимость интенсивности I/I_0 прошедшего через поляризатор – кварцевую линзу – анализатор излучения от угла поворота линзы. Толщина линзы 3,8 мм. При повороте линзы луч перемещается по коноскопической картине: 1 – по «мальтийскому кресту»; 2 – под углом 45° к «мальтийскому кресту»

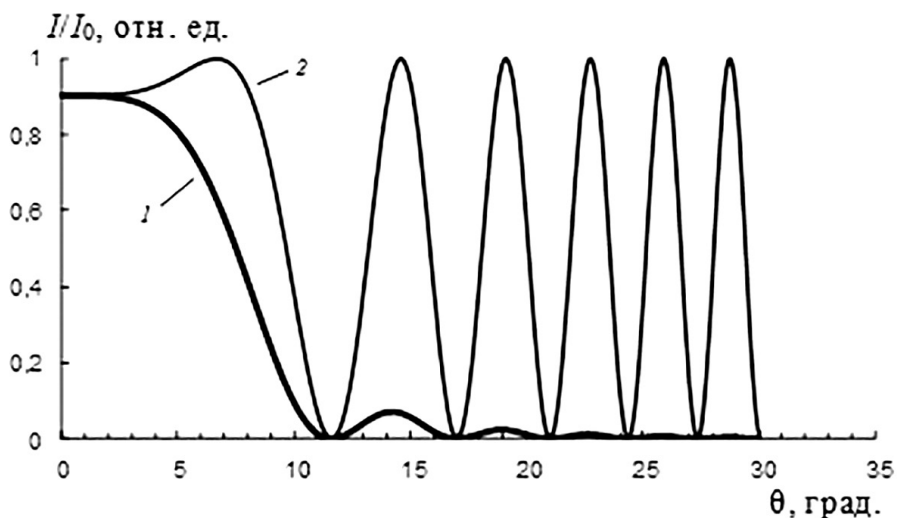


Рисунок 6.10 – Рассчитанная зависимость интенсивности I/I_0 прошедшего через поляризатор – плоскопараллельную кварцевую пластинку – анализатор излучения от угла поворота пластинки (толщина 3,8 мм). Обозначения те же, что на рис. 6.9

Параллельный пучок монохроматического излучения направляют нормально к поверхности калибра. Проходя через калибр, пучки излучения, отраженные от верхней и нижней границ воздушного слоя, интерферируют. При этом в воздушном слое между калибром и линзой наблюдают интерференционную картину в виде полос равной толщины, представляющих собой концентрические светлые и черные кольца, равномерно убывающие по ширине от края к центру.

Для определения дефекта сферической поверхности линзы проводят наблюдение за интерференционной картиной.

При постоянном радиусе каждого интерференционного кольца делают вывод о сферической форме поверхности исследуемой линзы.

При локальном изменении радиуса каждого интерференционного кольца делают вывод о дефекте в сферической поверхности исследуемой линзы.

Данный способ позволяет определить дефект сферической поверхности исследуемой линзы, как стеклянной, так и кварцевой двулучепреломляющей, с точностью до нескольких сотых долей микронов. Однако возможность определения дефекта сферической поверхности исследуемой линзы ограничена небольшим размером исследуемой линзы, что является недостатком известного способа, обусловленным габаритами калибров.

Наиболее близким к вышеописанному способу по совокупности существенных признаков и достигаемому результату является способ определения дефектов двулучепреломляющей линзы [172], как стеклянной, так и кварцевой, также предназначенный для обнаружения отступлений от ее правильной сферической поверхности, который устраняет недостатки вышеописанного аналога. Этот способ определения дефектов линзы осуществляют с помощью устройства, которое содержит установленные перпендикулярно оси оптической системы и последовательно расположенные источник параллельного монохроматического излучения, исследуемую линзу, плоскую стеклянную пластинку, помещенные в измерительный микроскоп.

Для определения дефекта поверхности линзу устанавливают на плоскую стеклянную пластинку таким образом, что выпуклая сферическая поверхность линзы касается пластинки в одной точке в центре поля зрения. Между линзой и стеклянной пластинкой остается воздушная прослойка, которая постепенно утолщается в радиальном направлении от точки соприкосновения линзы и пластинки к краям линзы. Параллельный пучок монохроматического излучения направляют нормально к поверхности линзы. Проходя через линзу и отражаясь от верхней и нижней границ воздушного слоя, пучки излучения интерферируют. При этом в воздушном слое между линзой и стеклянной пластинкой наблюдают интерференционную картину в виде колец Ньютона, представляющих собой концентрические светлые и черные кольца, равномерно убывающих по ширине от центра к периферии.

Для определения дефекта сферической поверхности линзы проводят наблюдение за интерференционной картиной. При постоянном радиусе каждого интерференционного кольца делают вывод о сферической поверхности исследуемой линзы. При локальном изменении радиуса каждого интерференционного кольца делают вывод о дефекте в сферической поверхности исследуемой линзы.

Данный способ позволяет определить дефект сферической поверхности исследуемой линзы любых размеров, как стеклянной, так и кварцевой

двулучепреломляющей, с точностью до нескольких сотых долей микронов. Однако данный способ позволяет определить только дефекты поверхности линзы, что является недостатком. Это обусловлено интерференцией пучков излучения на воздушной прослойке между исследуемой линзой и стеклянной пластинкой.

В изобретении [256] разработан способ определения дефектов кварцевой двулучепреломляющей линзы, который позволяет выявлять не только поверхностные дефекты линзы, но и ее внутренние дефекты за счет разделения пучка излучения на два луча в самой кварцевой двулучепреломляющей линзе. Для решения поставленной задачи пропускают сходящееся монохроматическое излучение через оптическую систему, содержащую перпендикулярно установленные к ее оси последовательно расположенные источник излучения, скрещенные поляризатор и анализатор, между которыми устанавливают исследуемую кварцевую двулучепреломляющую линзу, оптическая ось которой совмещена с осью оптической системы. При этом коноскопическую картину получают по локальному искажению радиусов колец. О наличии поверхностного или внутреннего дефекта линзы, связанного с неоднородностью показателей преломления, судят по разрыву колец со смещением их относительно центра, пересеченных черным «мальтийским крестом».

Благодаря существенным отличительным признакам такой способ определения дефектов позволяет выявить в кварцевой линзе не только поверхностные дефекты, но и внутренние, связанные с неоднородностью показателей преломления. Это обусловлено тем, что лучи сходящегося монохроматического пучка разделяются на два луча в кристаллической кварцевой линзе и при наличии на пути лучей неоднородности показателей преломления происходит изменение фазового сдвига. Таким образом, при одинаковом пути, пройденном в линзе, часть лучей, проходящих в среде с показателями преломления n_e и n_o , имеет один фазовый сдвиг Δ_1 , а другая часть лучей, проходящих в среде с показателями преломления n'_e и n'_o , имеет другой фазовый сдвиг Δ_2 . Это приводит к разрыву колец со смещением на коноскопической картине, по которому судят о наличии внутреннего дефекта кварцевой линзы.

Для осуществления способа определения дефектов кварцевой двулучепреломляющей линзы используют оптическую систему, которая содержит последовательно расположенные источник сходящегося монохроматического излучения, поляризатор, исследуемую кварцевую двулучепреломляющую линзу, анализатор и экран (рис. 6.8). Все элементы системы установлены перпендикулярно ее оптической оси. Оси пропускания поляризатора 2 и анализатора 4 расположены взаимно перпендикулярно. Исследуемая линза 3 вырезана из кристалла кварца. Оптическая ось исследуемой кварцевой двулучепреломляющей линзы 3 совпадает с осью оптической системы.

В случае отсутствия поверхностного или внутреннего дефектов коноскопическая картина представляет собой систему концентрических черных и светлых колец-изохром с центром на оси системы с черным «мальтийским крестом». Каждое кольцо-изохрома, являясь линией одинакового фазового сдвига, соответствует конусу лучей с одинаковым углом падения α . Стороны «мальтийского креста» совпадают с осями пропускания поляризатора 2 и анализатора 4 и делят поле картины на четыре квадранта. При постоянном радиусе каждого кольца-и-

зохромы коноскопической картины делают вывод о сферической поверхности исследуемой линзы 3 и отсутствии внутренних дефектов.

В случае поверхностного дефекта кварцевой двулучепреломляющей линзы 3 изменяется путь, пройденный в пределах дефекта частью лучей из сходящегося конического пучка с углом падения α , что приводит к разному фазовому сдвигу для лучей этого пучка. При изменении фазового сдвига происходит локальное искажение радиуса каждого кольца-изохромы коноскопической картины, по которому делают вывод о наличии дефекта сферической поверхности исследуемой линзы 3.

В случае локальной неоднородности показателей преломления кварцевой двулучепреломляющей линзы 3 изменяется разность показателей преломления ($n_e - n_o$) для лучей из сходящегося конического пучка с углом падения α , проходящих через данную неоднородность. Фазовый сдвиг для лучей данного пучка становится различным (Δ_1 и Δ_2). При изменении фазового сдвига для этих лучей происходит разрыв колец-изохром со смещением их относительно центра коноскопической картины, по которому делают вывод о наличии внутреннего дефекта кварцевой двулучепреломляющей линзы 3.

Коноскопическая картина составной двояковыпуклой линзы из правовращающего кварца, состоящей из двух одинаковых плосковыпуклых линз (толщина по оси равна 6,2 мм, радиус сферической поверхности равен 78 мм, длина хорды – 26 мм, фокусное расстояние равно 61 мм), значительно отличается от традиционной для плоскопараллельной кварцевой пластинки (рис. 6.11 а).

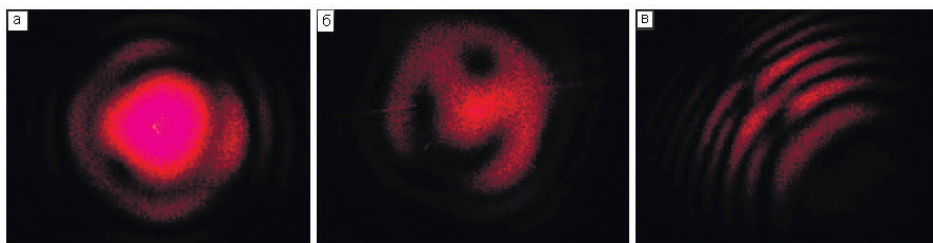


Рисунок 6.11 – Коноскопическая картина с линейным излучением составной двояковыпуклой линзы толщиной по оси 6,2 мм: а – при скрещенных поляризаторе и анализаторе; б – при угле 45° между осями пропускания поляризатора и анализатора; в – разрыв и нестыковка изохром в области «мальтийского креста»

В коноскопической картине (рис. 6.11 а) имеют место следующие аномалии: фрагмент первой от центра изохромы между ветвями «мальтийского креста» несколько вытянут и не является дугой окружности, что повторяется на следующих изохромах. В области черного «мальтийского креста» наблюдается нестыковка изохром. При этом характер искажений различен и более резко выражен на ветви креста, параллельной оси пропускания анализатора. При повороте линзы вокруг вертикальной оси на 180° искажения на ветвях «мальтийского креста» сохраняют свой характер, коноскопическая картина не меняется. При вращении анализатора изменение коноскопической картины двояковыпуклой кварцевой линзы отличается от изменений картины кварцевой плоскопараллельной пла-

стинки и имеет аномалии. Например, при угле 45° между осями пропускания поляризатора и анализатора на коноскопической картине из четырех точек в центральной части картины присутствует только одна точка, а три другие точки объединены в дугу (рис. 6.11 б). В области одной из ветвей «мальтийского креста» наблюдаются разрыв и нестыковка изохром (рис. 6.11 в), на рис. 6.11 а соответствующая область является затененной.

Наиболее вероятной причиной данных аномалий, проявляющихся в поляризованном сходящемся излучении, является некоторая несоосность линз, образующих исследуемую составную двулучепреломляющую линзу.

6.7 Спирали Эйри. Интерференционные явления в системе из нескольких оптических элементов

Спирали Эйри имеют вид четырехходовой спирали, которая наблюдается для двух установленных соосно оптически активных пластинок с противоположным знаком вращения, например, для пластинок из кварца в поляризационном микроскопе [105-107], для двух пластинок из парателлурита (рис. 6.12). Направление закручивания ветвей четырехходовой спирали при взгляде навстречу лучу (правое, по часовой стрелке) (рис. 6.12) соответствует направлению вращения плоскости поляризации кристаллом, расположенным в оптической системе ближе к экрану.

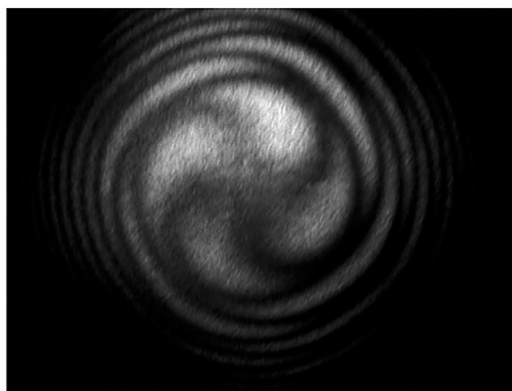


Рисунок 6.12 – Спирали Эйри с линейным излучением для двух пластинок TeO_2 с противоположным знаком вращения – ближе к экрану расположена правовращающая пластинка

Оказалось, что одним из оптических компонентов для получения спиралей Эйри может быть не только оптически активная плоскопараллельная пластинка, но и двулучепреломляющая оптически активная линза. При рассматривании комбинации из правовращающей плосковыпуклой кварцевой линзы и левовращающей плоскопараллельной пластинки TeO_2 в сходящемся излучении через анализатор также наблюдают своеобразную коноскопическую картину – спирали Эйри (рис. 6.13, 6.14). При этом оптические оси линзы и пластинки сонаправлены между собой и осью оптической системы. Направление закручивания

ветвей четырехходовой спирали при взгляде навстречу лучу (против часовой стрелки, левое) совпадает с направлением вращения плоскости поляризации в пластинке (в данном случае левовращающая пластинка TeO_2), расположенной ближе к экрану (рис. 6.13 а, б).

При расположении ближе к экрану правовращающей кварцевой линзы спирали Эйри на экране закручиваются по часовой стрелке – вправо. При повороте поляризатора от положения, скрещенного с анализатором, спирали Эйри (с линейно поляризованным излучением) изменяют свою конфигурацию (рис. 6.14).

Спиральи Эйри наблюдаются и в системе, состоящей из кристаллических пластинок оптически неактивного LiNbO_3 и оптически активного TeO_2 (рис. 6.15), при этом направление закручивания спиралей (правое, по часовой стрелке, рис. 6.15 а) соответствует правовращающему TeO_2 , расположенному ближе к экрану. На рис. 6.15 б направление закручивания спиралей противоположное, хотя ближе к экрану расположен оптически неактивный кристалл LiNbO_3 .

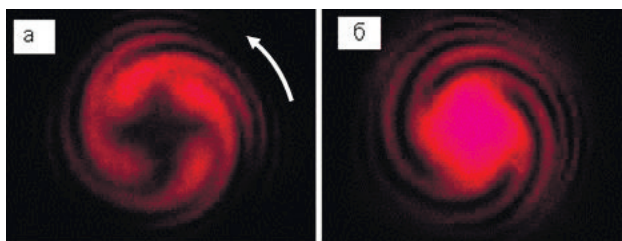


Рисунок 6.13 – Спиральи Эйри для системы из правовращающей плосковыпуклой кварцевой линзы и левовращающей плоскопараллельной пластинки TeO_2 : а – в скрещенных поляризаторе и анализаторе; б – в параллельных поляризаторе и анализаторе. Пластика TeO_2 расположена ближе к экрану

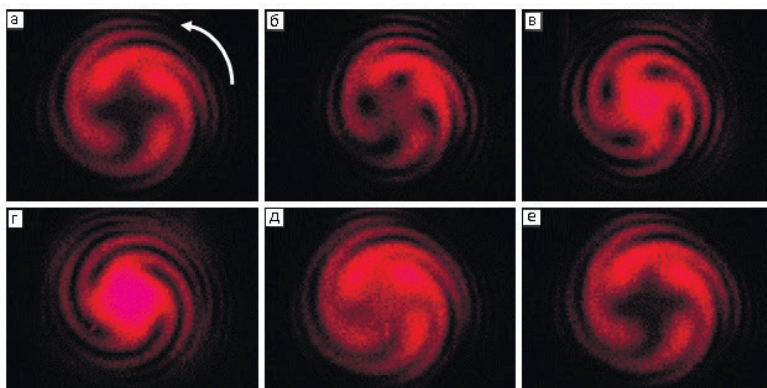


Рисунок 6.14 – Серия фотографий спиралей Эйри для комбинации из левовращающего парателлурита (TeO_2) толщиной 3 мм (ближе к экрану) и правовращающей плосковыпуклой кварцевой линзы толщиной 3,8 мм с линейно поляризованным излучением при повороте поляризатора. Угол между осями пропускания поляризатора и анализатора: а – 90° ; б – 120° ; в – 135° ; г – 180° ; д – 255° ; е – 270°

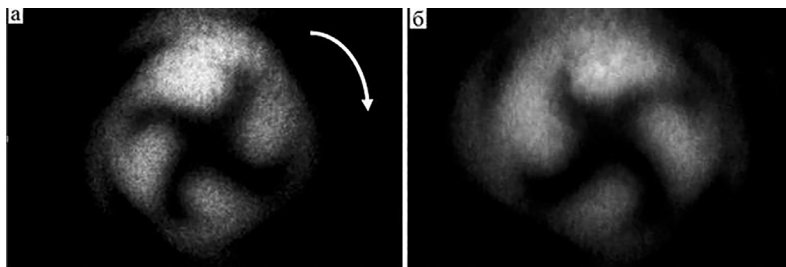


Рисунок 6.15 – Спирали Эйри для комбинации монокристаллов – правовращающего TeO_2 и оптически неактивного LiNbO_3 : а – TeO_2 расположен ближе к экрану; б – LiNbO_3 расположен ближе к экрану

При размещении между поляризатором и комбинацией пластинки и линзы фазовой пластинки $\lambda/4$ возможно получение спиралей Эйри с циркулярно и эллиптически поляризованным излучением (при вращении фазовой пластинки вокруг вертикальной оси (рис. 6.16).

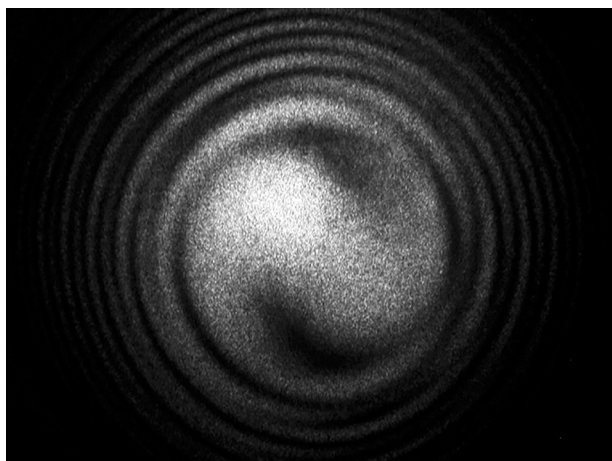


Рисунок 6.16 – Спирали Эйри с циркулярным излучением для двух кристаллов TeO_2 с противоположными знаками вращения – правовращающий образец расположен ближе к экрану

Спирали Эйри с циркулярным излучением (рис. 6.17 а, б) становятся двухходовой спиралью, направление закручивания которой (по часовой стрелке, правое) соответствует направлению вращения плоскости поляризации излучения пластинкой, расположенной ближе к экрану.

Система из двух пластинок парателлурита (TeO_2) одинаковой толщины, одна из которых вырезана параллельно оптической оси, вторая – имеет небольшой угол между нормалью к входной грани и оптической осью, дает коноскопическую картину, приведенную на рис. 6.18 а.

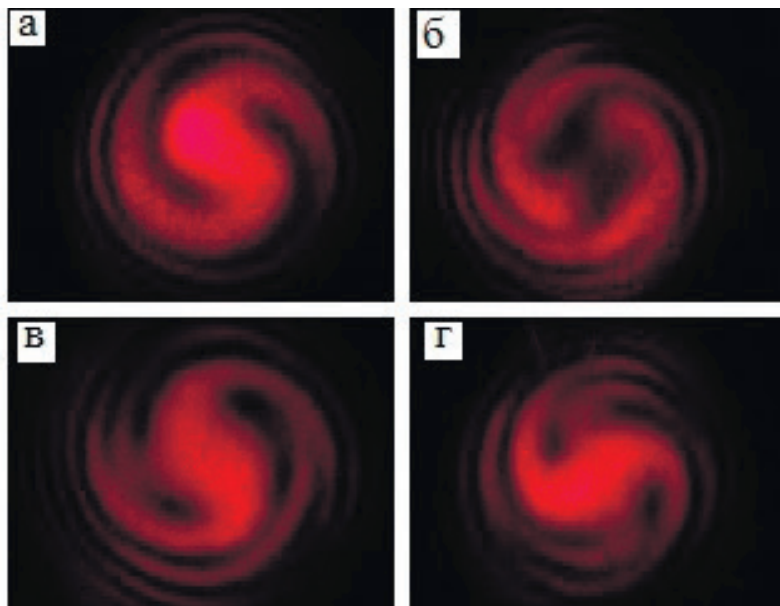


Рисунок 6.17 – Спирали Эйри для комбинации из левовращающей пластинки TeO_2 (ближе к экрану) и правовращающей кварцевой плосковыпуклой линзы: а – с правоциркулярным излучением; б – с левоциркулярным излучением; в, г – с эллиптическим излучением

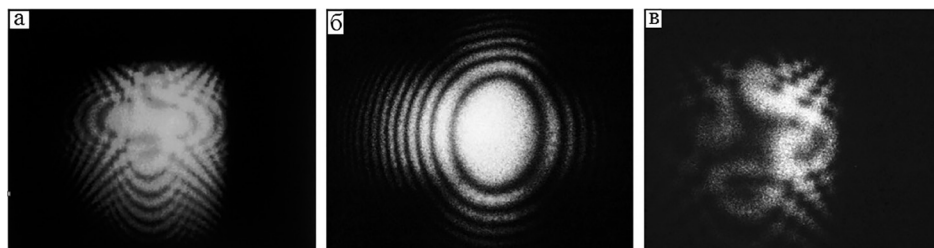


Рисунок 6.18 – Коноскопическая картина в системе из двух пластинок TeO_2 (а), каждая толщиной 3 мм; коноскопическая картина пластинки TeO_2 с небольшим углом между нормалью к грани и оптической осью (б); увеличенный фрагмент коноскопической картины в системе из обеих пластинок (в)

Коноскопическая картина первой пластинки, вырезанной параллельно оптической оси, содержит два семейства гипербол, которые сохраняются и на коноскопической картине в системе из двух пластинок (рис. 6.18 а). На коноскопической картине второй пластинки, нормаль к входной грани которой образует небольшой угол с оптической осью, изохромами являются не окружности, а эллипсы с вертикально расположенной большой осью. Черный «мальтийский крест» просматривается на периферии поля зрения (рис. 6.18 б). Особенностью рис. 6.18 а является то, что на коноскопической

картине в системе из двух пластинок появляется вторая система эллипсов с горизонтально расположенными большими осями. Эллипсы и гиперболы, пересекаясь в поле зрения коноскопической картины, дают структуру, фрагмент которой приведен на рис. 6.18 в.

При освещении интерференционно-поляризационного светофильтра Шольца, состоящего из нескольких пластинок, вырезанных параллельно оптической оси, сходящимся пучком излучения на экране получают коноскопические картины [159].

Действие интерференционно-поляризационного светофильтра (ИПФ) основано на интерференции поляризованных лучей света. ИПФ позволяют получить узкие полосы пропускания, ширина которых доходит до долей нанометра, при практически полном отсутствии фона.

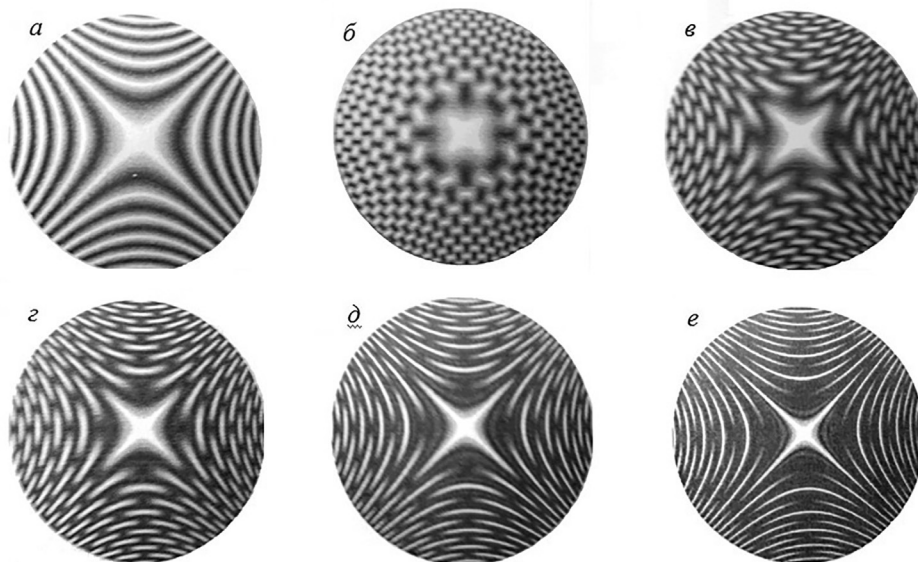


Рисунок 6.19 – Рассчитанные коноскопические картины фильтра Шольца: а – с одной пластинкой; б – с двумя пластинками; в – с тремя пластинками; г – с четырьмя пластинками; д – с шестью пластинками; е – с десятью пластинками. Пластины изготовлены из ниобата лития ($d = 0,9$ мм) [159]

6.8 Применение лазерной коноскопии для количественной оценки механических напряжений в одноосных кристаллах

Авторами [257-259] при исследованиях оптической однородности монокристаллов парателлурита и ниобата лития технические преимущества лазерной коноскопии были дополнены использованием математического аппарата для обнаружения тонких оптических аномалий в исследованных кристаллах, а также для численной оценки вариаций показателей прелом-

ления и механических напряжений, вызывающих искажения оптической индикатрисы. Экспериментальные исследования различных оптических аномалий подтверждены расчетами на основе теоретического анализа, приведенного в работе [259]. Теоретически показано, что в методе коноскопии в общем случае произвольной ориентации оптической оси и нормали к поверхности кристалла изохромы должны описываться кривыми четвертого порядка и выше. Экспериментально продемонстрировано существование такого типа изохром. Приводятся примеры компьютерного расчета системы уравнений, описывающих формы изохром. Представленный метод позволяет анализировать не только грубые аномалии в кристаллах, но и очень слабые искажения оптической индикатрисы, соответствующие малым вариациям показателей преломления обыкновенного и необыкновенного лучей. В частности, для коноскопической картины кристалла парателлурита были получены вариации показателей преломления до $7 \cdot 10^{-6}$, что находится на уровне точности определения этих величин, задаваемым ГОСТом и ИСО. Коноскопические картины исследованных в [257-259] кристаллов были получены в коническом пучке линейно-поляризованного лазерного излучения, за кристаллом находится анализатор, изображение проецируется на полупрозрачный матовый экран и фотографируется цифровой камерой. Изображение изохром реального кристалла вводится в компьютерную программу, которая сравнивает его с изображением изохром, рассчитанным теоретически для идеального кристалла. Программа вычисляет разности хода между точками соседних изохром и находит вариации показателей преломления в реальном кристалле. Далее рассчитывается механическое напряжение в кристалле в области с аномалией с помощью уравнения, описывающего пьезооптический эффект [260].

Информация об аномалиях и их расположении в материале важна при оптимизации условий выращивания монокристаллов, так как позволяет анализировать дефекты, индуцированные во время процесса роста кристаллов и послеростовой тепловой обработки или механическими напряжениями, возникающими в процессе резки, полировки и сборки оптических компонентов. Данный метод позволяет анализировать технически важные кристаллические булы большого размера, часто превышающие 5-10 см по длине и диаметру, непригодные для исследования в обычных поляризационных оптических микроскопах.

Глава 7 КОНОСКОПИЧЕСКИЕ КАРТИНЫ РЕАЛЬНЫХ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ

Поскольку эффект фоторефракции максимален в сине-зеленой области спектра, то для сравнения коноскопические картины кристаллов ниобата лития были зарегистрированы при возбуждении излучением He-Ne лазера ($\lambda_0 = 632,8$ нм) и излучением второй гармоники лазера Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532$ нм) малой мощности ($P = 1$ мВт), не вызывающим эффекта фоторефракции, а также более мощным излучением лазера Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532$ нм, $P = 90$ мВт). При облучении исследованных нами кристаллов излучением 632,8 нм и 532 нм ($P = 1$ мВт) фоторефрактивный эффект отсутствует и не наблюдается раскрытие индикатрисы фотоиндуцированного рассеяния света (ФИРС). В этом случае коноскопические картины отражают состояние структурной дефектности кристалла в отсутствие эффекта фоторефракции. При возбуждении излучением лазера Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532$ нм, $P = 90$ мВт) в коноскопических картинах проявляются как собственная дефектность кристалла (определяемая составом и условиями выращивания кристалла), так и дефектность, наведенная лазерным излучением. Для исследования влияния фоторефрактивного эффекта на коноскопические картины, кристаллы предварительно облучались лазерным излучением мощностью ~ 160 мВт.

Использованная нами экспериментальная установка для коноскопических исследований подробно описана в работах [118, 124, 261, 262]. При проведении коноскопического эксперимента монокристаллический образец устанавливался на подвижном двухкоординатном оптическом столике, что позволяло сканировать всю плоскость входной грани лазерным лучом и получить множество коноскопических картин, соответствующих различным участкам поперечного сечения исследуемого образца. Оси пропускания поляризатора и анализатора ориентировались перпендикулярно друг к другу. При этом ось пропускания поляризатора составляла угол 45° с вертикалью. Ось лазерного пучка совпадала с оптической (полярной) осью кристалла и была перпендикулярна к его входной грани. Коноскопическая картина исследуемого образца регистрировалась на полупрозрачном экране цифровой фотокамерой.

Ниже приведены результаты исследований коноскопических картин монокристаллов LiNbO_3 конгруэнтного ($\text{Li/Nb} = 0,946$) и стехиометрического ($\text{Li/Nb} = 1$) составов, а также конгруэнтных кристаллов, легированных катионами: Mg^{2+} (0,86 вес.%), Zn^{2+} (0,03, 0,52, 0,62), Cu^{2+} (0,015), V^{3+} (0,12), Gd^{3+} (0,51), Y^{3+} (0,46), Gd^{3+} (0,23): Mg^{2+} (0,75), Mg^{2+} (0,86): Fe^{3+} (0,0036), Ta^{5+} (1,13): Mg^{2+} (0,011), Y^{3+} (0,24): Mg^{2+} (0,63). Эти кристаллы отличаются сравнительно низким эффектом фоторефракции. В кристаллах с низким эффектом фоторефракции в отличие от кристаллов с высоким эффектом фоторефракции многие оптические искажения, связанные с прохождением лазерного излучения через кристалл, не «замазаны» сильной деструкцией лазерного луча, обусловленной эффектом фоторефракции, и уверенно на-

блюдаемы. Данные кристаллы перспективны в качестве материалов для преобразования широкополосного и когерентного оптического излучения, голографии, электрооптических модуляторов и оптических затворов.

7.1 Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 конгруэнтного состава

Для исследований были взяты кристаллы LiNbO_3 конгруэнтного состава, выращенные из разной шихты. Шихта для кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №1 и $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №2 получена из Nb_2O_5 при его экстракционном выделении с использованием в качестве экстрагента циклогексанона (ЦГН шихта). Кристаллы $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №1 и $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №2 вырезаны из разных частей монокристаллической були одного кристалла. Для получения шихты для кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №3 и $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №4 в качестве экстрагентов дополнительно использовались диметиламиды карбоновых кислот (ЦГН+А шихта). Кристаллы $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №3 и $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №4 - до и после отжига в закороченном состоянии соответственно. Кристаллы $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №5 и $\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №6 получены из негранулированной шихты, до и после отжига в закороченном состоянии соответственно.

Образец для исследования монокристалла LiNbO_3 конгруэнтного состава (№1 ЦГН шихта) вырезан из средней части монокристаллической були и имеет толщину в направлении оптической оси $\sim 4,27$ мм. При сканировании входной грани образца при мощности излучения ~ 1 мВт получены два вида коноскопических картин. Первый вид коноскопических картин соответствует одноосному кристаллу, рис. 7.1 (1), – на фоне концентрических колец-изохром ветви «мальтийского креста», сформированные двумя изоггирами минимальной интенсивности, пересекаются в центре поля зрения, перпендикулярны друг другу и совпадают с осями пропускания поляризатора и анализатора. На коноскопической картине другого вида, рис. 7.1 (2), разрыв черного «мальтийского креста» в центре картины и просветление в области некоторого углового диаметра являются признаком незначительной аномальной двуосности кристалла. При этом изохромы практически сохраняют форму концентрических окружностей. Увеличение мощности лазерного излучения, используемого в эксперименте, до 90 мВт (рис. 7.1 (3)–(5)) приводит к определенному усилению контраста и четкости изображения. На правой верхней и левой нижней ветвях «мальтийского креста» наблюдаются аномалии в виде дополнительных интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины кристалла. Фрагменты коноскопической картины с наблюдающимися аномалиями представлены в увеличенном масштабе на рис. 7.1 (4), (5). Наличие двух видов коноскопических картин, полученных при сканировании образца по поверхности входной грани ($P \sim 1$ мВт), а также дополнительных интерференционных аномалий на коноскопической картине при $P \sim 90$ мВт свидетельствуют об некоторой оптической неоднородности исследуемого монокристаллического образца.

Для сравнения был вырезан образец для исследования из другой части монокристаллической були этого же монокристалла LiNbO_3 конгруэнтного состава ($\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$ №2 ЦГН шихта). При сканировании входной грани образца при

мощности излучения ~ 1 мВт получены два вида коноскопических картин. Первый вид коноскопических картин полностью соответствует одноосному кристаллу, рис. 7.2 (1), что указывает на оптическую однородность данного образца и его хорошее оптическое качество. На коноскопической картине другого вида, рис. 7.2 (2), имеются незначительные аномалии в виде присутствия на фоне основной коноскопической картины дополнительных интерференционных полос. Указанные аномалии наблюдаются на верхней правой ветви «мальтийского креста» и в увеличенном масштабе представлены на рис. 7.2 (3). При увеличении мощности лазерного излучения, используемого в эксперименте, до 90 мВт (рис. 7.2 (4)-(9)) происходит некоторое усиление контраста изображения. На коноскопической картине, представленной на рис. 7.2 (4) незначительные дополнительные интерференционные аномалии присутствуют в правой полуплоскости коноскопической картины кристалла, рис. 7.2 (4)-(6). При сканировании по плоскости входной грани была получена коноскопическая картина, на которой наблюдаются незначительные аномалии в нижней полуплоскости коноскопической картины, рис. 7.2 (7)-(9). Кроме того, наблюдается незначительное просветление в центре «мальтийского креста». Фрагменты коноскопической картины с аномалиями в виде дополнительных интерференционных полос представлены в увеличенном масштабе на рис. 7.2 (8), (9). В целом все коноскопические картины, полученные для образца LiNbO_3 конгруэнтного состава (№2 ЦГН шихта), отвечают стандартным коноскопическим картинам одноосного кристалла и свидетельствуют об оптической однородности и хорошем оптическом качестве исследуемого монокристалла. Увеличение мощности лазерного излучения, используемого в эксперименте, до 90 мВт не приводит к значительным искажениям коноскопических картин.

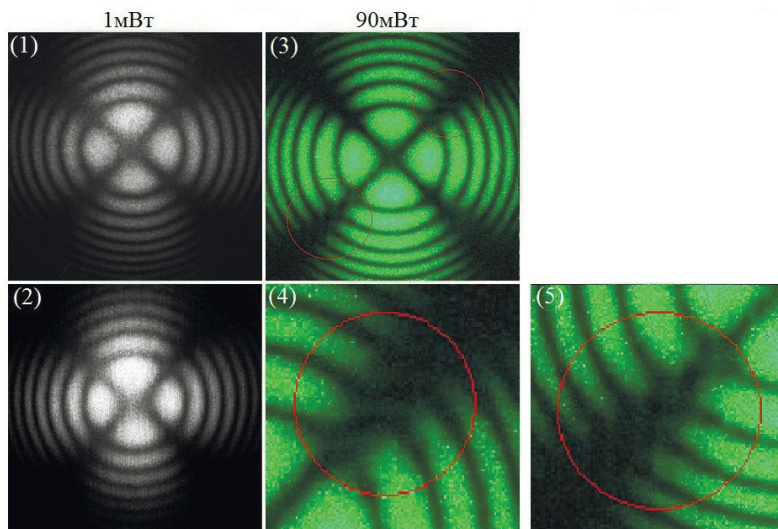


Рисунок 7.1 – Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 (№1 ЦГН шихта). $\lambda_0 = 632,8$ нм. $P = 1$ мВт (1), (2) и $\lambda_0 = 532$ нм, $P = 90$ мВт (3)-(5). (4), (5) - аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе.

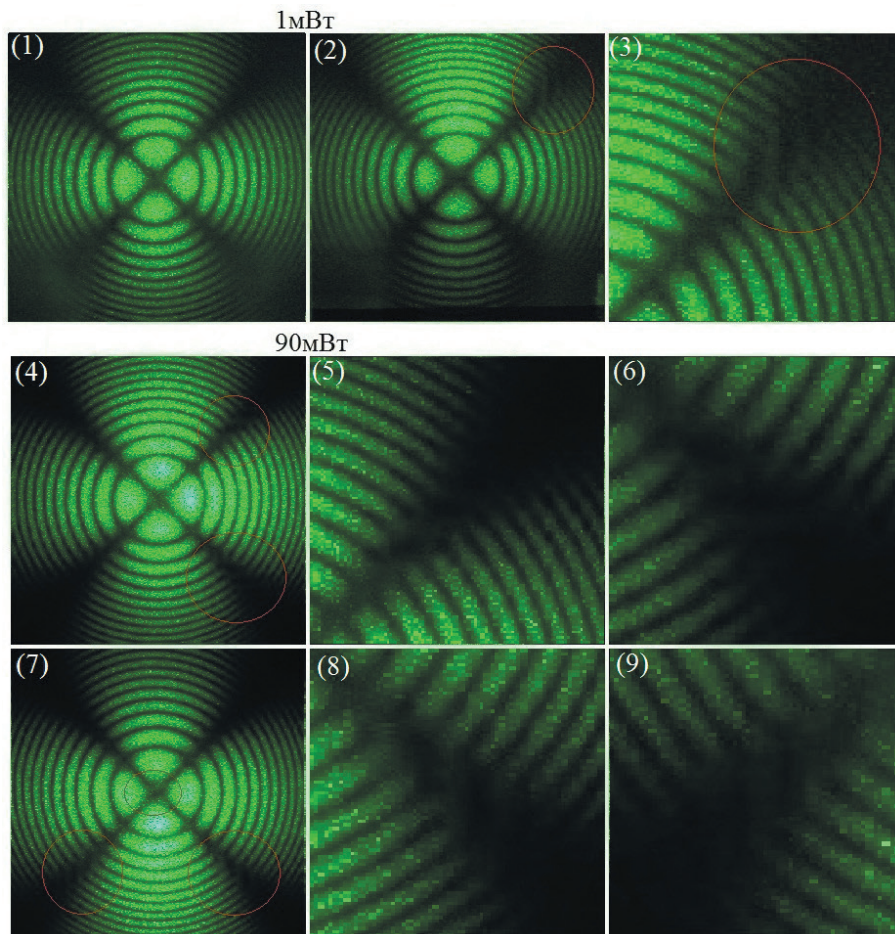


Рисунок 7.2 – Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 (№2 ЦГН шихта). $Z = 5 \text{ мм}$. $\lambda = 532 \text{ нм}$. $P = 1 \text{ мВт}$ (1)-(3); и 90 мВт (4)-(9); (3), (5), (6), (8), (9) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

По результатам эксперимента можно отметить, что коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 , полученные при использовании лазера Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532 \text{ нм}$, $P = 1 \text{ мВт}$) и He-Ne лазера ($\lambda_0 = 632,8 \text{ нм}$, $P = 1 \text{ мВт}$), практически полностью совпадают.

Кристаллы LiNbO_3 конгруэнтного состава (№1, 2 ЦГН шихта) отличаются малым эффектом фоторефракции. Индикатриса ФИРС в таких кристаллах не раскрывается даже при мощности облучения в 160 мВт (см. главу 9). Конгруэнтные монокристаллы характеризуются более разупорядоченной катионной подрешеткой, чем стехиометрические кристаллы, но обладают высоким постоянством показателя преломления вдоль оси роста [5, 21, 263].

Кристаллы LiNbO_3 конгруэнтного состава (№ 3, 4 ЦГН+А шихта, до и после отжига соответственно) обладают значительным эффектом фоторефрак-

ции. Индикатриса ФИРС в них раскрывается в первые 30 секунд с момента начала облучения кристалла лазерным излучением (см. главу 9). Кроме того, кристаллы LiNbO_3 № 3, 4 имеют вдвое большую толщину вдоль оси Z (10 мм), по сравнению с кристаллами LiNbO_3 № 1, 2 ($Z = 4,27$ и 5 мм соответственно). Так как вид коноскопических картин зависит от толщины исследуемых кристаллов, то коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 № 3, 4 должны быть более дефектными. Действительно, при сравнении рис. 7.2 и 7.3 видно, что коноскопические картины кристалла LiNbO_3 № 3, рис. 7.3, содержат гораздо большее количество аномалий, особенно ярко это проявляется при мощности излучения 90 мВт, рис. 7.3 (3)-(6).

При мощности излучения 1 мВт коноскопические картины кристалла LiNbO_3 № 3, рис. 7.3 (1), (2) имеют практически стандартный вид, соответствующий одноосному кристаллу, и состоят из контрастного черного «мальтийского креста», который накладывается на концентрические кольца-изохромы с центром в точке выхода оптической оси, совпадающей с центром «мальтийского креста». «Мальтийский крест» сохраняет минимальную интенсивность в пределах всего поля зрения. Контраст и четкость изображения несколько снижены по сравнению с коноскопическими картинками кристалла LiNbO_3 № 2, рис. 7.2 (1), (2), что вероятно связано с большей толщиной образца LiNbO_3 № 3, рис. 7.3 (1), (2).

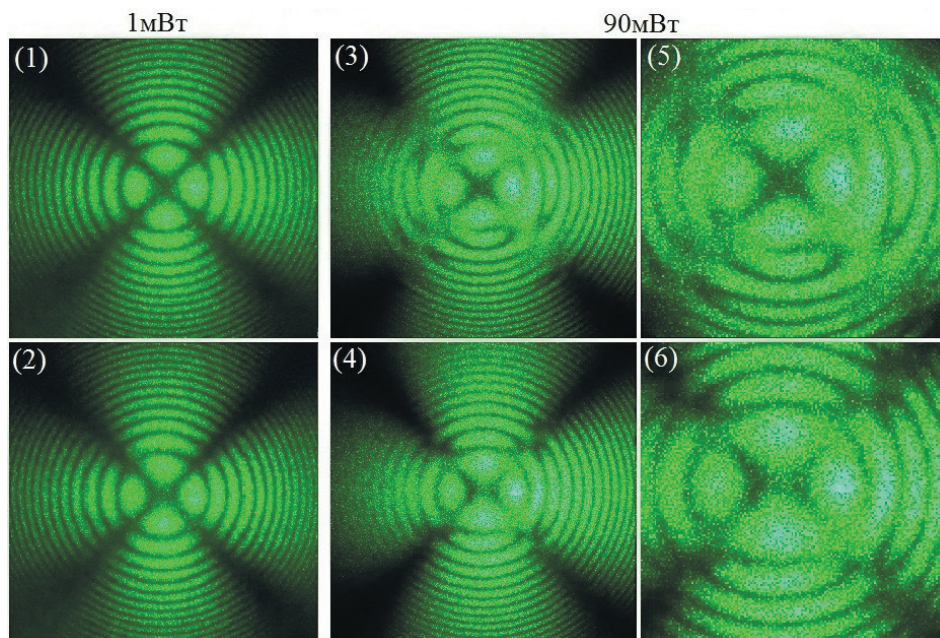


Рисунок 7.3 – Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 (№3 ЦГН+А шихта). $Z = 10$ мм. $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1), (2); и 90 мВт (3)-(6); (5), (6) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

Необходимо отметить, что на коноскопической картине кристалла LiNbO_3 _{зонгр} № 3, рис. 7.3 (2), ($P = 1$ мВт) имеются признаки незначительной аномальной оптической двуосности: фрагменты «мальтийского креста» несколько смещены в горизонтальном направлении, а также незначительно нарушена круговая симметрия колец-изохром. Возникновение слабой оптической двуосности связано с незначительной деформацией оптической индикатрисы образца.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт при сканировании по плоскости входной грани также были получены коноскопические картины двух видов: соответствующая одноосному кристаллу, рис. 7.3 (3), (5), и коноскопическая картина, содержащая признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.3 (4), (6). Причем, признаки аномальной оптической двуосности (расхождение фрагментов «мальтийского креста» в горизонтальном направлении и незначительные нарушения круговой симметрии колец-изохром) при увеличении мощности лазерного излучения усилились по сравнению с аналогичными аномалиями на коноскопической картине, полученной при $P = 1$ мВт, рис. 7.3 (2). Появление аномальной оптической двуосности при увеличении мощности лазерного излучения вероятно связано с существованием локальных областей в кристалле, обладающих двулучепреломлением. Вследствие пьезоэлектрического эффекта при нагревании кристалла возникает электрическое поле, направленное вдоль полярной оси отдельных доменов. Вследствие разориентировки доменов по толщине кристалла возникает перпендикулярная составляющая электрического поля, приводящая к возникновению поперечного электрооптического эффекта. В результате этого отдельные области кристалла становятся двуосными [264, 265]. Ранее исследование термоиндуцированного двулучепреломления ниобата лития в зависимости от координаты точки сканирования и его проявление в коноскопических фигурах было проведено в [124].

Кроме усиления признаков аномальной оптической двуосности при увеличении мощности лазерного излучения, используемого в эксперименте, до 90 мВт коноскопические картины кристалла LiNbO_3 _{зонгр} № 3, рис. 7.3 (3)-(6), в целом гораздо более деформированы, чем коноскопические картины при 1 мВт, рис. 7.3 (1), (2), по сравнению с таковыми для кристалла LiNbO_3 _{зонгр} № 2, рис. 7.2. Из анализа рис. 7.3 (3)-(6) видно, что для обеих коноскопических картин характерно снижение контраста и четкости изображения, происходит значительное нарушение круговой симметрии колец-изохром, особенно ярко проявляющееся на рис. 7.3 (3), (5). Наблюдается попарное смыкание, разрывы, смещения и нестыковки изохром при переходе через ветви «мальтийского креста», рис. 7.3 (3)-(6). Фрагменты коноскопических картин для более наглядной демонстрации аномалий представлены в увеличенном масштабе на рис. 7.3 (5), (6). Так на коноскопической картине (рис. 7.3 (3), (5)) ветви «мальтийского креста» значительно деформированы и только в центре имеют вид, характерный для одноосного кристалла. Кроме этого, наблюдаются разрыв, смещение и попарное смыкание изохром на границе смежных квадрантов. Эти искажения присутствуют в интервале от первой до восьмой изохром, считая от центра коноскопической картины.

Значительная деформация коноскопических картин при увеличении мощности лазерного излучения от 1 до 90 мВт для кристалла LiNbO_3 _{зонгр}

№ 3 вероятно обусловлена тем, что для этого кристалла характерен значительный фоторефрактивный отклик. Индикатриса ФИРС в них раскрывается в первые 30 секунд с момента начала облучения кристалла лазерным излучением (см. главу 9). Кристаллы LiNbO_3 №1, 2 отличаются малым эффектом фоторефракции. Индикатриса ФИРС в этих кристаллах не раскрывается даже при мощности облучения в 160 мВт (см. главу 9). Для этих кристаллов не наблюдалось появления значительной деформации коноскопических картин при увеличении мощности лазерного излучения, наоборот, было зафиксировано усиление контраста и четкости изображения. Фоторефрактивное рассеяние света, возникающее на пространственных микродефектах со статическим или флуктуирующим показателем преломления, наведенных лазерным излучением, обуславливает сильную деструкцию лазерного луча в кристалле и является мешающим фактором для генерации и преобразования излучения [266, 267]. Таким образом, в коноскопических картинах кристалла LiNbO_3 № 3 при $P = 90$ мВт наблюдается проявление не только собственной дефектности кристалла, но и дефектности, наведенной лазерным излучением.

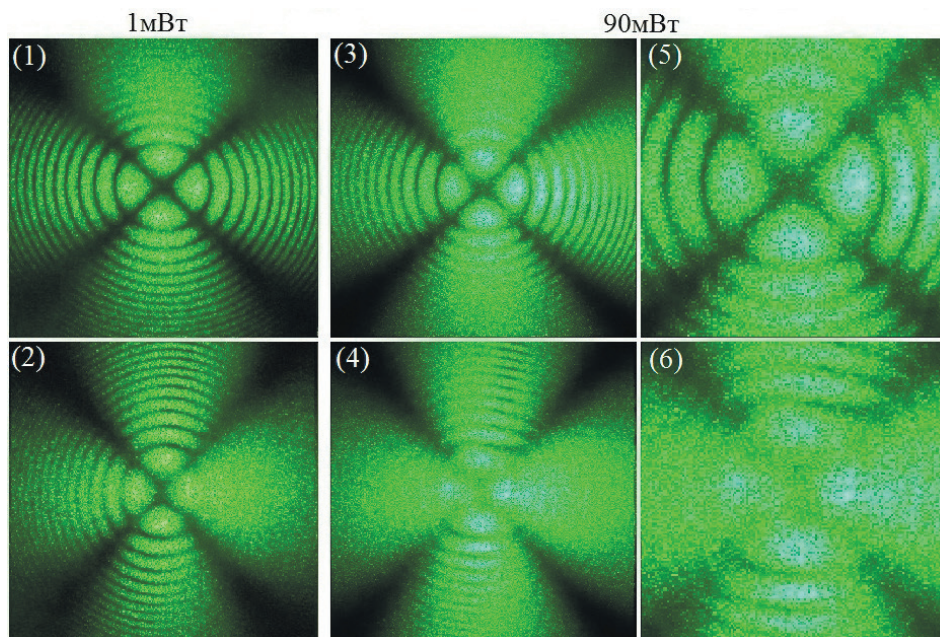


Рисунок 7.4 – Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 (№4 ЦГН+А шихта, после отжига в закороченном состоянии). $Z = 10$ мм. $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1), (2); 90 мВт (3)-(6). (5), (6) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

На рис. 7.4 приведены коноскопические картины кристалла LiNbO_3 (№4 ЦГН+А шихта), аналогичного кристаллу LiNbO_3 (№3 ЦГН+А шихта), но прошедшего стадию отжига в закороченном состоянии. В целом, все коноскопические картины кристалла LiNbO_3 №4, рис. 7.4, полученные

как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения, являются более размытыми, чем аналогичные коноскопические картины LiNbO_3 №3, рис. 7.3. Контраст и четкость изображения значительно снижены, рис. 7.4. При мощности излучения 1 мВт при сканировании по плоскости входной грани получены два вида коноскопических картин: первая отвечает коноскопической картине одноосного кристалла, в которой «мальтийский крест» сохраняет свою целостность и минимальную интенсивность в центре поля зрения. Симметрия и целостность колец-изохром не нарушена, однако наблюдается слабая эллиптичность изохром в горизонтальном направлении. В верхнем квадранте коноскопической картины наблюдается размытие, рис. 7.4 (1). Вторая коноскопическая картина кристалла LiNbO_3 №4, рис. 7.4 (2), $P = 1$ мВт, обнаруживает явные признаки аномальной двуосности, связанной с деформацией оптической индикатрисы образца. А именно: зарегистрировано расхождение «мальтийского креста» в вертикальном направлении от центра, изохромы вытянуты в направлении смещения фрагментов креста и приобретают вид эллипсов с отношением малой и большой осей $\sim 0,9:1$. В правом квадранте коноскопической картины наблюдается значительное размытие, при этом кольца-изохромы не просматриваются, рис. 7.4 (2).

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт коноскопические картины кристалла LiNbO_3 №4 значительно деформируются, рис. 7.4 (3)-(6), также как это наблюдалось для кристалла LiNbO_3 №3, рис. 7.3 (3)-(6). Происходит усиление размытия, снижение четкости и контраста изображения, более проявлена спекл-структура. Коноскопическая картина, представленная на рис. 7.4 (3) (в увеличенном масштабе – (5)), характеризует кристалл LiNbO_3 №4 как одноосный: «мальтийский крест» сохраняет свою целостность в центре поля зрения, ветви его пересекаются в точке выхода оптической оси, кольца-изохромы имеют круговую симметрию. Однако на верхней левой и нижней правой ветвях «мальтийского креста» имеются дополнительные интерференционные полосы, рис. 7.4 (5), кроме того в областях верхнего и нижнего квадрантов наблюдается значительное размытие, в результате которого становятся неразличимыми детали коноскопической картины, рис. 7.4 (5). Коноскопическая картина на рис. 7.4 (4), в увеличенном масштабе – (6), существенно размыта, и анализ ее затруднен. Однако по ее виду можно сделать вывод о том, что на ней имеются признаки аномальной оптической двуосности: «мальтийский крест» вытянут в вертикальном направлении. Кроме того, нарушена круговая симметрия изохром. Таким образом, можно сделать вывод о том, что значительная деформация коноскопических картин при увеличении мощности лазерного излучения от 1 до 90 мВт для кристалла LiNbO_3 №4, так же, как и для кристалла LiNbO_3 №3, вероятно обусловлена проявлением фоторефрактивного эффекта. Индикатриса ФИРС в кристалле LiNbO_3 №4 также раскрывается в первые 30 секунд с момента начала облучения кристалла лазерным излучением и имеет значительный угол раскрытия (см. главу 9). Кроме того, при сравнении коноскопических картин кристаллов LiNbO_3 №3 и №4, полученных одинаковым способом, но отличающихся тем, что кристалл LiNbO_3 №4 был подвергнут отжигу в закороченном состоянии, можно

сделать вывод о том, что отжиг, согласно данным лазерной коноскопии, отрицательно повлиял на оптическую однородность кристалла LiNbO_3 №4 (ЦГН+А шихта).

На рис. 7.5, 7.6 приведены коноскопические картины кристалла LiNbO_3 (№5, №6), полученного из негранулированной шихты, до и после отжига в закороченном состоянии соответственно. Коноскопические картины, приведенные на рис. 7.5, кристалла LiNbO_3 (№5, до отжига) имеют практически стандартный вид, как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения. На фоне концентрических колец-изохром ветви «мальтийского креста», сформированные двумя изогирами минимальной интенсивности, пересекаются в центре поля зрения, перпендикулярны друг другу и совпадают с осями пропускания поляризатора и анализатора.

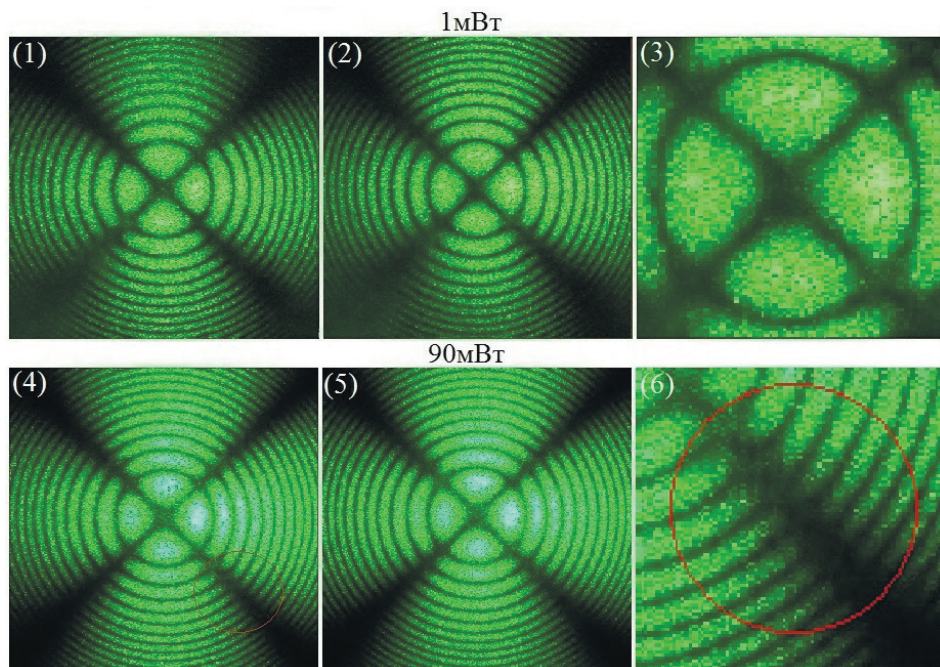


Рисунок 7.5 – Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 (№5). $Z = 10$ мм, $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1)–(3); 90 мВт (4)–(6). (3), (6) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

Из незначительных аномалий можно отметить несколько вытянутый в вертикальном направлении «мальтийский крест» на рис. 7.5 (2) (в увеличенном масштабе – на рис. 7.5 (3)), при этом других признаков возникающей аномальной двусосности нет, а также незначительную деформацию правой нижней ветви «мальтийского креста» на рис. 7.5 (4), в увеличенном масштабе представленную на рис. 7.5 (6). В целом коноскопические картины соответствуют одноосному кристаллу хорошего оптического качества.

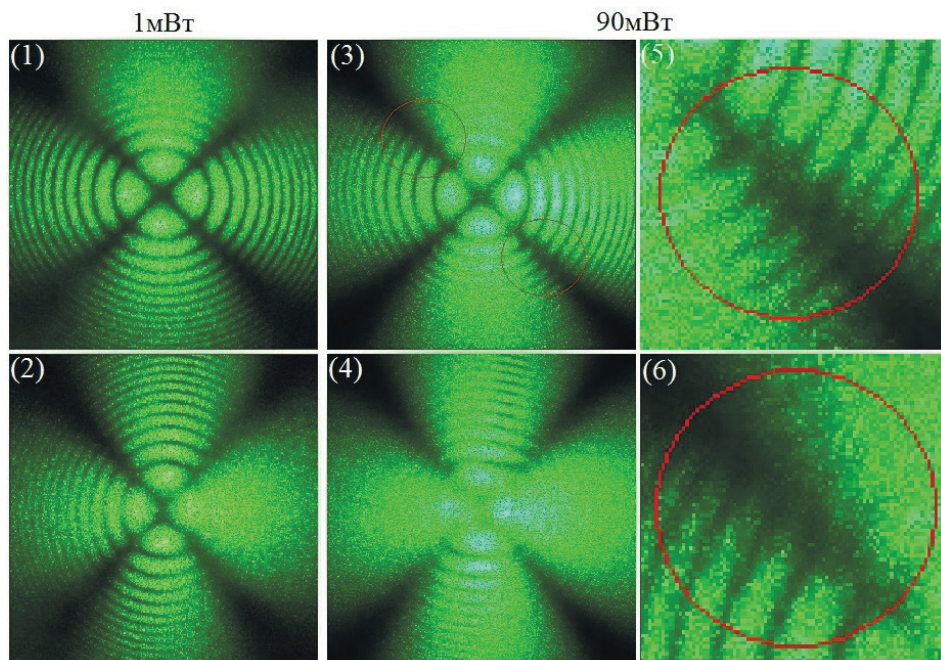


Рисунок 7.6 – Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 (№6) после отжига в закороченном состоянии. $Z = 10$ мм, $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1),(2); 90 мВт. (3)-(6). (5), (6) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

При увеличении лазерного излучения до 90 мВт не наблюдается появления значительных деформаций коноскопических картин кристалла LiNbO_3 (№5), рис. 7.5 (4)–(6), что хорошо согласуется с данными ФИРС, согласно которым для этого кристалла индикатриса ФИРС раскрывается незначительно (см. главу 9). После отжига в закороченном состоянии кристалла LiNbO_3 (№6), рис. 7.6, коноскопические картины указывают на ухудшение оптической однородности кристалла по сравнению с кристаллом LiNbO_3 №5 до отжига, рис. 7.5. Как при мощности излучения 1 мВт, так и при 90 мВт, коноскопические картины кристалла LiNbO_3 (№6) более размыты, четкость изображения снижена, более проявлена спекл-структура картины, рис. 7.6. При сканировании по плоскости входной грани получены коноскопические картины двух видов, соответствующих одноосному (рис. 7.6 (1), (3)) и двуосному кристаллу (рис. 7.6 (1), (3)). Аномальная двуосность кристалла LiNbO_3 (№6) проявляется на коноскопической картине (рис. 7.6 (2)) в виде вытягивания «мальтийского креста» в вертикальном направлении. Углы между ветвями «мальтийского креста» при этом отличаются от 90° . Кольца-изохромы приобретают форму эллипсов. Кроме этого, при мощности лазерного излучения 1 мВт, наблюдается размытие верхнего квадранта, рис. 7.6 (1), и правого квадранта, рис. 7.6 (2), коноскопической картины. Все эти аномалии коноскопических картин указывают на опти-

ческую неоднородность исследованного кристалла LiNbO_3 (№6). При увеличении мощности излучения до 90 мВт деформация коноскопических картин кристалла LiNbO_3 (№6) еще более усиливается, рис. 7.6 (3)-(6). Наблюдается усиление размытия, детали коноскопической картины на рис. 7.6 (4) становятся едва различимы. На рис. 7.6 (3) появляются дополнительные интерференционные полосы на верхней левой и нижней правой ветвях «мальтийского креста», в увеличенном масштабе эти аномалии представлены на рис. 7.6 (5), (6). На рис. 7.6 (4) можно различить признаки аномальной двуосности (деформацию «мальтийского креста» в вертикальном направлении), а также наблюдается нарушение круговой симметрии колец-изохром. Таким образом, исследования кристаллов LiNbO_3 (№5, №6), полученных из негранулированной шихты до и после отжига в закороченном состоянии, методом лазерной коноскопии дают основания заключить, что отжиг в закороченном состоянии ухудшил оптические качества кристалла.

7.2 Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 стехиометрического состава

Монокристаллы ниобата лития стехиометрического состава ($R = 1$) отличаются более высокоупорядоченной катионной подрешеткой, чем монокристаллы конгруэнтного состава [21, 268]. Однако они обладают неоднородным показателем преломления вдоль полярной оси, высокой концентрацией дефектов с локализованными электронами и гораздо более высоким, чем конгруэнтные кристаллы, эффектом фоторефракции (optical damage) [21, 36, 269-271], что может существенно снизить эффективность нелинейно-оптических преобразований. Кроме того, значительная неоднородность состава по длине були, возникающая в процессе роста, затрудняет выращивание стехиометрических кристаллов достаточно большого размера [36], пригодных для промышленного изготовления оптических элементов.

На рис. 7.7 представлены коноскопические картины кристалла LiNbO_3 выращенного с избытком Li_2O . Как при малой (1 мВт), рис. 7.7 (1)-(3), так и при большой (90 мВт), рис. 7.7 (4)-(6), мощности лазерного излучения, коноскопические картины значительно деформированы. На всех коноскопических картинах, полученных при сканировании по плоскости входной грани кристалла LiNbO_3 , имеются признаки аномальной оптической двуосности, при которой имеет место деформация оптической индикатрисы кристалла в направлении, соответствующем направлению сдвига частей «мальтийского креста». Кроме этого, на коноскопических картинах, представленных на рис. 7.7 (1) (в увеличенном масштабе – рис. 7.7 (3)), а также на рис. 7.7 (4), имеет место деформация «мальтийского креста» со сдвигом его частей в направлении от центра. При этом изохромы вытягиваются в направлении смещения фрагментов креста и приобретают вид эллипсов. Каждое кольцо-изохрома, являясь линией одинакового фазового сдвига, соответствует конусу лучей с одинаковым углом падения при совпадении оси конического пучка излучения с оптической осью кристалла. Очевидно, что такая трансформация изохром свидетельствует о наличии некоторого

угла между оптической осью и нормалью к входной грани кристалла. Также на всех коноскопических картинах наблюдаются деформации ветвей «мальтийского креста», а также нарушение круговой симметрии колец-изохром. Такие аномалии коноскопических картин указывают на значительную оптическую неоднородность кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$. Увеличение мощности лазерного излучения, рис. 7.7 (4)-(6), приводит к снижению в целом контраста и резкости изображения, а также к заметному «размытию» ветвей «мальтийского креста». Коноскопическая картина на рис. 7.7 (5) значительно размыта. На периферии коноскопической картины, представленной на рис. 7.7 (4), наблюдается наличие дополнительной системы интерференционных полос. В увеличенном масштабе эти аномалии представлены на рис. 7.7 (6). Значительное искажение коноскопических картин для кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ при увеличении мощности лазерного излучения до ~90 мВт очевидно также связано с наличием значительного фоторефрактивного отклика. Раскрытие индикатрисы рассеяния с появлением спекл-структуры ФИРС происходит для этого кристалла в течение приблизительно минуты, см. главу 9.

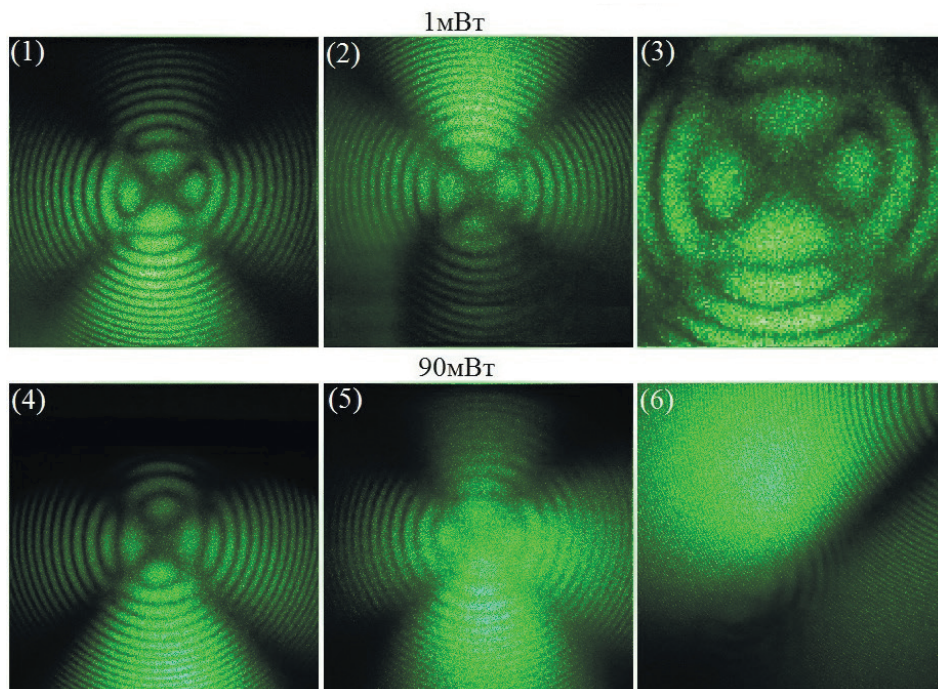


Рисунок 7.7 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$, выращенного с избытком Li_2O . $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1)-(3); 90 мВт (4)-(6); (3), (6) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

Для сравнения были исследованы кристаллы $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$, выращенные из расплава конгруэнтного состава с добавлением 4,5 и 6% K_2O соответственно. Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ (4,5% K_2O) и $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$

(6% K_2O) представлены на рис. 7.8 и 7.9. Эти кристаллы отличаются тем, что для кристалла $LiNbO_{3\text{стех}}$ (4,5% K_2O) не наблюдается раскрытия индикатрисы ФИРС даже при мощности лазерного излучения 160 мВт, тогда как индикатриса ФИРС для кристалла $LiNbO_{3\text{стех}}$ (6% K_2O) раскрывается с появлением спекл-структуры в течение первой минуты с начала облучения кристалла лазерным излучением. Однако необходимо отметить, что угол раскрытия индикатрисы ФИРС для кристалла $LiNbO_{3\text{стех}}$ (6% K_2O) значительно меньший, чем для кристалла $LiNbO_{3\text{стех}}$, выращенного с избытком Li_2O , см. главу 9.

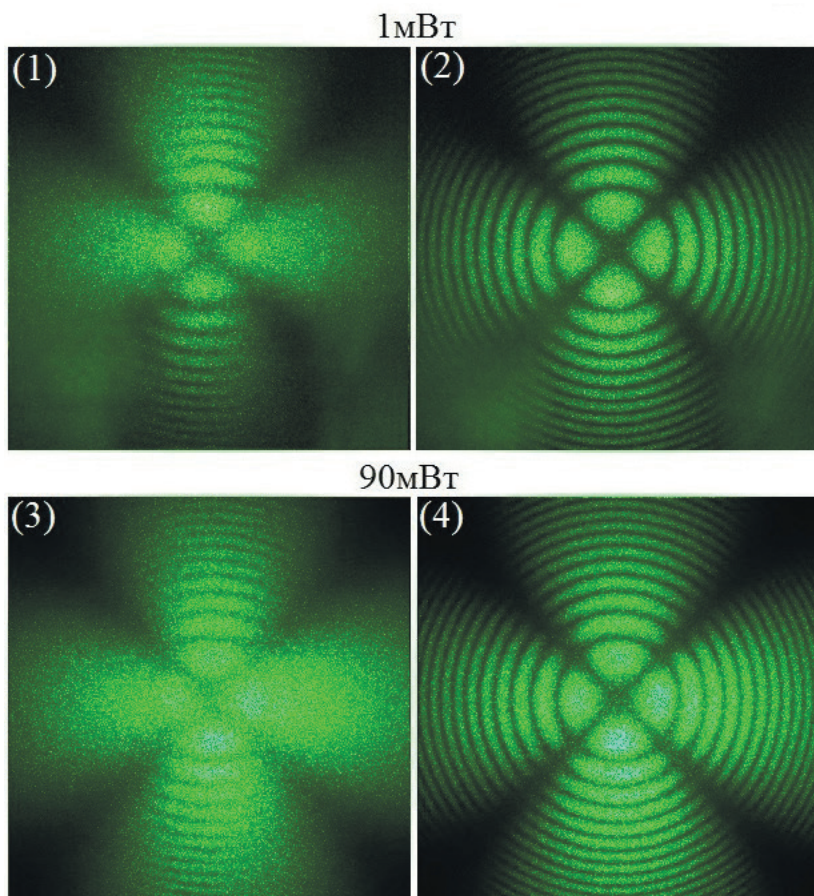


Рисунок 7.8 – Коноскопические картины кристаллов $LiNbO_{3\text{стех}}$ (выращенного из расплава конгруэнтного состава с добавлением 4,5% K_2O), $Z = 5$ мм. $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1), (2); 90 мВт (3), (4); (1), (3) – в отрицательном направлении полярной оси, (2), (4) – в положительном направлении полярной оси

На рис. 7.8 представлены коноскопические картины кристалла $LiNbO_{3\text{стех}}$ (4,5% K_2O), полученные в двух противоположных направлениях полярной оси. Из рис. 7.8 видно, что коноскопические картины, полученные как при мощно-

сти излучения 1 мВт, так и при 90 мВт, в отрицательном направлении полярной оси, рис. 7.8 (1), (3), не соответствуют коноскопическим картинам, полученным в положительном направлении полярной оси, рис. 7.8 (2), (4). Если коноскопические картины на рис. 7.8 (1), (3) значительно размыты, более проявлена спекл-структура изображения, в левом и правом квадрантах обеих коноскопических картин детали становятся неразличимыми, что свидетельствует об оптической неоднородности кристалла, то коноскопические картины на рис. 7.8 (2), (4) значительно более контрастные, четкие, без видимых дефектов. При мощности излучения 1 мВт наблюдается некоторое размытие нижних ветвей «мальтийского креста», которое исчезает при мощности излучения 90 мВт. В целом коноскопические картины, представленные на рис. 7.8 (2), (4), соответствуют стандартным коноскопическим картинам одноосного кристалла и указывают на оптическую однородность исследуемого образца и хорошее оптическое качество. При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт не наблюдается появления дополнительных аномалий, что хорошо согласуется с данными ФИРС, согласно которым для кристалла LiNbO_3 (4,5% K_2O) не наблюдается фоторефрактивного отклика, см. главу 9. Из сравнения коноскопических картин кристаллов LiNbO_3 и LiNbO_3 (4,5% K_2O) можно сделать вывод о том, что кристалл LiNbO_3 , выращенный из расплава конгруэнтного состава с добавлением 4,5% K_2O , имеет лучшее оптическое качество, чем кристалл LiNbO_3 , выращенной с избытком Li_2O .

На рис. 7.9 представлены коноскопические картины кристалла LiNbO_3 , выращенного из расплава конгруэнтного состава с добавлением 6% K_2O . Все коноскопические картины при мощности излучения 1 мВт, рис. 7.9 (1), (2), и при 90 мВт, рис. 7.9 (3) (в увеличенном масштабе – рис. 7.9 (4)), гораздо более дефектны, чем аналогичные коноскопические картины кристалла LiNbO_3 , выращенного из расплава конгруэнтного состава с добавлением 4,5% K_2O , рис. 7.8. Это может быть связано и с тем, что кристалл LiNbO_3 (6% K_2O) имеет большую толщину ($Z = 13$ мм), чем кристалл LiNbO_3 (4,5% K_2O) ($Z = 5$ мм). При мощности лазерного излучения 1 мВт при сканировании по плоскости входной грани получены два вида коноскопических картин: соответствующих одноосному кристаллу, рис. 7.9 (1) и с признаками аномальной двуосности (деформация «мальтийского креста» с расхождением его фрагментов в горизонтальном направлении и просветлением в центре, углы между ветвями «мальтийского креста» при этом отличны от 90°), рис. 7.9 (2). Кроме того, на коноскопических картинах наблюдаются деформации в области ветвей «мальтийского креста», наличие на них дополнительных систем интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины, рис. 7.9 (1), (2) (аномалии выделены красными кружками). При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт признаки аномальной оптической двуосности исчезают, рис. 7.9 (3), однако деформация ветвей «мальтийского креста» усиливается. В области всех четырех ветвей «мальтийского креста» наблюдаются разрывы, нестыковки, попарное смыкание колец-изохром, наличие дополнительных интерференционных полос. Для примера на рис. 7.9 (4) в увеличенном масштабе представлена нижняя правая ветвь «мальтийского креста» с наблюдающимися аномалиями. Увеличение дефектности коноскопических картин при увеличении

мощности лазерного излучения до 90 мВт вероятно также связано с тем, что для кристалла LiNbO_3 (6% K_2O) наблюдается раскрытие индикатрисы ФИРС с проявлением спекл-структуры в течение первой минуты с начала облучения кристалла лазерным излучением, см главу 9.

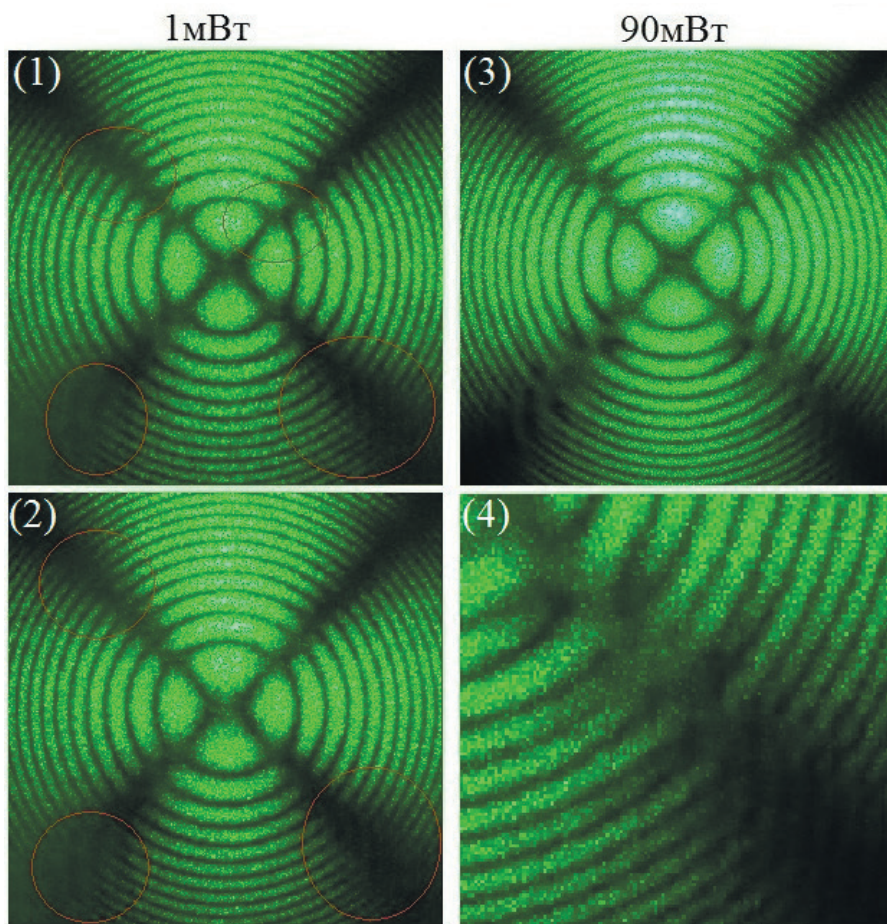


Рисунок 7.9 – Коноскопические картины кристаллов LiNbO_3 (выращенного из расплава конгруэнтного состава с добавлением 6% K_2O), $Z = 13$ мм. $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1), (2); 90 мВт (3), (4); (4) – 1 из ветвей «мальтийского креста» в увеличенном масштабе

7.3 Коноскопические картины легированных кристаллов LiNbO_3 конгруэнтного состава

Существенно понизить фоторефрактивный эффект в монокристаллах ниобата лития конгруэнтного состава можно, повысив степень упорядочения структурных единиц катионной подрешетки вдоль полярной оси

путем легирования «нефоторефрактивными» катионами Mg^{2+} , Zn^{2+} , Gd^{3+} и др. [21, 36, 271-274]. Такие катионы вытесняют основные антиструктурные дефекты катионной подрешетки Nb_{Li} (избыточные катионы Nb^{5+} , находящиеся в положении катионов Li^+), повышая ее степень упорядочения вдоль полярной оси. При определенных условиях это может улучшить сегнетоэлектрические и нелинейнооптические характеристики кристалла. Это находит проявление в коноскопических картинах. В данном разделе приведены результаты исследования методом лазерной коноскопии оптической однородности и тонких особенностей структурных искажений в серии монокристаллов ниобата лития ($LiNbO_3$) конгруэнтного состава ($R = L/Nb = 0,946$), легированных катионами: $Mg^{2+}(0,89 \text{ вес.}\%)$, $Zn^{2+}(0,03, 0,52, 0,62)$, $Cu^{2+}(0,015)$, $B^{3+}(0,12)$, $Gd^{3+}(0,51)$, $Y^{3+}(0,46)$, $Gd^{3+}(0,23):Mg^{2+}(0,75)$, $Mg^{2+}(0,86):Fe^{3+}(0,0036)$, $Ta^{5+}(1,13):Mg^{2+}(0,011)$, $Y^{3+}(0,24):Mg^{2+}(0,63)$.

7.3.1 Коноскопические картины кристаллов $LiNbO_3:Gd$

Наблюдение коноскопических картин монокристалла с содержанием примеси $LiNbO_3:Gd^{3+}(0,51 \text{ вес.}\%)$ при облучении лазерным излучением малой мощности показывает признаки, типичные для двусосных кристаллов, рис. 7.10 (1), а именно – трансформацию изогир из колец в эллипсы и деформацию «мальтийского креста» с просветлением и разрывом на две части с их сдвигом в азимутальном направлении от центра. Отмечается два направления сдвига частей «мальтийского креста» – горизонтальное и вертикальное, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла. Применение лазерного излучения мощностью 90 мВт, рис. 7.10 (2), (3) приводит к некоторому уменьшению признаков аномальной двусосности, однако обнаруживает искажения в области нижней левой ветви «мальтийского креста». А именно: просветление нижней левой ветви «мальтийского креста» в области первой изохромы, а также некоторая деформация этой изогир в области 2-4 изохром. Эти искажения коноскопической картины представлены в увеличенном масштабе на рис. 7.10 (3). В целом коноскопические картины, полученные и при мощности излучения 1 мВт, и при 90 мВт имеют некоторую размытость изображения, что может указывать на оптическую неоднородность исследуемого образца. При увеличении мощности лазерного излучения не наблюдается значительной деформации коноскопической картины, как это наблюдалось для кристаллов, для которых характерен фоторефрактивный отклик. Этот факт вероятно также можно объяснить тем, что картина ФИРС кристалла $LiNbO_3:Gd^{3+}(0,51 \text{ вес.}\%)$ практически не изменяется во времени. Для этого кристалла даже при $P = 160 \text{ мВт}$ фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Угол рассеяния не превышает 3 градусов, см. главу 9.

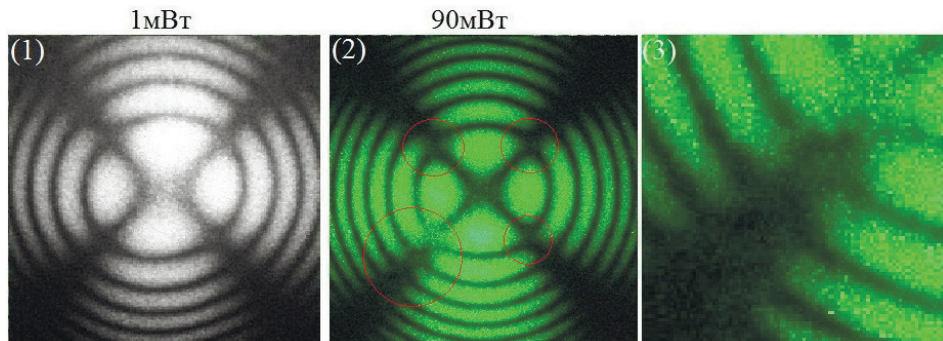


Рисунок 7.10 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}^{3+}$ (0,51 вес. %), He-Ne лазер, $\lambda_0 = 632,8 \text{ нм}$, $P = 1 \text{ мВт}$ (1), и лазер Nd:YAG (MLL-100), $\lambda_0 = 532 \text{ нм}$, $P = 90 \text{ мВт}$ (2), (3). (3) – 1 из ветвей «мальтийского креста» в увеличенном масштабе

7.3.2 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$

В данном разделе приведены результаты исследования кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (0,86 вес %), полученных при использовании разных способов легирования: твердофазного и гомогенного, а также до и после отжига в закороченном состоянии.

На рис. 7.11, 7.12 представлены коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1, №2) (0,86 вес %, твердофазное легирование, до и после отжига в закороченном состоянии соответственно), полученные при сканировании лазерным лучом по поверхности входной грани кристаллов и разной мощности излучения ($P = 1$ и 90 мВт).

В результате лазерного сканирования по плоскости входной грани кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1) были получены коноскопические картины двух видов, рис. 7.11. Так при малой мощности лазерного излучения ($P = 1 \text{ мВт}$) наблюдаются как коноскопическая картина, полностью соответствующая одноосному кристаллу, рис. 7.11 (2), так и коноскопическая картина, которая имеет признаки, характерные для возникающей аномальной оптической двуосности: темный «мальтийский крест» в центре поля зрения несколько деформирован со сдвигом фрагментов в вертикальном направлении от центра, а углы между ветвями «мальтийского креста» несколько отличны от 90° , рис. 7.11 (1). Кроме того, на этой коноскопической картине (рис. 7.11 (1)) имеются видимые аномалии: левая верхняя ветвь «мальтийского креста» (в увеличенном масштабе – рис. 7.11 (3)) в области между второй и шестой изохромами содержит дополнительную систему интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины кристалла. Некоторая интерференционная структура присутствует также на правой нижней ветви «мальтийского креста» в области от второй по пятую изохрому (рис. 7.11 (1)). На коноскопической картине кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1) (рис. 7.11 (2)) также отмечено присутствие дополнительных интерференционных полос в верхней полу-

плоскости коноскопической картины в области левой ветви «мальтийского креста» между второй и пятой изохромами (в увеличенном масштабе эти аномалии представлены на рис. 7.11 (4)). Контраст изображения в области верхней левой ветви «мальтийского креста» несколько снижен. В области верхней правой ветви «мальтийского креста» наблюдается разрыв первой изохромы, рис. 7.11 (2). В целом коноскопическая картина кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1), рис. 7.11 (2), соответствует коноскопической картине одноосного кристалла, на которой кольца-изохромы, имеющие центр в точке выхода оптической оси, расположены на фоне темного «мальтийского креста», сформированного двумя изограми, составляющими прямой угол.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1) становятся несколько более четкими и контрастными, рис. 7.11 (5)-(8). Сохраняются искажения и признаки, которые наблюдались при малой мощности лазерного излучения: незначительная аномальная оптическая двуосность, рис. 7.11 (5), а также обнаруженные дополнительные интерференционные аномалии в области ветвей «мальтийского креста», рис. 7.11 (5), (6). В увеличенном масштабе деформации ветвей «мальтийского креста» представлены на рис. 7.11 (7), (8). Дополнительных искажений коноскопических картин, связанных с увеличением мощности лазерного излучения, как это наблюдалось нами для кристаллов ниобата лития стехиометрического состава и конгруэнтного состава, легированных фоторефрактивными катионами [275], для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1) не наблюдается, рис. 7.11, что хорошо согласуется с данными ФИРС, согласно которым индикатриса ФИРС в исследованных кристаллах не раскрывается даже при мощности облучения в 160 мВт, (см. главу 9)

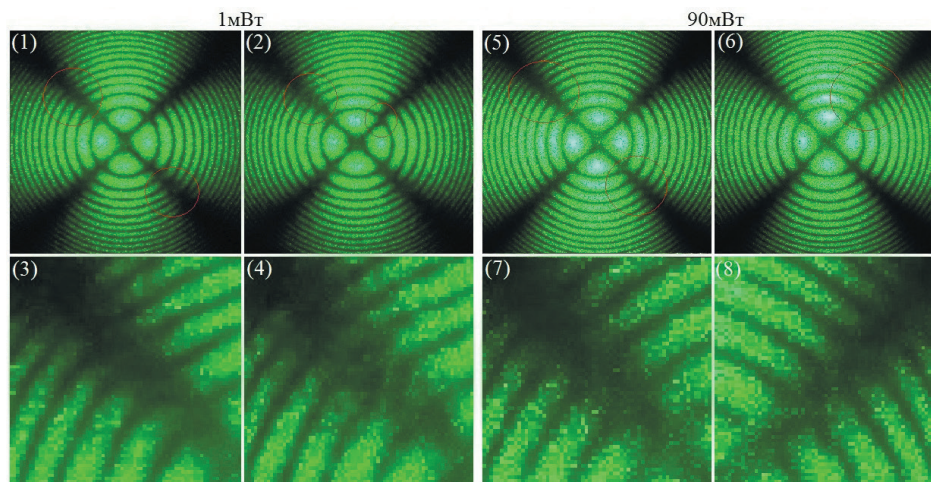


Рисунок 7.11 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1) (0,86 вес.%, твердофазное легирование, до отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1)-(4); 90 мВт (5)-(8); (3), (4), (7), (8)– аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

После отжига в закороченном состоянии кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2) (0,86 вес. %, твердофазное легирование), при сканировании по плоскости входной грани также были получены коноскопические картины двух видов, рис. 7.12. При мощности лазерного излучения 1 мВт, рис. 7.12 (1)–(4) наблюдается коноскопическая картина с признаками незначительной аномальной оптической двуосности: «мальтийский крест» несколько деформирован со сдвигом фрагментов в вертикальном направлении от центра, а углы между ветвями «мальтийского креста» несколько отличны от 90° , рис. 7.12 (1). На ветвях «мальтийского креста» так же, как это наблюдалось для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1), рис. 7.11 (1), имеются дополнительные системы интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины кристалла, рис. 7.12 (1) (выделены красными кружками). Для наглядности на рис. 7.12 (3) в увеличенном масштабе представлена верхняя левая ветвь «мальтийского креста» с наблюдающимися аномалиями. Коноскопическая картина, представленная на рис. 7.12 (2), соответствует одноосному кристаллу. На верхней правой ветви «мальтийского креста» на этой коноскопической картине отмечено некоторое снижение контраста изображения, а также наличие незначительной деформации ветви «мальтийского креста» (в увеличенном масштабе – рис. 7.12 (4)). При сравнении коноскопических картин при мощности излучения 1 мВт кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1 и №2, рис. 7.11 и 7.12) можно отметить, что для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2, рис. 7.12) коноскопические картины несколько более размыты.

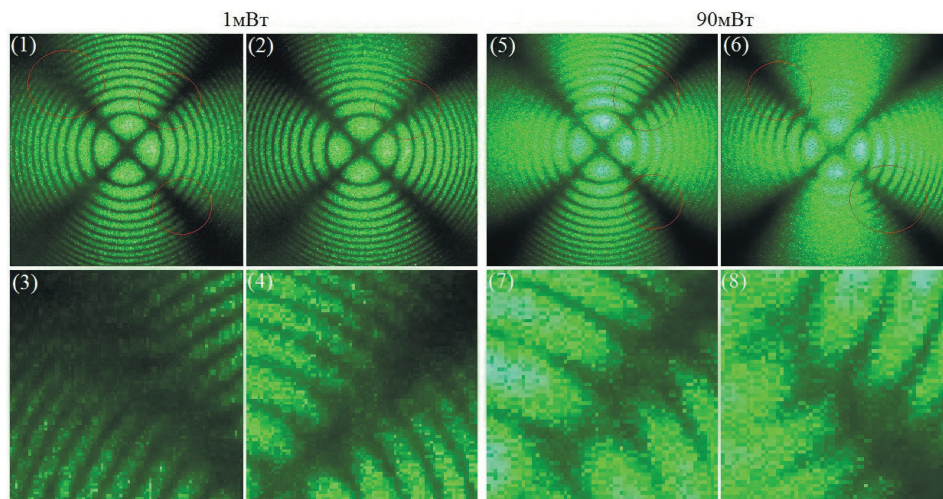


Рисунок 7.12 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2) (0,86 вес. %, твердофазное легирование, после отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1)–(4); 90 мВт (5)–(8); (3), (4), (7), (8) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт размытие коноскопических картин кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2) значительно усиливается, рис. 7.12 (5)–(8). Признаки аномальной оптической двуосности наблю-

даются на обеих коноскопических картинах, полученных при сканировании по плоскости входной грани кристалла, рис. 7.12 (5), (6). Дополнительные интерференционные аномалии, наблюдающиеся в области ветвей «мальтийского креста», обозначены красными кружками, в увеличенном масштабе некоторые из них представлены на рис. 7.12 (7), (8). Затруднено наблюдение левого квадранта коноскопической картины на рис. 7.12 (5) и верхнего и нижнего квадрантов коноскопической картины на рис. 7.12 (6). Индикатриса ФИРС в исследованном кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2), так же, как и в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1) не раскрывается даже при мощности обучения в 160 мВт, (см. главу 9), однако при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2), рис. 7.12, значительно более деформируются, чем это наблюдалось для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1), рис. 7.11. Вероятно, этот факт связан с тем, что кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2) был подвергнут отжигу в закороченном состоянии.

Для сравнения были исследованы кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3, №4) (0,86 вес %), полученные с использованием гомогенного легирования, также до и после отжига в закороченном состоянии. На рис. 7.13, 7.14 представлены коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3, №4), полученные при сканировании лазерным лучом по поверхности входной грани кристаллов и мощности излучения 1 и 90 мВт.

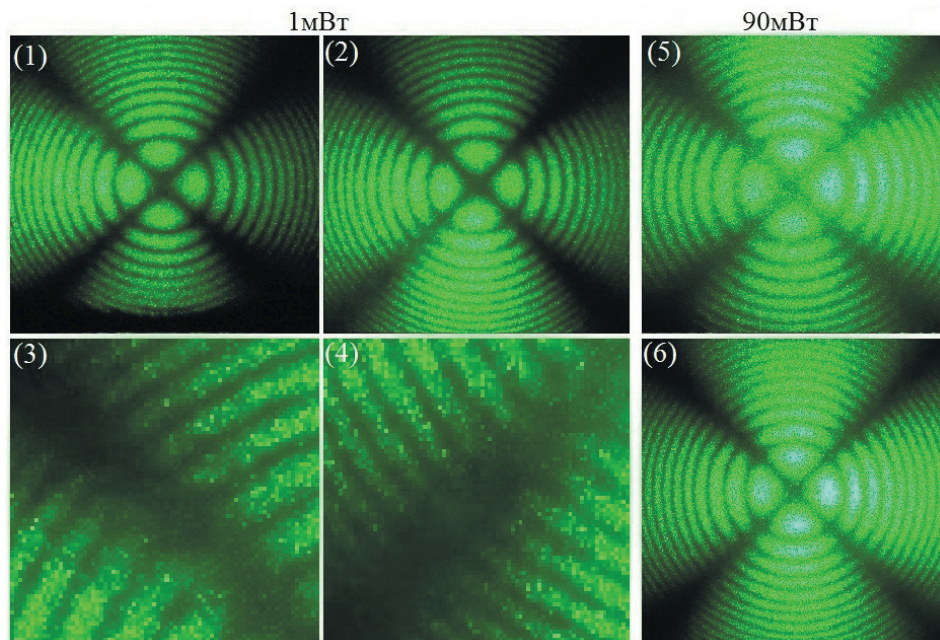


Рисунок 7.13 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3) (0,86 вес. %, гомогенное легирование, до отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1)-(4); 90 мВт (5), (6); (3), (4)– аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

Коноскопический анализ кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3) при использовании лазерного излучения как небольшой мощности (~ 1 мВт), так и при увеличении мощности до ~ 90 мВт позволяет наблюдать практически стандартный черный «мальтийский крест» на фоне изохром в виде концентрических колец, что соответствует коноскопической картине одноосного кристалла, рис. 7.13 (1)–(6). Однако при сканировании лазерным лучом по поверхности образца, была зафиксирована коноскопическая картина, имеющая признаки аномальной оптической двуосности: незначительная деформация в центре темного «мальтийского креста» в виде вертикального смещения от центра фрагментов креста, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла. Изохромы приобретают слабую эллиптичность в вертикальном направлении коноскопической картины, сохраняя правильную геометрическую форму, рис. 7.13 (1). Кроме того, на этой коноскопической картине было обнаружено наличие дополнительных интерференционных аномалий, а именно: в области верхней левой ветви «мальтийского креста» между второй и седьмой изохромами присутствует система интерференционных полос. В увеличенном масштабе эти аномалии представлены на рис. 7.13 (3). Контраст изображения в области верхней левой ветви «мальтийского креста» несколько снижен. Наличие дополнительной интерференционной системы полос на фоне основной коноскопической картины указывает на оптическую неоднородность исследуемого образца.

На коноскопической картине кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3), рис. 7.13 (2), которая в области «мальтийского креста» соответствует одноосному кристаллу, также была обнаружена дополнительная система интерференционных полос в области нижней левой ветви «мальтийского креста», между третьей и десятой изохромами (в увеличенном масштабе – рис. 7.13 (4)). Контраст изображения в этой области значительно снижен по сравнению с другими фрагментами коноскопической картины. Кроме того, форма изохром несколько деформирована, они незначительно вытянуты в сторону нижней левой ветви «мальтийского креста», что возможно при наличии некоторого угла между оптической осью и нормалью к входной грани кристалла.

Присутствующая на коноскопических картинах кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3) некоторая «размытость» изображения, рис. 7.13 (1), (2), по сравнению с коноскопическими картинками кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1), рис. 7.11 (1), (2), при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт проявляется в еще большей степени, рис. 7.13 (5), (6). Отмечено снижение резкости и контраста. Дополнительных аномалий на коноскопических картинах, связанных с увеличением мощности лазерного излучения, зафиксировано не было, что хорошо согласуется с данными ФИРС, согласно которым для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3) не происходит раскрытия индикатрисы ФИРС, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах, см. главу 9.

При сравнении коноскопических картин в целом, полученных соответственно для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1, 0,86 вес. %, твердофазное легирование), рис. 7.11, и $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3, 0,86 вес. %, гомогенное легирование), рис. 7.13, отличающихся способом легирования, можно отметить, что коноскопические картины для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3, 0,86 вес. %, гомогенное легирование) как при малой, так и при большей мощности лазерного излучения

характеризуются некоторой размытостью изображения, снижением резкости и контраста, а также заметной спекл-структурой изображения, что указывает на значительно большую оптическую неоднородность исследуемого кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3, 0,86 вес. %, гомогенное легирование) по сравнению с кристаллом $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1, 0,86 вес. %, твердофазное легирование).

На рис. 7.14 приведены коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№4, 0,86 вес. %, гомогенное легирование) после отжига в закороченном состоянии. Если сравнивать коноскопические картины аналогичного кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3), рис. 7.13, не подвергнутого отжигу, можно отметить, что размытость коноскопических картин кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3), рис. 7.13, усиливается для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№4), рис. 7.14. Также при сканировании по плоскости входной грани при мощности излучения 1 и 90 мВт получены коноскопические картины, соответствующие одноосному кристаллу – рис. 7.14 (1), (3), а также коноскопические картины с признаками некоторой аномальной двуосности, рис. 7.14 (2), (4). На рис. 7.14 (2) фрагменты «мальтийского креста» расходятся в горизонтальном направлении, однако просветления в центре «мальтийского креста» нет. Углы между его ветвями незначительно отличаются от 90° . Изохромы сохраняют круговую симметрию. Кроме того, в области правого квадранта, вследствие размытия, становятся неразличимыми детали коноскопической картины, рис. 7.14 (2). Коноскопическая картина, представленная на рис. 7.14 (1), ($P = 1$ мВт) значительно более размыта и деформирована в области ветвей «мальтийского креста», чем коноскопическая картина на рис. 7.14 (2), ($P = 1$ мВт), что указывает на оптическую неоднородность кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№4) по объему.

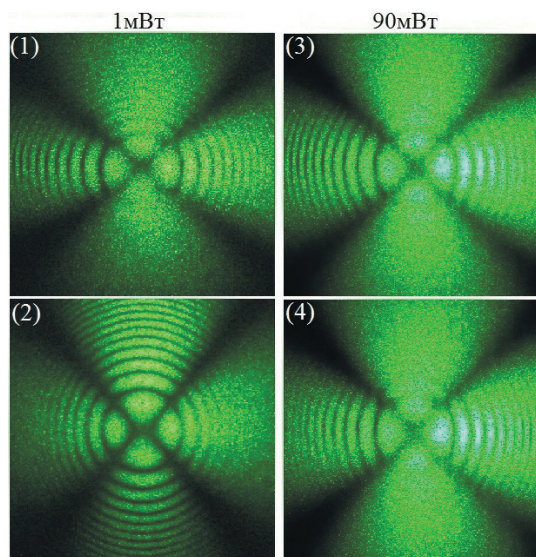


Рисунок 7.14 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№4) (0,86 вес. %, гомогенное легирование, после отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт (1), (2); 90 мВт (3), (4)

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт размытие коноскопических картин кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№4) значительно усиливается, рис. 7.14 (3), (4). Верхние и нижние квадранты обеих коноскопических картин не просматриваются, рис. 7.14 (3), (4). Значительно деформированы ветви «мальтийского креста», рис. 7.14 (3), (4). Такие же изменения в коноскопических картинах при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт наблюдались для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2), рис. 7.12. Индикатриса ФИРС всех исследованных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1, №2, №3, №4) не раскрывается даже при мощности облучения в 160 мВт, (см. главу 9). Таким образом, значительное увеличение размытия и деформации коноскопических картин кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№4), рис. 7.14, при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, по сравнению с коноскопическими картинками кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3), рис. 7.13, очевидно так же, как и для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1), рис. 7.11, и $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2), рис. 7.12, можно связать с тем, что кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№2) и $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№4) были подвергнуты отжигу в закороченном состоянии.

На рис. 7.15-7.18 представлены коноскопические картины серии монокристаллов ниобата лития (LiNbO_3) конгруэнтного состава, легированных Mg^{2+} (0,25–5,5 мол.%). Использовались как сравнительно слабо легированные кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (0,25–0,5 мол.%), так и кристаллы с высокой концентрацией магния $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (3,0–5,5 мол.%), фоторефрактивный эффект в которых практически равен нулю [21]. Эксперимент проводился при $P < 1$ мВт для исследования оптической однородности и тонких особенностей структурных искажений кристаллов в зависимости от концентрации легирующего компонента без возбуждения ФИРС.

В наших экспериментах для образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (0,25–0,5 мол.%) наблюдались коноскопические картины стандартного вида, при котором черный «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы имеют вид концентрических окружностей, что свидетельствует об оптической однородности образцов, рис. 7.15. Круговая симметрия коноскопических картин показала, что оптическая ось в сканируемых точках входной грани направлена вдоль направления распространения лазерного луча. При этом общий вид коноскопических картин совпал для образцов с различной концентрацией легирующей примеси Mg при одинаковой толщине в направлении оптической оси ($Z = 4,78$ мм) с сохранением диаметров колец-изохром, рис. 7.15.

Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (0,25–0,5 мол.%) и $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (3,0–5,5 мол.%) существенно отличаются. При сканировании по плоскости входной грани кристаллической полупластины диаметром ~ 76 мм с достаточно высокой концентрацией примеси $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (3,0 мол.%), кроме стандартных картин и близких к ним по своему виду (рис. 7.16 (1)), наблюдались и искаженные коноскопические картины (рис. 7.16 (2)-(6)). Так, на коноскопической картине (рис. 7.16 (2)) черный «мальтийский крест» разорван на две части с просветлением в центре поля зрения. Азимутальное направление смещения частей «мальтийского креста» составляет угол ~ 10–13° по часовой стрелке от вертикали. Изохромы сохраняют целостность, но несколько вытягиваются в направлении смещения фрагментов креста и приобретают вид эллипсов с отношением малой и большой осей ~ 0,9:1.

На коноскопических картинах (рис. 7.16 (3)-(5)) черный «мальтийский крест» в центре поля зрения, наоборот, является целым, а изохромы сохраняют вид колец. Однако в периферии поля зрения на значительном угловом расстоянии от центра картины, начиная с 5–6-ой изохромы, в области только одной, несколько утонченной ветви «мальтийского креста» наблюдается наложение дополнительной интерференционной структуры. При этом оставшиеся три ветви «мальтийского креста» сохраняют свой обычный вид.

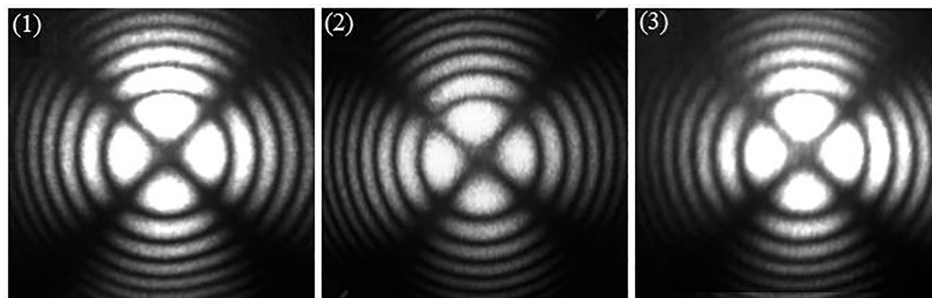


Рисунок 7.15 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (0,25 мол. % – (1); 0,35 мол. % – (2); 0,5 мол.% – (3)). He-Ne лазер ($\lambda = 632,8$ нм), $P < 1$ мВт

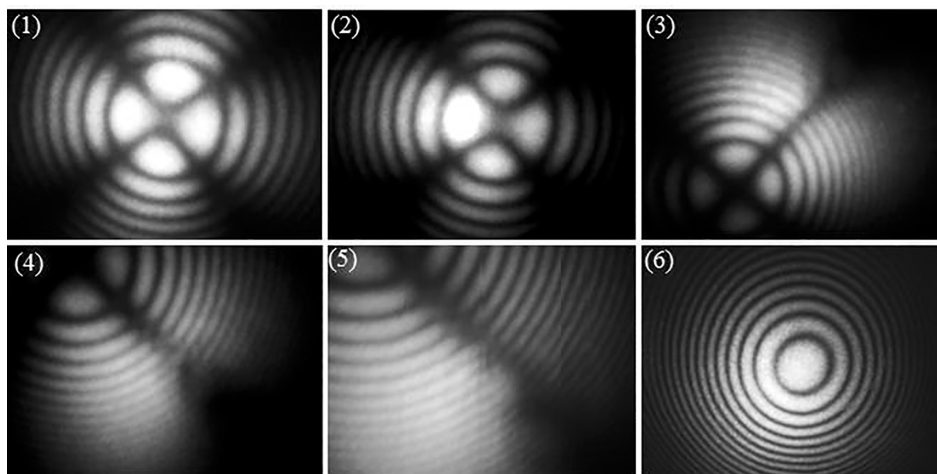


Рисунок 7.16 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (3,0 мол. %). He-Ne лазер ($\lambda = 632,8$ нм), $P < 1$ мВт

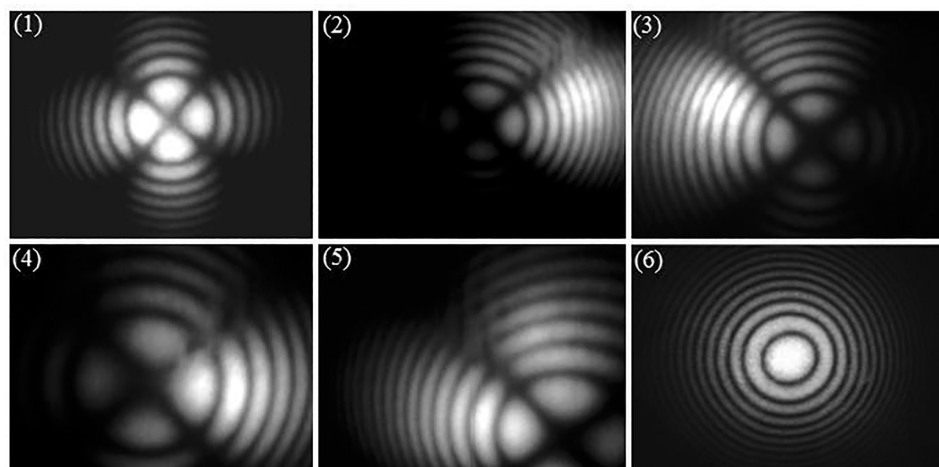


Рисунок 7.17 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (5,0 мол. %). He-Ne лазер ($\lambda = 632,8 \text{ нм}$), $P < 1 \text{ мВт}$

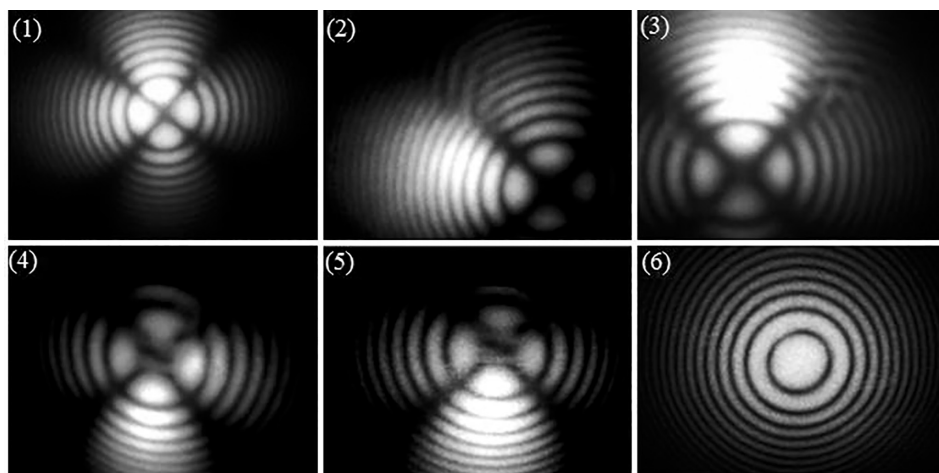


Рисунок 7.18 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (5,5 мол. %). He-Ne лазер ($\lambda = 632,8 \text{ нм}$), $P < 1 \text{ мВт}$

Все наблюдаемые путем сканирования по плоскости входной грани коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,0 мол.%) характерны для одноосных кристаллов, о чем свидетельствует черный «мальтийский крест» на фоне колец-изохром, рис. 7.17 (1)-(5). Однако на некоторых коноскопических картинах на небольшом угловом расстоянии от центра, или, начиная со

второй или третьей изохромы, в области одной из четырех ветвей «мальтийского креста» наблюдается наложение ярко выраженных дополнительных интерференционных полос, рис. 7.17 (2)-(5).

Коноскопические картины образца с максимальной высокой концентрацией легирующей примеси $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,5 мол.%), рис. 7.17 (1)-(5), характерны для одноосных кристаллов, однако в некоторых точках входной грани высвечиваются хорошо заметные аномалии. Одна разновидность аномалий представляет собой наложение дополнительной интерференционной структуры на угловом расстоянии от центра, соответствующем 3–4-ой изохrome, в области одной из ветвей «мальтийского креста», рис. 7.17 (2), (3). Другая разновидность аномалий проявлена также дополнительной картиной интерференции, но в центре поля зрения коноскопической картины на фоне области пересечения ветвей черного «мальтийского креста».

Следует отметить, что коноскопические картины каждого из трех образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (3,0-5,5 мол.%) с циркулярными поляризатором и анализатором, которые позволяют удалить затемняющий изображение «мальтийский крест», имеют стандартный вид колец и заметных искажений не показывают, рис. 7.16 (6); 7.17, (6); 7.18, (6).

Обнаруженные отличия в коноскопических картинах монокристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (0,25–0,5 мол.%) и $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (3,0–5,5 мол. %) можно объяснить следующим. Особенностью монокристаллов ниобата лития, легированных катионами Mg^{2+} при сравнительно больших (≥ 3 мол.%) концентрациях легирующей добавки, является неравномерное вхождение примеси в кристалл [21, 37] и, соответственно, появление полос роста, связанных с градиентами концентраций легирующей добавки, как в плоскости перпендикулярной, так и в плоскости параллельной оси роста [262]. Появление полос роста сопровождается появлением микродефектов в виде дислокаций, микродоменов, доменных границ и блочной структуры, особенно в области повышенных градиентов концентраций примеси на границах полос роста [262]. Появление полос роста, градиентов концентрации примеси, скопления микродефектов приводит к локальному изменению упругих характеристик кристалла и появлению механических напряжений [276, 277], локально искажающих оптическую индикатрису оптически одноосного кристалла. Последнее приводит к искажению коноскопических картин, рис. 7.16-7.18. Причем максимальное искажение наблюдается для коноскопических картин на границах полос роста, где концентрации структурных дефектов и градиенты концентраций легирующей добавки максимальны.

В исследованном нами ряду кристаллов полосчатость образцов в целом уменьшается с увеличением концентрации примеси от 3,0 к 5,5 мол. % [262]. В этом же ряду несколько уменьшается степень искажения коноскопических картин (рис. 7.17, 7.18). Таким образом, дефектность кристалла, связанная с неоднородностью вхождения примеси, проходит через определенный максимум в области концентраций ~ 3 мол. % Mg^{2+} . Последнее может быть обусловлено изменением механизма вхождения примеси при изменении концентрации легирующей добавки [21, 89]. В частности, исследования методами микроанализа обнаружили уменьшение отношения $R=\text{Li}/\text{Nb}$ до 0,94 при концентрации в кристалле $\text{Mg}^{2+} \sim 3\%$ [77]. При такой

концентрации Mg^{2+} происходит полное вытеснение дефектов Nb_{Li} (катионов Nb^{5+} , находящихся в литиевых позициях идеальной структуры стехиометрического состава) в катионной подрешетке [21]. При концентрации $Mg^{2+} > 3\%$ происходит замещение базовых катионов Li^+ , сопровождающееся увеличением дефектов V_{Li} (вакантных кислородных октаэдров, в которых в идеальной структуре стехиометрического состава должны располагаться катионы Li^+) [21, 77]. При приближении величины $R = Li/Nb$ к значению 0,84 ($Mg^{2+} \geq 8\%$), соответствующей границе устойчивости фазы $LiNbO_3$ на фазовой диаграмме [21], катионы Mg^{2+} входят в обе (литиевые и ниобиевые) позиции идеальной структуры стехиометрического состава с одновременным уменьшением концентрации компенсирующих дефектов V_{Li} [21, 77].

Таким образом, результаты коноскопического исследования кристаллов ниобата лития, легированных катионами Mg^{2+} , показывают, что образцы с содержанием Mg^{2+} (0,25–0,5 мол. %), даже вырезанные из разных кристаллов, выращенные в различных условиях, имеют высокую оптическую однородность. Причем в образцах с одинаковыми геометрическими параметрами масштаб коноскопической картины, распределение интенсивности, форма и размеры «мальтийского креста» и изохром полностью сохраняются.

Более сильное легирование катионами Mg^{2+} (3,0–5,5 мол. %) при сохранении в целом одноосности кристалла приводит к появлению локальных двулучепреломляющих включений, которые регистрируются в виде дополнительных картин интерференции на фоне основной коноскопической картины, как в центре поля зрения, так и в ее периферийной области. Небольшая аномальная двуосность в ограниченной области зарегистрирована для образца с содержанием Mg^{2+} 3,0 мол. %. Это связано с тем, что при увеличении концентрации легирующей добавки проявляется неравномерное вхождение примеси в кристалл, сопровождающееся появлением полос роста, а также микродефектов структуры. Дефектная структура кристаллов, связанная с неравномерным вхождением примеси, приводит к локальному изменению упругих характеристик кристалла и появлению механических напряжений, вызывающих искажение коноскопических картин. Причем, дефектность кристаллических образцов и степень искажения коноскопических картин в целом уменьшаются с увеличением концентрации примеси от 3,0 к 5,5 мол. %.

Лазерная коноскопия по предложенной в данной работе схеме позволяет выявить даже незначительные изменения оптических характеристик кристалла при его легировании. Коноскопические же исследования образцов в поляризационном микроскопе, в котором в качестве источника освещения используется лампа накаливания, дают возможность наблюдать лишь картину кристалла в целом, без детализации тонких особенностей структуры в виде локальных искажений.

7.3.3 Коноскопические картины кристаллов $LiNbO_3:Mg:Fe$

Даже незначительное легирование катионами Mg^{2+} приводит к заметному подавлению эффекта фоторефракции в ниобате лития. При этом при двойном легировании ($LiNbO_3:Mg(0,86 \text{ вес. \%}):Fe(0,0036)$) эффект фотореф-

ракции практически отсутствует, см. главу 9. Это говорит о том, что «фоторефрактивные»¹ катионы Fe в данном случае не оказывают столь существенного влияния на эффект фоторефракции, как в номинально чистых кристаллах конгруэнтного состава, легированных Fe [21, 266, 271, 278]. Это может быть обусловлено заметным поглощением лазерного излучения в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)\text{:Fe}(0,0036)$. Примесные катионы Fe в кристалле ниобата лития присутствуют в двух зарядовых состояниях (Fe^{2+} и Fe^{3+}) и образуют в запрещенной зоне локализованные состояния, приводящие к появлению дихроичных полос поглощения, вызывающих темную окраску кристаллов [21].

На рис. 7.19 представлены коноскопические картины исследованных монокристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)\text{:Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование) до отжига в закороченном состоянии при мощностях лазерного излучения 1 и 90 мВт. При сканировании излучением малой мощности (1 мВт) по плоскости входной грани коноскопические картины соответствуют одноосному кристаллу, рис. 7.19 (1), (2), и подтверждают оптическую однородность кристалла по объему. При этом изохромы (линии одинакового фазового сдвига) при совпадении оптической оси с нормалью и ортогональности оптической оси и входной грани представляют серию концентрических окружностей с центром в точке выхода оптической оси. На фоне окружностей–изохром черный «мальтийский крест» сохраняет минимальную интенсивность в пределах от центра до периферии поля зрения. Если сравнить коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}^{2+}(\text{№}1)$ (0,86 вес. %, твердофазное легирование), рис. 7.11, и $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)\text{:Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование), рис. 7.19, при $P = 1$ мВт, то можно отметить, что на коноскопических картинах кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)\text{:Fe}(0,0036)$ контраст изображений несколько снижен, более проявлена спекл-структура при некоторой размытости и отсутствии четких контуров интерференционных полос, рис. 7.19 (1), (2). Этот факт подтверждает вывод, сделанный для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)$, что при использовании гомогенного легирования выращенные кристаллы ниобата лития имеют большую оптическую неоднородность, чем кристаллы, выращенные с использованием твердофазного легирования. При сравнении коноскопических картин кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)\text{:Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование), рис. 7.19, и $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}^{2+}(\text{№}3)$ (0,86 вес. %, гомогенное легирование), рис. 7.13, видно, что оптическая однородность кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)\text{:Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование) значительно лучше, что может быть обусловлено более равномерным вхождением примесей в структуру кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес.}\%)\text{:Fe}(0,0036)$.

¹ «Фоторефрактивными» катионы обладают переменной валентностью: Fe, Rh, Cu др. Они под действием света изменяют свой заряд в кристалле и повышают эффект фоторефракции. «Нефоторефрактивные» катионы под действием света не изменяют свой заряд в кристалле.

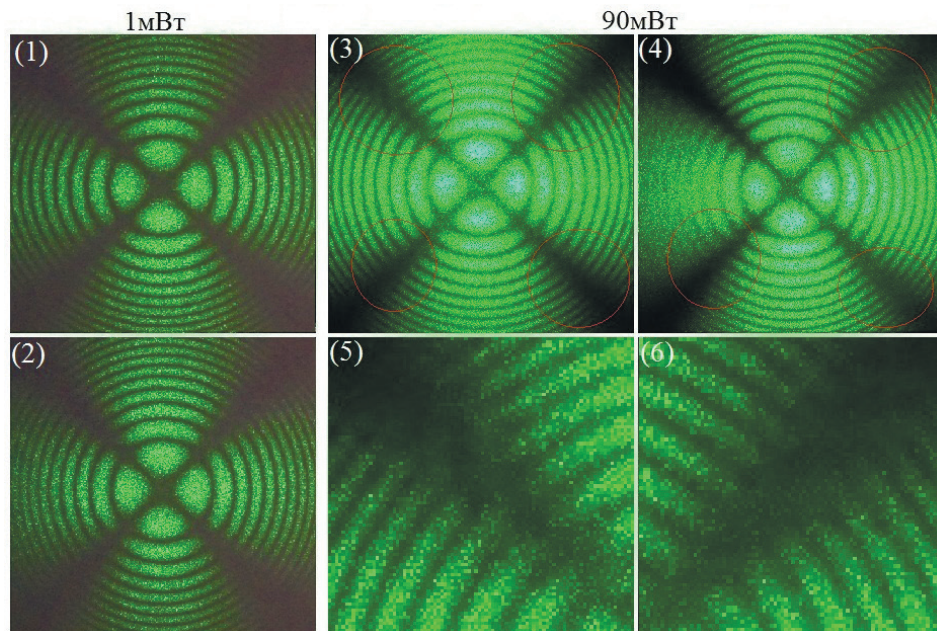


Рисунок 7.19 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес. \%})\text{:Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование, до отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532 \text{ нм}$. $P = 1 \text{ мВт}$ (1), (2); 90 мВт (3)-(6); (5), (6)- аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, рис. 7.19 (3)-(6) коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес. \%})\text{:Fe}(0,0036)$ становятся более четкими и контрастными и имеют вид, в целом соответствующий одноосным кристаллам. Однако в них появляются слабые, но хорошо заметные интерференционные аномалии, свидетельствующие о появлении слабой оптической двуосности. В области почти всех ветвей «мальтийского креста» обеих коноскопических картин кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес. \%})\text{:Fe}(0,0036)$, наблюдаются разрывы, смещение и попарное смыкание изохром на границе смежных квадрантов, рис. 7.19 (3), (4). В качестве примера, на рис. 7.19 (5), (6), в увеличенном масштабе представлены верхняя левая ветвь «мальтийского креста» коноскопической картины на рис. 7.19 (3), и верхняя правая ветвь «мальтийского креста» коноскопической картины на рис. 7.19 (4), на которых эти аномалии наиболее хорошо различимы. В области минимальной интенсивности левой верхней ветви «мальтийского креста», рис. 7.19 (5), третья и четвертая, пятая и шестая, седьмая и восьмая, девятая и десятая изохромы из левого горизонтального квадранта попарно замыкаются соответственно на четвертую, шестую, восьмую и десятую изохромы в смежном вертикальном квадранте. Третья, пятая, седьмая и девятая изохромы вертикального квадранта имеют разрыв в области левой ветви «мальтийского креста», а их интенсивность отличается от минимальной, характерной для строго одноосного кристалла. Левая верхняя ветвь «мальтий-

ского креста», рис. 7.19 (5), в области между второй и седьмой изохромами содержит дополнительную систему вертикальных интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины кристалла. Похожие аномалии в виде дополнительных интерференционных структур наблюдаются также для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,0 и 5,5 мол.%), см. раздел 7.3.2. Увеличение мощности лазерного излучения, используемого в эксперименте, от 1 до 90 мВт приводит к определенному усилению контраста и четкости изображения, а также к появлению интерференционных аномалий на коноскопических картинах, что, вероятно, связано с присутствием в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес.}\%):\text{Fe}(0,0036)$ фоторефрактивной примеси железа.

На рис. 7.20 представлены коноскопические картины аналогичного кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес.}\%):\text{Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование), но после отжига в закороченном состоянии. Так же, как это наблюдалось для исследованных ранее кристаллов LiNbO_3 (№3, №4, рис. 7.3, 7.4), LiNbO_3 (№5, №6, рис. 7.5, 7.6), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес.}\%, \text{ твердофазное легирование})$ (№1, №2, рис. 7.11, 7.12), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес.}\%, \text{ гомогенное легирование})$ (№3, №4, рис. 7.13, 7.14), коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес.}\%):\text{Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование) показывают ухудшение оптического качества кристалла после отжига в закороченном состоянии.

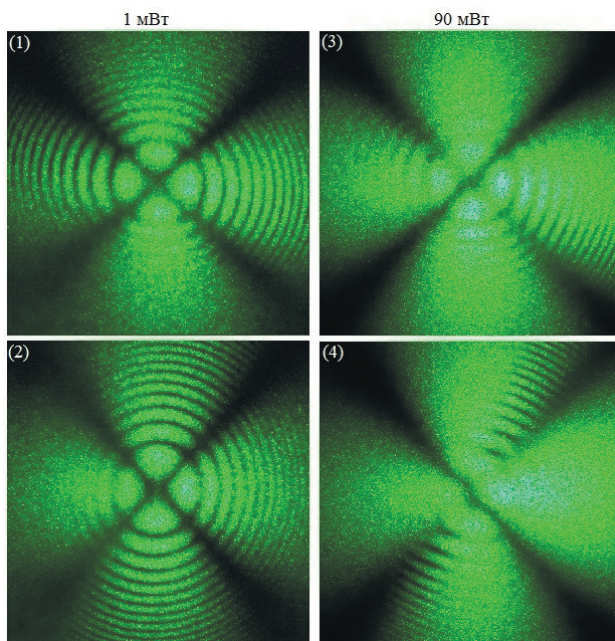


Рисунок 7.20 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес.}\%):\text{Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование, после отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532 \text{ нм}$. $P = 1 \text{ мВт}$ (1), (2); 90 мВт (3), (4)

Из рис. 7.20 видно, что коноскопические картины, как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения значительно размываются по сравнению с коноскопическими картинами кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,86 \text{ вес. \%})\text{:Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование) до отжига, рис. 7.19. Даже при мощности 1 мВт практически полностью размыты нижний квадрант (рис. 7.20 (1)) и левый квадрант, рис. 7.20 (2), коноскопических картин. Кроме того, наблюдается увеличение количества дефектов в области ветвей «мальтийского креста» на обеих коноскопических картинах, рис. 7.20 (1), (2). При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, рис. 7.20 (3), (4), детали коноскопических картин практически неразличимы.

7.3.4 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Gd:Mg}$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Ta:Mg}$

Кристаллы $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}^{3+}(0,23 \text{ вес. \%})\text{:Mg}^{2+}(0,75)$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}^{5+}(1,13 \text{ вес. \%})\text{:Mg}^{2+}(0,011)$ обладают сравнительно низким эффектом фоторефракции, см. главу 9, и перспективны в качестве материалов для преобразователей частоты, формирования микронных, субмикронных и нанометровых периодических структур, электрооптических модуляторов и затворов. Двойное легирование бывает перспективно для получения кристаллов повышенной оптической прочности.

Для монокристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}^{3+}(0,23)\text{:Mg}^{2+}(0,75)$, рис. 7.21, наблюдается слабая аномальная двуосность, проявляемая на коноскопической картине незначительной деформацией в центре черного «мальтийского креста» в виде разрыва и вертикального смещения от центра фрагментов креста. Изохромы приобретают слабую эллиптичность в вертикальном направлении коноскопической картины, сохраняя правильную геометрическую форму (рис. 7.21 (1), (3)). На ветвях «мальтийского креста» наблюдаются незначительные деформации, которые не очень четко различимы при $P < 1$ мВт, рис. 7.21 (1), (2), и более четко проявляются на коноскопической картине при большей мощности лазерного излучения, рис. 7.21 (3), (4). Увеличение мощности лазерного излучения приводит к усилению контраста и четкости изображения, но не вносит существенных аномалий в коноскопические картины, рис. 7.21 (3), (4).

На рис. 7.22 приведены коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13 \text{ вес. \%})\text{:Mg}(0,011)$, полученные при сканировании по плоскости входной грани. Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13 \text{ вес. \%})\text{:Mg}(0,011)$ при $P < 1$ мВт соответствуют как одноосному кристаллу, рис. 7.22 (2), так и двуосному кристаллу, рис. 7.22 (1). На коноскопической картине, соответствующей одноосному кристаллу, рис. 7.22 (2), изохромы имеют вид концентрических окружностей с центром в точке выхода оптической оси, а «мальтийский крест» сохраняет минимальную интенсивность в пределах всего поля зрения. В то же время на другой коноскопической картине, полученной при сканировании лазерным лучом по плоскости входной грани кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13 \text{ вес. \%})\text{:Mg}(0,011)$, рис. 7.22 (1), имеются признаки, характерные для возникающей аномальной оптической двуо-

ности: заметное искажение формы «мальтийского креста» с разрывом на две части в центре поля зрения, приобретение изохромами эллиптической формы. Кривизна изохром изменяется при переходе через ветви «мальтийского креста» с непрямыми углами. Первая изохрома имеет разрыв, смещение и смыкание со второй изохромой в области правой нижней ветви «мальтийского креста», рис. 7.22 (1). Кроме того, отмечено также наличие внутренней «мозаичной» структуры, что уверенно проявляется на коноскопических картинах некоторой размытостью изображения, снижением резкости и контраста, рис. 7.22 (1).

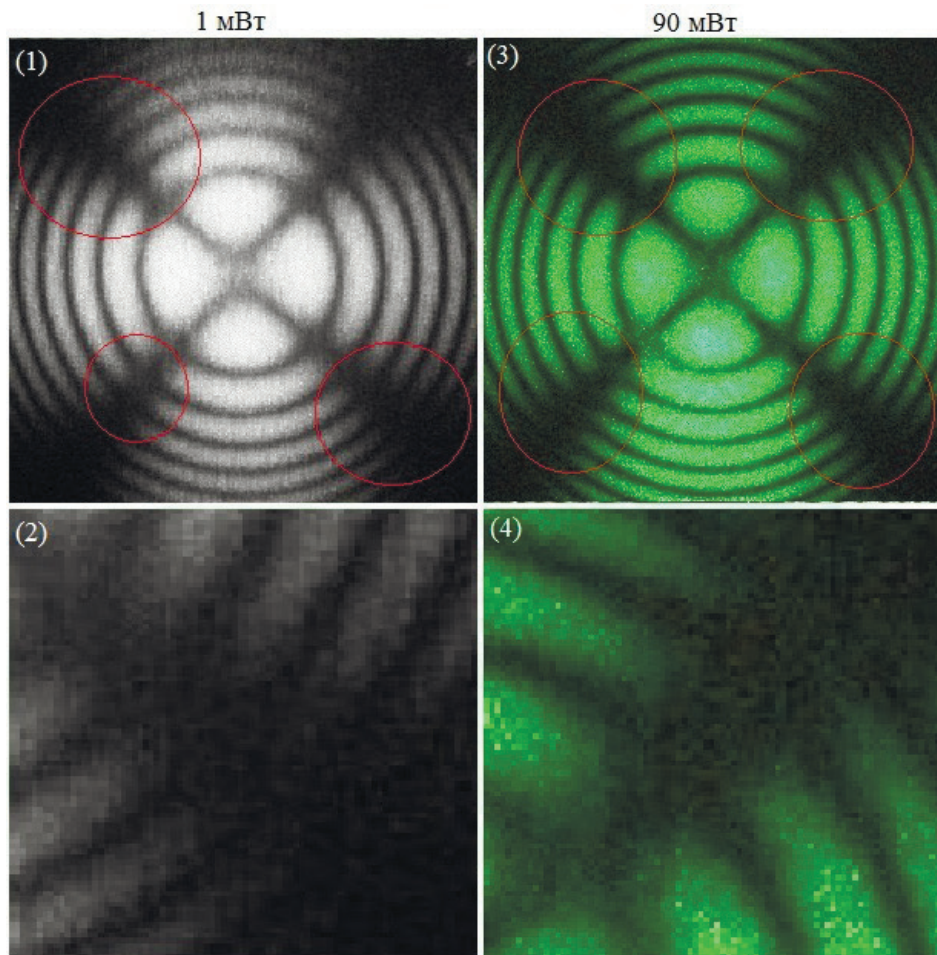


Рисунок 7.21 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}^{3+}(0,23 \text{ вес. \%}):\text{Mg}^{2+}(0,75)$. He-Ne лазер ($\lambda_0 = 632,8 \text{ нм}$, $P < 1 \text{ мВт}$ – (1), (2)) и лазер Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532 \text{ нм}$, $P = 90 \text{ мВт}$ – (3), (4)). (2), (4) – аномалии коноскопических картин в увеличенном масштабе

Изображение «мальтийского креста» в целом имеет размытый вид, а его верхний левый фрагмент представляет собой размытую спекл-структуру с отсутствием четких контуров и минимальной интенсивностью. Наличие двух

сильно различающихся коноскопических картин, полученных при сканировании по плоскости входной грани, указывает на значительную оптическую неоднородность исследованного кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Ta}(1,13 \text{ вес. \%}):\text{Mg}(0,011)$. При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, рис. 7.22 (3), коноскопическая картина становится гораздо более четкой и контрастной. Сохраняются искажения и признаки, характерные для аномальной оптической двуосности: разрыв черного «мальтийского креста» на две части в горизонтальном направлении с просветлением в центре поля зрения. Углы между ветвями «мальтийского креста» также отличны от 90° . На ветвях «мальтийского креста» (изогирах) имеются незначительные деформации, в качестве примера нижняя правая изогира представлена в увеличенном масштабе на рис. 7.22 (4). Дополнительных искажений коноскопической картины, связанных с увеличением мощности лазерного излучения, не наблюдается, рис. 7.22 (3), что хорошо согласуется с данными ФИРС, согласно которым для данного кристалла не происходит раскрытия индикатрисы ФИРС даже при мощности лазерного излучения 160 мВт, см. главу 9.

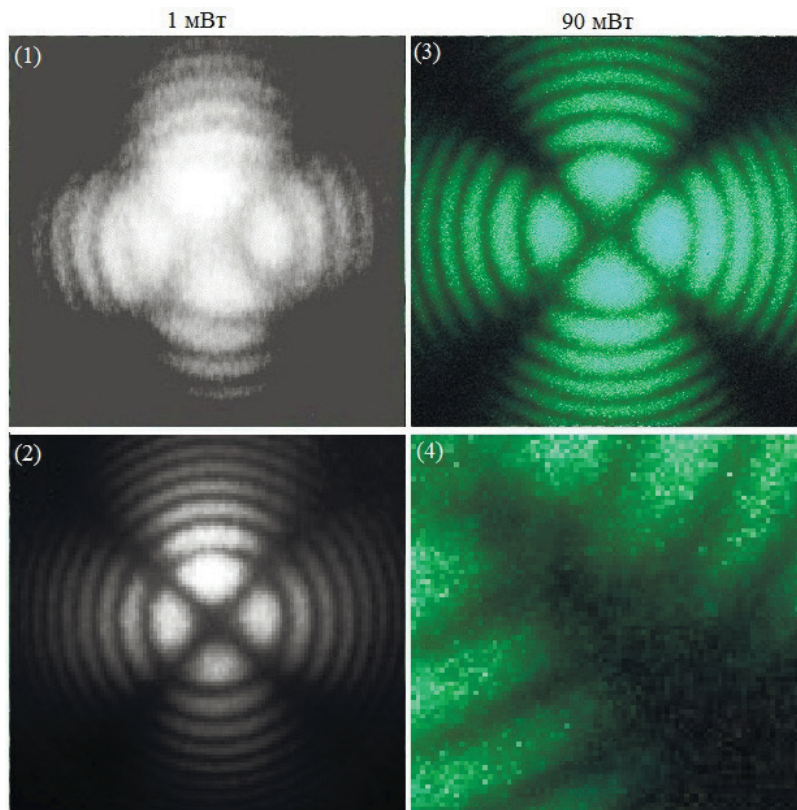


Рисунок 7.22 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Ta}^{5+}(1,13 \text{ вес. \%}):\text{Mg}^{2+}(0,011)$. He-Ne лазер ($\lambda_0 = 632,8 \text{ нм}$, $P < 1 \text{ мВт}$ – (1), (2)) и лазер Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532 \text{ нм}$, $P = 90 \text{ мВт}$ – (3), (4)). (4) – аномалии коноскопической картины в увеличенном масштабе

В целом коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}^{3+}(0,23 \text{ вес. \%}):\text{Mg}^{2+}(0,75)$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Ta}^{5+}(1,13 \text{ вес. \%}):\text{Mg}^{2+}(0,011)$, рис. 7.20 и 7.21, имеют более размытый вид по сравнению с кристаллом LiNbO_3 _{зонтр}, рис. 7.1, 7.5, что свидетельствует об их большей оптической неоднородности, обусловленной, очевидно, неравномерностью распределения примесей по объему кристаллов.

7.3.5 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$

Пространственные структурные дефекты, искажения оптической индикации, вызванные механическими напряжениями или композиционной неоднородностью кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$, а также статические и флуктуирующие дефекты, наведенные в фоторефрактивном кристалле лазерным излучением, исследованы нами методом лазерной коноскопии при различной мощности лазерного излучения и в зависимости от содержания легирующего компонента. При этом при малой мощности лазерного излучения отличия коноскопических картин от идеальных обусловлены структурной неоднородностью кристаллов. Искажения коноскопических картин, появляющиеся дополнительно с увеличением мощности лазерного излучения, дадут информацию об искажениях структуры фоторефрактивных кристаллов, вызванных действием лазерного луча.

На рис. 7.23, 7.24 представлены коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(0,03 \div 4,5 \text{ мол. \%})$, полученные при мощности излучения 1 и 90 мВт. Картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(0,03)$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(0,05 \text{ мол. \%})$ при мощности лазерного излучения в 1 и 90 мВт (рис. 7.23 (1), (2), 7.24 (1), (2)) хорошо совпадают и соответствуют картине одноосного оптически однородного кристалла. Картины имеют круговую симметрию, «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения. Однако при 90 мВт на картине $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(0,03 \text{ мол. \%})$, рис. 7.23 (1), при внимательном рассмотрении, наблюдается присутствие дополнительных интерференционных полос в нижней полуплоскости, в области правой ветви «мальтийского креста» между первой и пятой изохромами. При этом наблюдается разрыв первой изохромы и незначительное просветление в области «мальтийского креста».

Коноскопическая картина кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(0,94 \text{ мол. \%})$ при мощности в 1 мВт полностью соответствует одноосному кристаллу, рис. 7.23 (3). Однако при мощности в 90 мВт появляются признаки, характерные для аномальной оптической двуосности, такие как деформация «мальтийского креста» в центре поля зрения со сдвигом фрагментов в горизонтальном направлении от центра и отличие от 90° углов между его ветвями. Изохромы приобретают слабую эллиптичность, сохраняя правильную геометрическую форму, рис. 7.24 (3). Кроме того, в области верхней левой ветви «мальтийского креста», а также в нижней полуплоскости коноскопической картины присутствуют незначительные интерференционные аномалии в виде разрыва изохром и наличия дополнительных интерференционных полос. При этом контраст изображения в области верхней левой и нижних ветвей «мальтий-

ского креста» несколько снижен. Такие искажения коноскопической картины несомненно вызваны эффектом фоторефракции. Но появление аномальной оптической двуосности, вероятно, обусловлено существованием локальных микрообластей и кластеров в кристалле, обладающих двулучепреломлением. Это подтверждается исследованиями ФИРС, где отчетливо наблюдалось деление центрального пятна картины ФИРС на две половины, свидетельствующее о проявлении двулучепреломления, см. главу 9.

Появление локальных микрообластей и кластеров в кристалле при мощности лазерного излучения в 90 мВт можно объяснить термостимулированным двулучепреломлением, проявление которого в коноскопических картинах в кристалле ниобата лития подробно рассмотрено в работе [265]. Аномалии, появляющиеся на коноскопических картинах при увеличении мощности лазерного излучения от 1 до 90 мВт, были зафиксированы нами при исследовании фоторефрактивных кристаллов LiNbO_3 : Y^{3+} (0,46 вес. %), LiNbO_3 : Y^{3+} (0,24 вес. %): Mg^{2+} (0,63), для которых характерен фоторефрактивный отклик и в которых индикатриса ФИРС раскрывается очень быстро, в первые секунды с момента облучения кристалла лазерным излучением, см. разделы 7.2 и 7.3.8. Очевидно, что и искажения коноскопических картин исследованных кристаллов связаны с проявлением структурных перестроек и оптических процессов, происходящих под действием лазерного излучения.

Для кристалла LiNbO_3 : Zn (1,12 мол.%) при мощности лазерного излучения 1 мВт коноскопическая картина также соответствует одноосному кристаллу, рис. 7.23 (4). Однако в области нижней правой ветви «мальтийского креста» несколько снижен контраст изображения. При 90 мВт, рис. 7.24 (4), на коноскопической картине появляются значительные аномалии, такие же, которые наблюдалось для кристалла LiNbO_3 : Zn (0,94 мол. %), указывающие на оптическую неоднородность образца. Однако признаков аномальной оптической двуосности, как это наблюдалось для кристалла LiNbO_3 : Zn (0,94 мол. %), рис. 7.24 (3), не обнаружено.

Коноскопическая картина кристалла LiNbO_3 : Zn (1,59 мол.%), как при мощности излучения в 1 мВт, так и в 90 мВт, соответствует одноосному кристаллу, рис. 7.23 (5), 7.24 (5). Однако при 90 мВт наблюдается незначительное размытие «мальтийского креста» и некоторое уменьшение контраста изображения в области его верхней левой ветви, рис. 7.24 (5). Существенных искажений (вызванных эффектом фоторефракции), характерных для кристаллов LiNbO_3 : Zn (0,94) и LiNbO_3 : Zn (1,12 мол. %), для кристалла LiNbO_3 : Zn (1,59 мол. %) не обнаружено, что хорошо согласуется с данными ФИРС, см. главу 9.

Наиболее интересные аномалии в коноскопической картине обнаружены для кристалла LiNbO_3 : Zn (4,5 мол. %), рис. 7.23 (6), 7.24 (6). Уже при мощности 1 мВт картина имеет признаки явно выраженной аномальной оптической двуосности: наблюдается деформация в центре черного «мальтийского креста» в виде вертикального смещения от центра фрагментов креста, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла, рис. 7.23 (6). Существует просветление в центральной части черного

«мальтийского креста», а углы между его ветвями отличны от 90° . При этом изохромы сохраняют целостность и правильную геометрическую форму, но вытянуты в направлении смещения фрагментов креста и приобретают форму эллипсов, рис. 7.23 (6). Присутствует некоторая размытость изображения, что указывает на оптическую неоднородность исследуемого образца. Кроме того, в области всех ветвей «мальтийского креста» имеются видимые аномалии. Подобные искажения коноскопической картины, несомненно, связаны со структурной неоднородностью кристалла, вероятно, вследствие неравномерного вхождения (при столь высокой концентрации) катионов Zn^{2+} в структуру в процессе роста кристалла. Этот вывод подтверждается данными ФИРС, см. главу 9, и КРС [279]. Для кристалла $LiNbO_3:Zn(4,5 \text{ мол. \%})$ была обнаружена гораздо большая рассеивающая способность, см. главу 9, по сравнению с другими кристаллами $LiNbO_3:Zn$, а в спектрах КРС обнаружено проявление уширения линий, соответствующих как внутренним колебаниям кислородных октаэдров O_6 , так и колебаниям катионов Nb^{5+} и Li^+ в октаэдрах O_6 [279].

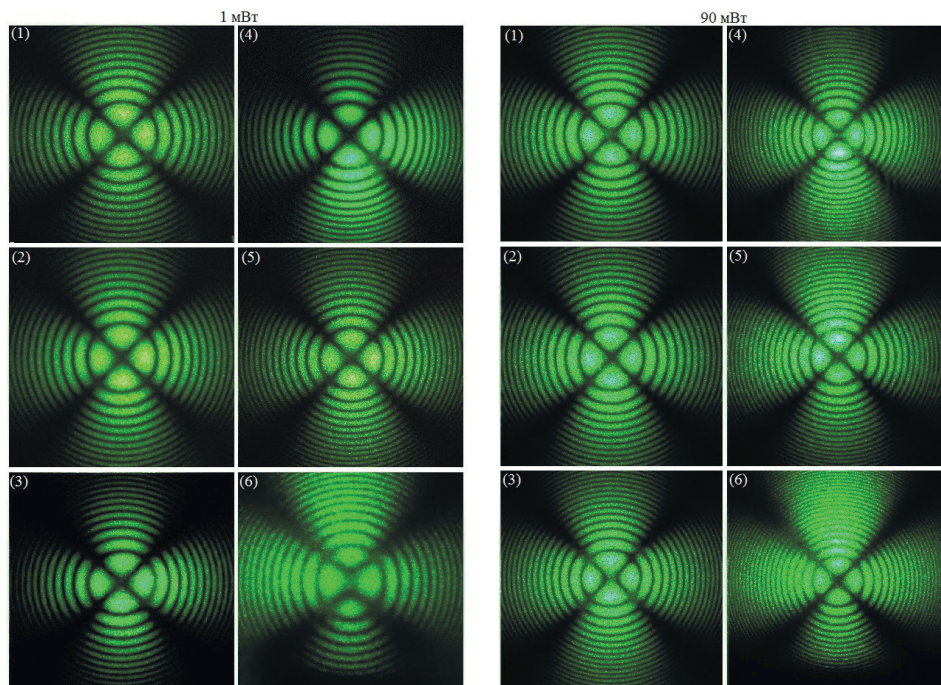


Рисунок 7.23 – Коноскопические картины кристаллов $LiNbO_3:Zn^{2+}$: (1)- 0.03; (2)- 0.05; (3)- 0.94; (4)- 1.12; (5)- 1.59; (6)- 4.5 мол.%. $\lambda = 532 \text{ нм}$. $P = 1 \text{ мВт}$

Рисунок 7.24 – Коноскопические картины кристаллов $LiNbO_3:Zn^{2+}$: (1)- 0.03; (2)- 0.05; (3)- 0.94; (4)- 1.12; (5)- 1.59; (6)- 4.5 мол.%. $\lambda = 532 \text{ нм}$. $P = 90 \text{ мВт}$

Необычно и то, что при 90 мВт для кристалла $LiNbO_3:Zn(4,5 \text{ мол. \%})$ наблюдается стандартная коноскопическая картина одноосного кристалла высокого оптического качества, рис. 7.24 (6), существенно лучшая,

чем при мощности в 1 мВт, рис. 7.23 (6). Наблюдается круговая симметрия, черный контрастный «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы представляют собой концентрические окружности с центром в точке выхода оптической оси. Лишь в области левой верхней ветви «мальтийского креста» имеется незначительное снижение контраста изображения. Такое улучшение оптического качества кристалла может быть вызвано «залечиванием» дефектов лазерным излучением при увеличении его мощности. При этом не обнаружено изменений в коноскопической картине кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(4,5 \text{ мол.}\%)$, обусловленных фоторефрактивным эффектом. Это хорошо коррелирует с данными ФИРС, согласно которым в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(4,5 \text{ мол.}\%)$ фоторефрактивный отклик отсутствует даже при мощности лазерного излучения в 160 мВт, см. главу 9.

В кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(0,03\div 4,5 \text{ мол.}\%)$, отличающиеся сравнительно низким эффектом фоторефракции, эффект фоторефракции немонотонно зависит от концентрации катионов Zn^{2+} в кристалле, см. главу 9. При концентрациях Zn^{2+} 0,03; 0,94; 1,12 и 1,59 мол. % в кристалле обнаружено увеличение фоторефракции, а при концентрациях 0,05 и 4,5 мол. % – существенное уменьшение фоторефракции по сравнению с номинально чистым конгруэнтным кристаллом, см. главу 9. При этом эффект фоторефракции снижается уже начиная с концентрации Zn^{2+} в 1,59 мол. % и практически отсутствует при концентрации Zn^{2+} в 4,5 мол. %. В области концентраций $\text{Zn}^{2+} \sim 0,05\div 0,94 \text{ мол.}\%$ по спектрам КРС обнаружена область повышенного упорядочения структуры, когда в катионной подрешетке повышен порядок чередования основных, примесных катионов и вакансий вдоль полярной оси [279]. При этом на коноскопических картинах кристаллов зафиксировано появление аномальной оптической двуосности, особенно заметное при мощности лазерного излучения в 90 мВт. Однако для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(4,5 \text{ мол.}\%)$ при мощности лазерного излучения в 90 мВт наблюдается стандартная коноскопическая картина одноосного кристалла высокого оптического качества, существенно лучшая, чем при мощности в 1 мВт, что обусловлено «залечиванием» дефектов лазерным излучением. Высокое оптическое качество кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(4,5 \text{ мол.}\%)$ подтверждается также существенным (по сравнению с остальными исследованными кристаллами $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$) смещением края оптического пропускания в коротковолновую область [279].

Кристалл $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(4,5 \text{ мол.}\%)$, для которого было обнаружено улучшение оптической однородности по коноскопическим картинам при большой мощности лазерного излучения, рис. 7.23 (6), 7.24 (6), был подвергнут отжигу в закороченном состоянии. Как до, так и после отжига в закороченном состоянии, даже при мощности возбуждающего излучения в 160 мВт, фоторефрактивный отклик для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(4,5 \text{ мол.}\%)$ отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Угол рассеяния составляет не более 3 градусов. При этом картина рассеяния сохраняет форму близкую к кругу на протяжении всего эксперимента, см. главу 9.

На рис. 7.25 представлены коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(4,5 \text{ мол. \%})$ после отжига в закороченном состоянии. Коноскопическая картина, полученная при мощности лазерного излучения 1 мВт, рис. 7.25 (1), значительно отличается от коноскопической картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}(4,5 \text{ мол. \%})$ до отжига, рис. 7.23 (6), $P = 1 \text{ мВт}$. А именно: коноскопическая картина кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}(4,5 \text{ мол. \%})$ после отжига отличается большей резкостью и в целом имеет вид, характерный для одноосных кристаллов. Изохромы (линии одинакового фазового сдвига) имеют вид концентрических окружностей с центром в точке выхода оптической оси, а «мальтийский крест» сохраняет минимальную интенсивность в пределах всего поля зрения. Имеется незначительное вытягивание «мальтийского» креста в вертикальном направлении, однако признаков аномальной оптической двуосности, как это наблюдалось для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}(4,5 \text{ мол. \%})$ до отжига, рис. 7.23 (6), обнаружено не было, рис. 7.25 (1). При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт также получена практически стандартная коноскопическая картина одноосного кристалла, рис. 7.25 (2). Таким образом, кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}(4,5 \text{ мол. \%})$ после отжига оптически однороден и имеет хорошее оптическое качество. Этот результат не согласуется с полученными ранее результатами исследований кристаллов LiNbO_3 (№3, №4, рис. 7.3, 7.4), LiNbO_3 (№5, №6, рис. 7.5, 7.6), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес. \%}, \text{ твердофазное легирование})$ (№1, №2, рис. 7.11, 7.12), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес. \%}, \text{ гомогенное легирование})$ (№3, №4, рис. 7.13, 7.14), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,86 \text{ вес. \%}):\text{Fe}(0,0036)$ (гомогенное легирование) (рис. 7.19, 7.20), согласно которым после отжига в закороченном состоянии оптическое качество кристаллов ухудшается.

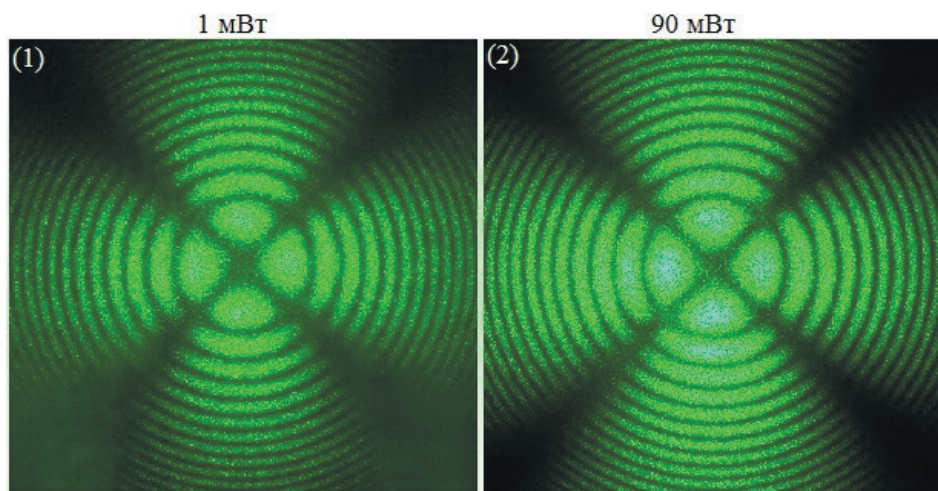


Рисунок 7.25 – Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}(4,5 \text{ мол. \%})$, после отжига в закороченном состоянии. $\lambda = 532 \text{ нм}$. (1)- $P = 1 \text{ мВт}$, (2)- $P = 90 \text{ мВт}$

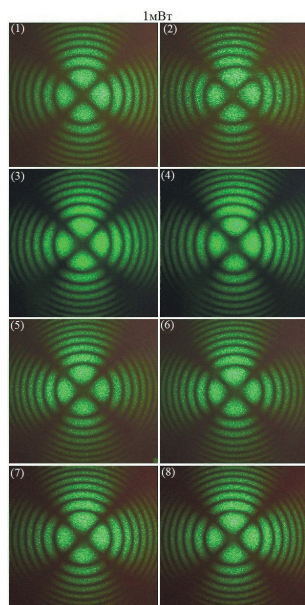


Рисунок 7.26 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: (1), (2)- 4.46 мол. %; (3), (4)- 4.52 мол. %; (5), (6)- 4.61 мол. % и (7), (8)- 4.69 мол. %) (пластины, $Z = 3$ мм). $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт

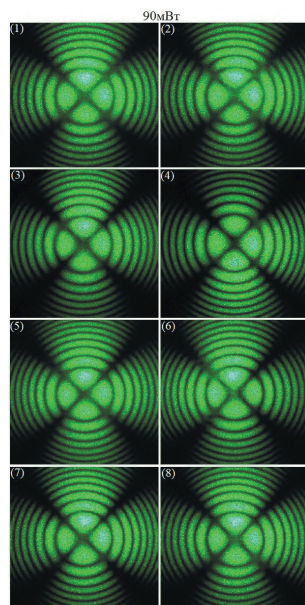


Рисунок 7.27 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: (1), (2)- 4.46 мол. %; (3), (4)- 4.52 мол. %; (5), (6)- 4.61 мол. % и (7), (8)- 4.69 мол. %) (пластины, $Z = 3$ мм). $\lambda = 532$ нм. $P = 90$ мВт

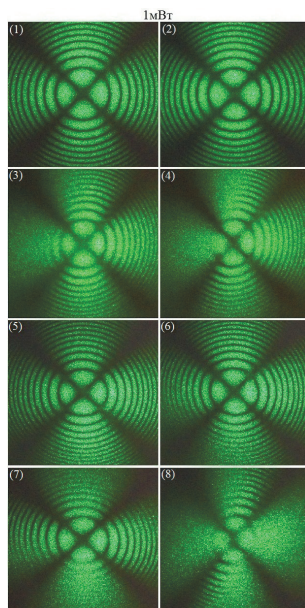


Рисунок 7.28 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: (1), (2)- 4.46 мол. %; (3), (4)- 4.52 мол. %; (5), (6)- 4.61 мол. % и (7), (8)- 4.69 мол. %) (параллелепипеды, $Z = 10$ мм). $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт

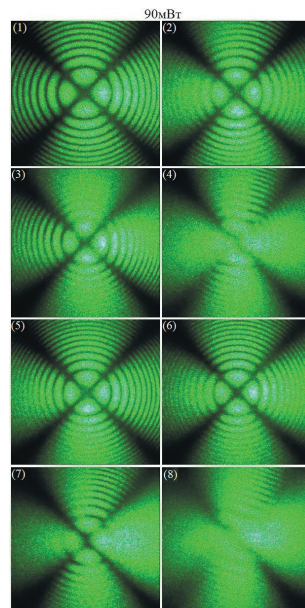


Рисунок 7.29 –Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: (1), (2)- 4.46 мол. %; (3), (4)- 4.52 мол. %; (5), (6)- 4.61 мол. % и (7), (8)- 4.69 мол. %) (параллелепипеды, $Z = 10$ мм). $\lambda = 532$ нм. $P = 90$ мВт

Изменений в коноскопических картинах кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,5 мол. %) при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, как до, так и после отжига, рис. 7.24 (6), 7.25 (2), связанных с проявлением фоторефрактивного эффекта, не обнаружено. Это хорошо коррелирует с данными ФИРС, согласно которым для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,5 мол. %) фоторефрактивный отклик отсутствует, см. главу 9.

На рис. 7.26-7.31 представлены коноскопические картины серии кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (пластины, $Z = 3$ мм и параллелепипеды, $Z = 10$ мм), с малым шагом по концентрации, легированных разными способами, (4,46, 4,52, 4,61 мол. % – твердофазное легирование и 4,69 мол. % – гомогенное легирование), до и после отжига в закороченном состоянии.

Как до, так и после отжига в закороченном состоянии индикатриса ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ не раскрывается, фоторефрактивный отклик отсутствует, наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах, см. главу 9. Картины ФИРС исследованных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ до отжига в закороченном состоянии значительно отличаются друг от друга. Анализ картин рассеяния кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование и 4,69 мол. % – гомогенное легирование) указывает на более высокую дефектность этих кристаллов по сравнению с кристаллами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 и 4,61 мол. % – твердофазное легирование). Особенно сильно выражено это для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование), см. главу 9.

В целом, коноскопические картины всех исследованных образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$, вырезанных в виде пластин, рис. 7.26, 7.27, обладают большей контрастностью и гораздо меньшей размытостью изображения по сравнению с образцами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$, вырезанных в форме параллелепипедов, рис. 7.28, 7.29, что связано с изменением толщины образцов – пластины – 3 мм, параллелепипеды – 10 мм.

Коноскопическая картина кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) (пластина), рис. 7.26 (1), при мощности лазерного излучения 1 мВт имеет практически стандартный вид, характерный для одноосного кристалла. Наблюдается круговая симметрия, при которой черный контрастный «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы представляют собой концентрические окружности с центром в точке выхода оптической оси. Такая коноскопическая картина свидетельствует об оптической однородности образца и хорошем оптическом качестве.

Однако при сканировании по плоскости входной грани для данного кристалла получена также коноскопическая картина, на которой имеются незначительные искажения, рис. 7.26 (2). А именно, незначительная деформация «мальтийского креста» с вытягиванием его фрагментов в вертикальном направлении, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла, нарушение круговой симметрии. Такие искажения коноскопической картины указывают на признаки аномальной оптической двуосности, присутствующей в незначительной степени. Кроме того, наблюдаются аномалии в области верхних изогир в виде некоторой их деформации, особенно заметной в области

правой верхней изогире, рис. 7.26 (2). Подобные искажения коноскопической картины, вероятно, связаны со структурной неоднородностью $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) (пластина), например, вследствие неравномерного вхождения легирующего компонента в процессе роста кристалла.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) (пластина) при сканировании по плоскости входной грани также были получены коноскопические картины двух видов: стандартная, не имеющая искажений коноскопическая картина одноосного оптически однородного кристалла, рис. 7.27 (1) и коноскопическая картина, имеющая признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.27 (2): «мальтийский крест» в центре поля зрения деформирован со сдвигом фрагментов в вертикальном направлении от центра, углы между его ветвями отличны от 90° . Изохромы приобретают слабую эллиптичность, сохраняя правильную геометрическую форму, рис. 7.27 (2). Кроме того, в области верхних ветвей «мальтийского креста» наблюдается незначительная их деформация, в области нижней правой ветви «мальтийского креста» присутствуют незначительные интерференционные аномалии в виде разрыва изохром и наличия дополнительных интерференционных полос между второй и четвертой изохромами. При этом контраст изображения в области «мальтийского креста», а также в области его верхних и нижней правой ветвей несколько снижен. Дополнительных аномалий при увеличении лазерного излучения, определяемых фоторефрактивными свойствами кристаллов, обнаружено не было, что хорошо коррелирует с результатами исследования ФИРС кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) (пластина), согласно которым фоторефрактивный отклик для данного кристалла отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, см. главу 9.

Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед) при увеличении толщины образца с 3 мм до 10 мм не обнаруживают значительных изменений, рис. 7.28 (1), (2), 7.29 (1), (2). Также как и для пластины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование), рис. 7.26 (1), (2), для образца в виде параллелепипеда при сканировании по плоскости входной грани при мощности излучения 1 мВт получены два вида коноскопических картин: картина, характерная для одноосного кристалла, практически стандартная, не имеющая искажений, рис. 7.28 (1), а также коноскопическая картина с признаками аномальной оптической двуосности, на которой имеется незначительная деформация «мальтийского креста» с вытягиванием его фрагментов в вертикальном направлении, рис. 7.28 (2).

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт значительных искажений коноскопических картин образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед) не обнаружено, рис. 7.29 (1), (2). Так же, как и для образца в виде пластины, рис. 7.27 (1), (2), при сканировании по плоскости входной грани образца, вырезанного в виде параллелепипеда, было зафиксировано два вида коноскопических картин: практически стандартная коноскопическая картина одноосного кристалла, рис.

7.29 (1), что указывает на оптическую однородность исследуемого образца, а также коноскопическая картина, содержащая незначительные аномалии, рис. 7.29 (2). На этой коноскопической картине не зафиксировано признаков аномальной оптической двуосности, как это наблюдалось для образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед) при малой мощности лазерного излучения, рис. 7.28 (2), однако присутствует некоторая размытость изображения, снижение контраста, более проявлена спекл-структура, рис. 7.29 (2). Это может быть обусловлено некоторой оптической неоднородностью исследуемого образца.

Для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) (пластина), рис. 7.26 (3), (4), при мощности лазерного излучения 1 мВт получено два вида коноскопических картин, одна из них имеет практически стандартный вид, характерный для одноосного кристалла. Наблюдается круговая симметрия, при которой «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы представляют собой концентрические окружности с центром в точке выхода оптической оси, рис. 7.26 (3). Это свидетельствует об оптической однородности образца и хорошем оптическом качестве. На второй коноскопической картине, рис. 7.26 (4), имеются признаки аномальной оптической двуосности: «мальтийский крест» вытянут в вертикальном направлении, однако разрыва его не наблюдается. Углы между ветвями «мальтийского креста» отличаются от 90° , изохромы приобретают вид эллипсов. В области верхней правой ветви «мальтийского креста» присутствует дополнительная система интерференционных полос, рис. 7.26 (4). Такие аномалии коноскопической картины указывают на оптическую неоднородность образца.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт дополнительных искажений коноскопических картин образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) (пластина) не обнаружено, рис. 7.27 (3), (4). Также при сканировании по плоскости входной грани было зафиксировано два вида коноскопических картин: практически стандартная коноскопическая картина одноосного кристалла, рис. 7.27 (3), а также коноскопическая картина, содержащая признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.27 (4). На этой коноскопической картине «мальтийский крест» вытянут в вертикальном направлении, разрыва его также не наблюдается. Углы между ветвями «мальтийского креста» отличаются от 90° , изохромы приобретают вид эллипсов. Так же, как и для малой мощности лазерного излучения, в области верхней правой ветви «мальтийского креста» присутствует дополнительная система интерференционных полос, рис. 7.27 (4). Таким образом, образец $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) (пластина) также можно характеризовать с одной стороны оптически однородным, но имеющим области с аномальной оптической двуосностью, что очевидно обусловлено неравномерным распределением легирующей примеси по объему кристалла.

При увеличении толщины образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед) с 3 до 10 мм, коноскопические картины как при малой, так и при большой мощности излучения приобретают значительные аномалии, рис. 7.28 (3), (4), 7.29 (3), (4). Они более размыты,

четкость и контраст изображения значительно снижены. При мощности излучения 1 мВт имеется два вида коноскопических картин: на первой, рис. 7.28 (3), – нет признаков аномальной оптической двуосности, однако кольца-изохромы несколько деформированы, имеют вид эллипсов, что может быть связано с тем, что между оптической осью и нормалью к входной грани кристалла имеется некоторый угол. Кроме того, в области верхней правой изогрифы присутствуют аномалии в виде дополнительной системы интерференционных полос в области между первой и седьмой изохромами. На второй коноскопической картине наблюдаются не только признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.28 (4), а именно – расхождение «мальтийского креста» в вертикальном направлении, хотя и без его разрыва, трансформация колец-изохром в эллипсы, но и практически полное размытие левой полуплоскости коноскопической картины. При этом детали коноскопической картины становятся неразличимы, рис. 7.28 (4).

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт искажения коноскопических картин образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед) усиливаются, рис. 7.29 (3), (4). При сканировании по плоскости входной грани также было зафиксировано два вида коноскопических картин: коноскопическая картина одноосного кристалла, рис. 7.29 (3), а также коноскопическая картина, содержащая признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.29 (4). На коноскопической картине, рис. 7.29 (3), кроме значительного размытия и снижения контраста изображения, зафиксировано наличие дополнительных интерференционных полос в области верхней левой и нижней правой ветвей «мальтийского креста». На рис. 7.29 (4) коноскопическая картина настолько размыта, что становятся неразличимыми фрагменты «мальтийского креста» в центре коноскопической картины. Вероятно, такая деформация коноскопических картин связана с большей рассеивающей способностью кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование), что было обнаружено по результатам исследования ФИРС, см. главу 9.

При сканировании по плоскости входной грани кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) (пластина) при мощности лазерного излучения 1 мВт также получены коноскопические картины двух видов, рис. 7.26 (5), (6). Первая имеет практически стандартный вид, характерный для одноосного кристалла, рис. 7.26 (5). Наблюдается круговая симметрия, при которой черный контрастный «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы представляют собой концентрические окружности с центром в точке выхода оптической оси. Наблюдаются незначительные интерференционные аномалии в области верхней левой ветви «мальтийского» креста. Но в целом коноскопическая картина гораздо менее дефектна по сравнению с коноскопической картиной предыдущего кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) и свидетельствует об оптической однородности образца и хорошем оптическом качестве. Вторая коноскопическая картина $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) (пластина), рис. 7.26 (6), также не имеет значительных искажений. В центре коноскопической картины в области «мальтийского» креста наблюдается незначительное расхождение

его фрагментов в горизонтальном направлении, что указывает на наличие незначительной аномальной оптической двуосности. Круговая симметрия изохром при этом не нарушена. В области верхней левой изогрифы зафиксирована незначительная ее деформация. Более значительных искажений коноскопических картин не обнаружено.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) (пластина) при сканировании по плоскости входной грани была получена практически стандартная коноскопическая картина одноосного оптически однородного кристалла, рис. 7.27 (5). В области верхней левой ветви «мальтийского» креста наблюдаются незначительные аномалии в виде дополнительных интерференционных полос. Других деформаций коноскопической картины не было обнаружено, рис. 7.27 (5). Также была получена коноскопическая картина, имеющая признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.27 (6): «мальтийский крест» в центре поля зрения деформирован с просветлением в центре и сдвигом фрагментов в горизонтальном направлении от центра, углы между его ветвями отличны от 90° . Изохромы приобретают слабую эллиптичность, сохраняя правильную геометрическую форму, рис. 7.27 (6). В левой полуплоскости коноскопической картины в области ветвей «мальтийского креста» наблюдается наличие интерференционных аномалий в виде разрыва изохром и наличия дополнительных интерференционных полос. При этом контраст изображения в левой полуплоскости коноскопической картины несколько снижен. Такие искажения коноскопической картины указывают на оптическую неоднородность кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) (пластина).

Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед) при увеличении толщины образца с 3 мм до 10 мм не обнаруживают значительных изменений, рис. 7.28 (5), (6), 7.29 (5), (6). При мощности излучения 1 мВт получены практически стандартные коноскопические картины, характерные для одноосного кристалла, рис. 7.28 (5), (6). Незначительная деформация имеется на первой коноскопической картине, рис. 7.28 (5), в области ветвей «мальтийского» креста. На второй коноскопической картине рис. 7.28 (6), в правой полуплоскости в области ветвей «мальтийского» креста присутствуют дополнительные системы интерференционных полос.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт для образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед) также получены коноскопические картины, характерные для одноосного кристалла, рис. 7.29 (5), (6). Первая коноскопическая картина значительных искажений не имеет, присутствует лишь некоторая размытость изображения, рис. 7.29 (5). На второй коноскопической картине, рис. 7.29 (6), размытость изображения усиливается, наблюдается деформация ветвей «мальтийского» креста, особенно заметная в левой полуплоскости коноскопической картины. Это указывает на наличие оптической неоднородности исследуемого образца.

Для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование) (пластина) при мощности лазерного излучения 1 мВт получено два вида коноскопических картин, рис. 7.26 (7), (8), одна из них - практически стандартная,

характерная для одноосного оптически однородного кристалла, рис. 7.26 (7). Наблюдается круговая симметрия, при которой «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы представляют собой концентрические окружности с центром в точке выхода оптической оси. Видимых аномалий не зафиксировано. Это свидетельствует о хорошем оптическом качестве кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование) (пластина). На второй коноскопической картине, рис. 7.26 (8), имеются признаки аномальной оптической двуосности: «мальтийский крест» деформирован в горизонтальном направлении, с просветлением в центре. Углы между ветвями «мальтийского креста» незначительно отличаются от 90° . Изохромы при этом сохраняют свою целостность и круговую симметрию.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт при сканировании по плоскости входной грани образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование) (пластина) также было получено два вида коноскопических картин, рис. 7.27 (7), (8): практически стандартная коноскопическая картина одноосного кристалла, без видимых искажений, рис. 7.27 (7), а также коноскопическая картина, содержащая признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.27 (8). «Мальтийский крест» незначительно вытянут в вертикальном направлении, наблюдается просветление в его центре. Углы между ветвями «мальтийского креста» отличаются от 90° , симметрия изохром не нарушена. В области нижней правой ветви «мальтийского креста» присутствуют незначительные аномалии в виде дополнительных интерференционных полос, рис. 7.27 (8).

Для образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование) (параллелепипед) коноскопические картины как при малой, так и при большой мощности излучения приобретают значительные аномалии, рис. 7.28 (7), (8), 7.29 (7), (8). Увеличивается размытость изображения, четкость и контраст значительно снижаются. Аналогичная ситуация наблюдалась для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование), рис. 7.28 (3), (4), 7.29 (3), (4). При мощности излучения 1 мВт также имеется два вида коноскопических картин: первая, рис. 7.28 (7), соответствует коноскопической картине одноосного кристалла, однако кольца-изохромы несколько деформированы, что может быть связано с тем, что между оптической осью и нормалью к входной грани кристалла имеется некоторый угол. Нижняя полуплоскость коноскопической картины имеет размытый вид, ее детали становятся неразличимыми, рис. 7.28 (7). На второй коноскопической картине наблюдаются признаки появившейся аномальной оптической двуосности, рис. 7.28 (8): расхождение «мальтийского креста», хотя и без его разрыва, в вертикальном направлении, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла, трансформация колец-изохром в эллипсы. Кроме того, ветви «мальтийского» креста деформированы. Практически вся коноскопическая картина имеет размытый вид, детали ее становятся трудно различимыми, рис. 7.28 (8).

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт искажения коноскопических картин образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование) (параллелепипед), рис. 7.29 (7), (8), также, как и для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) (параллелепипед), рис. 7.29 (3), (4), усиливаются. При сканировании по плоскости входной грани также было за-

фиксировано два вида коноскопических картин: коноскопическая картина, содержащая признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.29 (7). «Мальтийский» крест вытянут в вертикальном направлении, изохромы имеют вид эллипсов. Ветви «мальтийского» креста также деформированы. Присутствует значительное размытие и снижения контраста изображения коноскопической картины, рис. 7.29 (7). На рис. 7.29 (8) коноскопическая картина настолько размыта, что становятся неразличимыми фрагменты «мальтийского креста» в центре коноскопической картины. Вероятно, такая деформация коноскопических картин кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование) так же, как и для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование), связана с большей рассеивающей способностью этих кристаллов, что было обнаружено по результатам исследования ФИРС, см. главу 9.

Таким образом, результаты исследования оптической однородности кристаллов методом лазерной коноскопии показали наличие двух видов коноскопических картин (практически стандартных, характерных для одноосного кристалла, а также коноскопических картин с признаками аномальной оптической двуосности) для всех образцов как при малой мощности лазерного излучения, так и при большой. Практически все коноскопические картины имеют дополнительные аномалии в виде деформаций, разрыва колец-изохром, а также наличия дополнительных интерференционных полос, что может быть обусловлено наличием в кристаллах пространственных структурных дефектов, искажениями оптической индикатрисы, вызванные механическими напряжениями или композиционной неоднородностью кристалла. Для всех кристаллов не обнаружено появления дополнительных аномалий в коноскопических картинах при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, обусловленных наличием статических и флуктуирующих дефектов, наведенных в фоторефрактивном кристалле лазерным излучением, что хорошо согласуется с результатами исследования ФИРС в этих кристаллах. Отличия коноскопических картин от идеальных обусловлены структурной неоднородностью кристаллов. Однако для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование) и (4,69 мол. % – гомогенное легирование) при увеличении толщины образцов до 10 мм зафиксированы значительная деформация и размытие коноскопических картин, как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения. Это может быть обусловлено большей рассеивающей способностью этих кристаллов, что подтверждается результатами исследования ФИРС, см. главу 9.

После отжига в закороченном состоянии кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46–4,69 мол.%) коноскопические картины, как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения приобретают более четкий и контрастный вид, рис. 7.30, 7.31. Не наблюдается размытия коноскопических картин, как это наблюдалось для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование), рис. 7.28 (3), (4) и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование), рис. 7.29 (7), (8).

На рис. 7.30 представлены коноскопические картины при $P = 1$ мВт кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (параллелепипеды, $Z = 10$ мм, после отжига в закороченном состоянии): (4,46, 4,52, 4,61 мол. % – твердофазное легирование и 4,69 мол. % – гомогенное легирование) в противоположных направлениях

полярной оси. Из рис. 7.30 видно, что коноскопические картины не отличаются между собой значительно, поэтому можно сделать вывод о том, что различие в упорядочении структурных единиц исследованных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ в положительном и отрицательном направлении полярной оси не значительно. При $P = 90$ мВт коноскопические картины в противоположных направлениях полярной оси также отличаются незначительно между собой, поэтому на рис. 7.31 приведены коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (параллелепипеды, $Z = 10$ мм, после отжига в закороченном состоянии): (4,46, 4,52, 4,61 мол. % – твердофазное легирование и 4,69 мол. % – гомогенное легирование) в одном из направлений полярной оси.

Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование, после отжига в закороченном состоянии) ($P = 1$ мВт), как в положительном, так и в отрицательном направлении полярной оси имеют вид, характерный для одноосного кристалла, рис. 7.30 (1), (2): в центре – целостный черный «мальтийский крест», углы между его ветвями составляют 90° , кольца-изохромы имеют круговую симметрию. Однако имеются незначительные аномалии. А именно: в верхней полуплоскости коноскопической картины на рис. 7.30 (1), наблюдается незначительная деформация правой ветви «мальтийского креста» (изогиры) в области от третьей до седьмой изохромы. Кроме того, на нижней левой ветви «мальтийского креста» зафиксировано просветление в области второй изохромы. На коноскопической картине, представленной на рис. 7.30 (2), полученной при повороте кристалла на 180° , аномалии более значительные: на верхней левой ветви «мальтийского креста» имеется дополнительная система интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины в области от второй по пятую изохром. На нижней левой ветви «мальтийского креста» наблюдается некоторое размытие изображения в области первой-четвертой изохром. Нижняя правая ветвь «мальтийского креста» также незначительно деформирована, рис. 7.30 (2). При сканировании по плоскости входной грани кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование), после отжига, не было получено разных коноскопических картин (характерных для одноосного кристалла, а также с признаками аномальной оптической двуосности), как это наблюдалось для аналогичного кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование), до отжига. На основании этого можно сделать вывод о большей оптической однородности по объему кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование) после отжига в закороченном состоянии.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт значительных искажений коноскопических картин образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование, после отжига в закороченном состоянии) не обнаружено, рис. 7.31 (1). В правой полуплоскости коноскопической картины несколько снижен контраст изображения. Нижняя правая ветвь «мальтийского креста» незначительно деформирована. В целом вид коноскопической картины отвечает одноосному кристаллу хорошего оптического качества.

Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование, после отжига в закороченном состоянии), полученные в положительном и в отрицательном направлении полярной оси, при $P = 1$ мВт, рис. 7.30 (3), (4), несколько более деформированы, чем коноскопические картины предыдущего кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. % – твердофазное легирование,

после отжига в закороченном состоянии), рис. 7.30 (1), (2). На рис. 7.30 (3) зафиксировано незначительное просветление в области «мальтийского креста», хотя признаков аномальной оптической двуосности, как это наблюдалось для аналогичного кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование, до отжига в закороченном состоянии), рис. 7.28 (3), (4), при этом не обнаружено: углы между ветвями «мальтийского креста» составляют 90° , кольца-изохромы сохраняют круговую симметрию. На всех ветвях «мальтийского креста» имеются незначительные аномалии, особенно заметные на нижней левой ветви в виде размытия и некоторого снижения контраста изображения, а также в области верхней правой ветви «мальтийского креста» в виде присутствия дополнительной системы интерференционных полос, рис. 7.30 (3). В противоположном направлении полярной оси, рис. 7.30 (4), также обнаружены аномалии коноскопической картины в области ветвей «мальтийского креста»: размытие нижней левой ветви и наличие дополнительной системы интерференционных полос на нижней правой ветви «мальтийского креста» на фоне основной коноскопической картины. Сохраняется просветление в области «мальтийского креста», признаков аномальной оптической двуосности нет, рис. 7.30 (4).

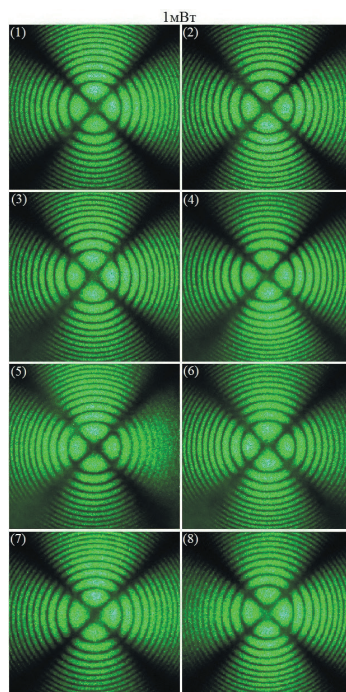


Рисунок 7.30 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: (1), (2)– 4,46 мол. %; (3), (4)– 4,52 мол. %; (5), (6)– 4,61 мол. % и (7), (8)– 4,69 мол. %, (параллелепипеды, $Z = 10$ мм, после отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532$ нм. $P = 1$ мВт. (1), (3), (5), (7)– в положительном направлении полярной оси; (2), (4), (6), (8)– в отрицательном направлении полярной оси

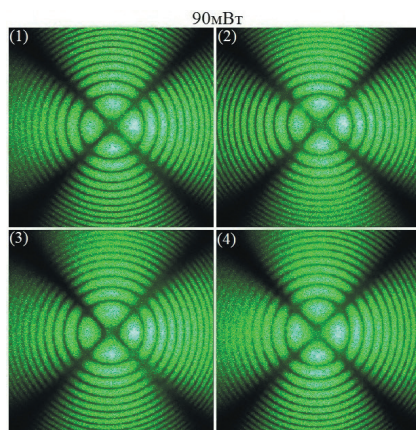


Рисунок 7.31 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: (1)– 4,46 мол. %; (2)– 4,52 мол. %; (3)– 4,61 мол. % и (4)– 4,69 мол. %, (параллелепипеды, $Z = 10$ мм, после отжига в закороченном состоянии). $\lambda = 532$ нм. $P = 90$ мВт

При мощности лазерного излучения 90 мВт, рис. 7.31 (2), сохраняются искажения коноскопических картин образца $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование, после отжига), обнаруженные при мощности лазерного излучения 1 мВт, рис. 7.30 (3), (4). Кроме того, обнаружены признаки появляющейся аномальной оптической двуосности: «мальтийский крест» незначительно вытягивается в горизонтальном направлении, углы между его ветвями незначительно отличаются от 90° . Однако разрыва «мальтийского креста», а также деформации изохром из колец в эллипсы, как это характерно для аномальной оптической двуосности, на коноскопической картине кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование, после отжига) не обнаружено, рис. 7.31 (2). Более значительных искажений коноскопических картин при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, связанных с проявлением фоторефрактивного эффекта, для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование, после отжига) не обнаружено, что хорошо согласуется с данными эксперимента по ФИРС, согласно которым для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. % – твердофазное легирование, после отжига) не происходит раскрытия индикатрисы ФИРС даже при 160 мВт, см. главу 9.

Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование, после отжига), рис. 7.30 (5), (6), $P = 1$ мВт, значительно более дефектные, чем для обоих предыдущих образцов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46 мол. %), рис. 7.30 (1), (2), $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. %), рис. 7.30 (3), (4). Верхняя левая ветвь «мальтийского креста» значительно размыта, рис. 7.30 (5). В области нижней левой ветви «мальтийского креста» также наблюдается размытие, более проявлена спекл-структура изображения. В правой полуплоскости в области обеих ветвей «мальтийского креста» наблюдаются разрывы первой изохромы, а также присутствие дополнительных интерференционных полос на фоне основной

коноскопической картины. В области правого квадранта на периферии коноскопической картины также наблюдается размытие изображения, рис. 7.30 (5). На коноскопической картине на рис. 7.30 (6), полученной в противоположном направлении полярной оси кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование, после отжига) наблюдаются следующие аномалии: в левой полуплоскости в области нижней ветви «мальтийского креста» (изогиры) присутствует размытие изображения, усиливающееся от центра к периферии коноскопической картины, в области верхней изогир от второй по седьмую изохрому зафиксировано наличие дополнительных интерференционных полос. Кроме этого, в области «мальтийского креста» имеются признаки аномальной оптической двуосности. А именно: некоторое просветление в центре «мальтийского креста», сдвиг его фрагментов в горизонтальном направлении от центра, углы между ветвями «мальтийского креста» становятся отличными от 90° , а кольца-изохром приобретают некоторую эллиптичность, рис. 7.30 (6). Признаки аномальной оптической двуосности сохраняются при мощности лазерного излучения 90 мВт, рис. 7.31 (3). Присутствуют также аномалии в правой полуплоскости коноскопической картины, а именно, снижение контраста и четкости изображения, некоторая размытость, на нижней ветви «мальтийского креста» в области от четвертой по девятую изохрому наблюдаются дополнительные интерференционные аномалии, рис. 7.31 (3). Необходимо отметить, что коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) после отжига в закороченном состоянии гораздо более дефектные, чем коноскопические картины аналогичного кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование) до отжига, что говорит о значительно большей оптической неоднородности кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. % – твердофазное легирование), прошедшего стадию отжига в закороченном состоянии. Ранее ухудшение оптического качества кристаллов после отжига в закороченном состоянии также наблюдалось для кристаллов LiNbO_3 (№3, №4, рис. 7.3, 7.4), LiNbO_3 (№5, №6, рис. 7.5, 7.6), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (0,86 вес. %, твердофазное легирование) (№1, №2, рис. 7.11, 7.12), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (0,86 вес. %, гомогенное легирование) (№3, №4, рис. 7.13, 7.14), $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (0,86 вес. %):Fe(0,0036) (гомогенное легирование) (рис. 7.19, 7.20).

Для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование, после отжига) коноскопические картины как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения имеют признаки аномальной оптической двуосности, рис. 7.30 (7), (8), 7.31 (4): расхождение «мальтийского креста», хотя и без его разрыва, в вертикальном направлении, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла. На рис. 7.30 (7) кольца-изохром сохраняют круговую симметрию, на рис. 7.30 (8), при ориентации кристалла в противоположном направлении полярной оси, наблюдается незначительное просветление в центре «мальтийского креста», изохром приобретают некоторую эллиптичность. При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, изохром трансформируются в эллипсы с соотношением малой и

большой полуосей 0,9:1, рис. 7.31 (4). Необходимо отметить, что все коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. % – гомогенное легирование, после отжига), рис. 7.31 (7), (8), 7.31 (4), имеют более размытый вид и содержат большее количество дефектов, чем коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46, 4,52, 4,61 мол. % – твердофазное легирование, после отжига), рис. 7.30 (1)-(6), 7.31 (1)-(3), что позволяет сделать вывод о том, что при использовании гомогенного легирования кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46-4,69 мол.%) были выращены худшего оптического качества, чем при использовании твердофазного легирования. Такие же результаты были получены для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46-4,69 мол. %), не подвергнутых отжигу в закороченном состоянии, рис. 7.28, 7.29. Ранее этот вывод был подтвержден результатами исследования кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№1, 0,86 вес.%, твердофазное легирование), рис. 7.11, и $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (№3, 0,86 вес. %, гомогенное легирование), рис. 7.13.

Таким образом, результаты исследования оптической однородности кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46-4,69 мол.%), полученных с применением разных способов легирования: гомогенного и твердофазного, до и после отжига в закороченном состоянии, при сканировании по плоскости входной грани кристаллов, при разной мощности лазерного излучения: 1 и 90 мВт, в противоположных направлениях полярной оси, показали, что увеличение мощности лазерного излучения не приводит к значительным искажениям коноскопических картин, как это наблюдалось для кристаллов с фоторефрактивным откликом, что хорошо согласуется с результатами исследования ФИРС, см. главу 9. Поэтому аномалии коноскопических картин (деформации, разрывы колец-изохром, а также наличия дополнительных интерференционных полос) обусловлены наличием в кристаллах пространственных структурных дефектов, искажениями оптической индикатрисы, вызванные механическими напряжениями или композиционной неоднородностью кристалла. Коноскопические картины, полученные в противоположных направлениях полярной оси, незначительно отличаются между собой, поэтому был сделан вывод о том, что различие в упорядочении структурных единиц исследованных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ в положительном и отрицательном направлении полярной оси незначительно. После отжига в закороченном состоянии кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46-4,69 мол. %) коноскопические картины, как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения, указывают на большую оптическую однородность, по сравнению с кристаллами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46-4,69 мол. %) до отжига, за исключением кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,61 мол. %). Применение гомогенного легирования при выращивании кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46-4,69 мол. %), согласно результатам лазерной коноскопии, привело к ухудшению оптического качества кристаллов по сравнению с кристаллами, выращенными при использовании твердофазного легирования.

Наибольшее уменьшение фоторефракции (на два порядка) в монокристаллах LiNbO_3 конгруэнтного состава ($R = \text{Li}/\text{Nb} = 0,946$) достигается при высоких концентрациях легирующих «нефоторефрактивных» катионов

(Zn^{2+} , Mg^{2+} , Gd^{3+} и др. [21, 89, 266, 271-273]), когда они практически полностью вытесняют антиструктурные дефекты Nb_{Li} (избыточные катионы Nb^{5+} , находящиеся в положении катионов Li^+), являющиеся наиболее глубокими ловушками электронов и в значительной степени ответственными за эффект фоторефракции [21, 273]. В частности, катионы Zn^{2+} полностью вытесняют антиструктурные дефекты Nb_{Li} при концентрациях (порогах) выше 7,5 мол. %, а катионы Mg^{2+} - при концентрациях выше 5,5 мол. % [21, 89, 271-273]. При концентрациях Zn^{2+} и Mg^{2+} выше пороговых значений эффект фоторефракции в кристалле практически не изменяется. Однако легирование, особенно при высоких концентрациях, близких к пороговым значениям, наряду с уменьшением фоторефракции, может привести к деформации кислородных октаэдров O_6 , к высокой структурной и оптической неоднородности монокристаллов LiNbO_3 , к появлению в них микрообластей, кластеров и других пространственных дефектов, существенно ухудшающих качество оптических материалов. В этой связи важной задачей при выращивании монокристалла с заданными характеристиками является подбор оптимальных концентраций легирующих элементов. В связи с чем важны исследования связи тонких особенностей структуры, структурной и оптической однородности монокристаллов LiNbO_3 и эффекта фоторефракции в них в зависимости от концентрации легирующих катионов.

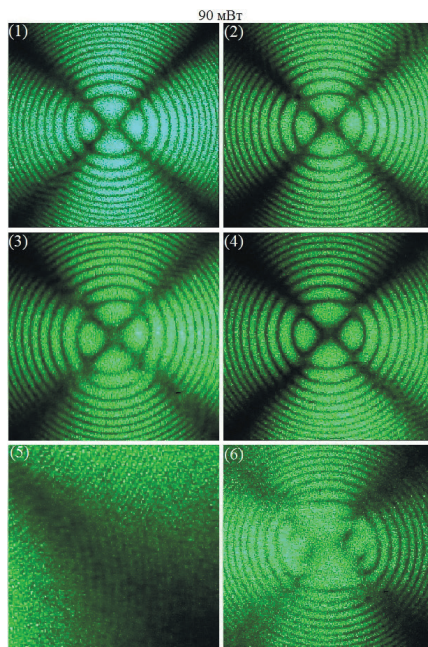


Рисунок 7.32 – Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: (1)– 4 мол. %; (2)– 5 мол. %; (3)– 6,5 мол. %, (4), (5)– 7 мол. % ((5) – правая нижняя ветвь «мальтийского креста» с наблюдающейся системой дополнительных интерференционных полос в увеличенном масштабе), (6)– 7,5 мол. % (части були, $Z = 40$ мм). $\lambda = 532$ нм. $P = 90$ мВт

На рис. 7.32 представлены коноскопические картины серии кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ при высоком содержании Zn (4–7,5 мол. %), с большим шагом по концентрации легирующей примеси. Фоторефрактивный отклик при таких концентрациях Zn в исследованных кристаллах отсутствует, индикатриса ФИРС с проявлением спекл-структуры не раскрывается. Поэтому в коноскопических картинах, полученных при мощности лазерного излучения 90 мВт, аномалии будут обусловлены структурной неоднородностью кристаллов.

Из анализа рис. 7.32 следует, что все коноскопические картины содержат достаточно большое количество дефектов: на всех присутствуют признаки аномальной оптической двуосности, а также аномалии в виде дополнительных интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины. Это может быть обусловлено не только структурной неоднородностью кристалла, вследствие высокой концентрации легирующей примеси, но и значительной толщиной исследуемых образцов (40 мм).

В целом дефектность коноскопических картин на рис. 7.32 возрастает с увеличением содержания Zn в кристаллах от 4 до 7,5 мол. %, для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (7,5 мол. %) коноскопическая картина имеет довольно размытый вид, все ее фрагменты значительно деформированы, рис. 7.32 (6). Концентрация Zn в кристаллах ниобата лития 7,5 мол. % является «пороговой», при такой концентрации антиструктурные дефекты Nb_{Li} , отвечающие за эффект фоторефракции, в структуре кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ практически полностью отсутствуют [21, 89, 271–273]. Однако при этом $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (7,5 мол. %) отличается высокой структурной и оптической неоднородностью, согласно данным лазерной коноскопии, рис. 7.32 (6), по сравнению с кристаллами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4–7 мол. %), рис. 7.32 (1)–(5). Необходимо отметить, что коноскопическая картина кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (7 мол. %), рис. 7.32 (4), (5) гораздо менее дефектная, чем коноскопические картины остальных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4, 5, 6,5, 7,5 мол. %), рис. 7.32 (1)–(3), (6). Признаки аномальной оптической двуосности на коноскопической картине $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (7 мол. %), рис. 7.32 (4), минимальны по сравнению с другими кристаллами. Она имеет более четкий и контрастный вид, рис. 7.32 (4), чем коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (6,5, 7,5 мол. %), рис. 7.32 (3), (6). Не наблюдается такого размытия, рис. 7.32 (4), как на коноскопических картинах кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (6,5, 7,5 мол. %), рис. 7.32 (3), (6). Можно сделать вывод о том, что оптическая неоднородность исследованных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4–7,5 мол. %) неоднозначно зависит от концентрации легирующей примеси. В целом, оптическая неоднородность усиливается при увеличении концентрации Zn от 4 до 7,5 мол. %, но при концентрации Zn 7,0 мол. %, согласно данным лазерной коноскопии, получен кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ более хорошего оптического качества.

7.3.6 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$

В этом разделе исследованы кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}$ (0,12 вес. %) в зависимости от толщины образцов: $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 5$ мм), $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 10$ мм) и $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 22$ мм). Для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,12 вес. %) характерен фоторефрактивный отклик и наблюдается раскрытие индикатрисы ФИРС с

появлением спекл-структуры (см. главу 9). При этом картина ФИРС раскрывается в течение ≈ 60 с и из округлой формы (первые секунды возбуждения) со временем трансформируется сначала в овальную («кометообразную») форму, а затем приобретает вид асимметричной «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла. Необходимо отметить, что для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}(0,12 \text{ вес. } \%)$, также как и для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ (0,015 вес. %) наблюдается явно выраженное деление центрального пятна на две половины, что является следствием проявления двулучепреломления в картинах ФИРС, см. главу 9.

При использовании излучения He-Ne лазера ($\lambda_0 = 632,8 \text{ нм}$, $P = 1 \text{ мВт}$) коноскопические картины монокристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 5 \text{ мм}$), имеют круговую симметрию, при которой «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы представляют собой концентрические окружности с центром в точке выхода оптической оси. Именно такой вид коноскопических картин свидетельствует об оптической однородности образцов и хорошем оптическом качестве (рис. 7.33 (1)). Зафиксировано незначительное снижение контраста изображения в области верхней левой ветви «мальтийского креста», рис. 7.33 (1). Увеличение мощности лазерного излучения, рис. 7.33 (2), дает незначительное размытие в области «мальтийского креста» и некоторое снижение контраста изображения в области нижних изогир. Значительных искажений коноскопической картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}(Z = 5 \text{ мм})$, как это наблюдалось, например, для кристалла ниобата лития стехиометрического состава при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, рис. 7.7, не наблюдалось, что вероятно связано с большей степенью оптической однородности структуры и меньшим вкладом фотоиндуцированного рассеяния света кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}(Z = 5 \text{ мм})$ по сравнению с кристаллом ниобата лития стехиометрического состава.

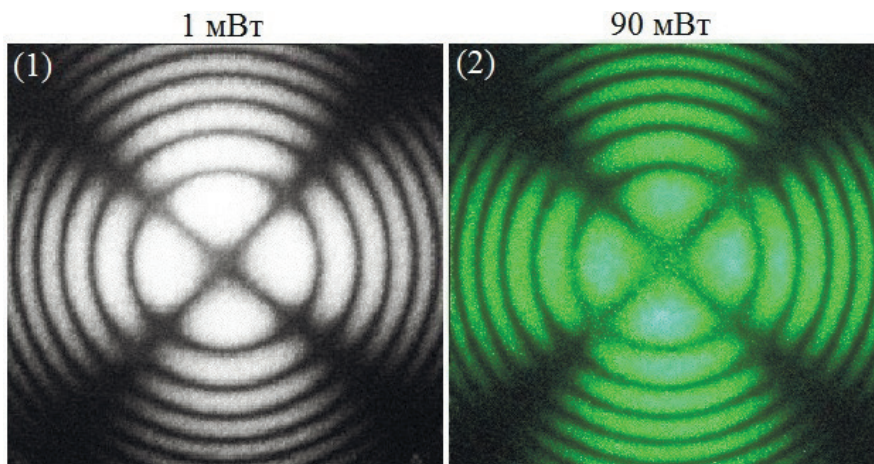


Рисунок 7.33 – Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}(0,12 \text{ вес. } \%)$ ($Z = 5 \text{ мм}$). (1) – $\lambda = 632,8 \text{ нм}$, $P = 1 \text{ мВт}$; (2) – $\lambda = 532 \text{ нм}$, $P = 90 \text{ мВт}$

На рис. 7.34, 7.35 представлены коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 10$ мм) и $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 22$ мм), полученные при сканировании по плоскости входной грани. Необходимо отметить, что коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 10$ мм) и $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 22$ мм) гораздо более дефектные, чем коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 5$ мм), что очевидно связано с увеличением толщины образцов.

При мощности лазерного излучения 1 мВт для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 10$ мм) при лазерном сканировании по плоскости входной грани получены коноскопические картины, соответствующие как одноосному, так и двуосному кристаллу, что говорит об его оптической неоднородности, рис. 7.34 (1), (2). Коноскопическая картина на рис. 7.34 (1) соответствует одноосному кристаллу: черный контрастный «мальтийский крест» сохраняет целостность в поле зрения. Однако изохромы представляют собой эллипсы с отношением малой и большой осей $\sim 0,9:1$, что может указывать на наличие некоторого угла между оптической осью и нормалью к входной грани кристалла. Коноскопическая картина на рис. 7.34 (2) имеет признаки явно выраженной аномальной оптической двуосности: значительная деформация в центре черного «мальтийского креста» в виде вертикального смещения от центра фрагментов креста, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла. Зарегистрировано просветление в центральной части «мальтийского креста», углы между его ветвями отличны от 90° . Изохромы сохраняют целостность и правильную геометрическую форму, вытянуты в направлении смещения фрагментов креста и приобретают форму эллипсов, рис. 7.34 (2). В области нижней левой изогирь наблюдаются некоторые аномалии.

При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт при сканировании по плоскости входной грани также получены коноскопические картины, соответствующие одноосным (рис. 7.34 (3)) и двуосным (рис. 7.34 (4)) кристаллам. Если на коноскопической картине на рис. 7.34 (3) не зафиксировано видимых аномалий, кроме незначительного снижения контраста изображения в области верхней правой изогирь, то на коноскопической картине на рис. 7.34 (3) зафиксированы не только признаки аномальной оптической двуосности, но и значительные интерференционные аномалии в левой полуплоскости коноскопической картины. А именно, присутствие дополнительных систем интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины: в области нижней левой изогирь – от второй по десятую изохром, в области верхней левой изогирь – от шестой по двадцатую изохром. Наличие дополнительной интерференционной системы полос указывает на оптическую неоднородность исследуемого образца, появляющуюся при увеличении мощности лазерного излучения, используемого в эксперименте. Возможно дополнительные искажения коноскопических картин, появляющихся при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, обусловлены наличием фоторефрактивного отклика для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}(0,12 \text{ вес. } \%), \text{ см. главу 9.}$

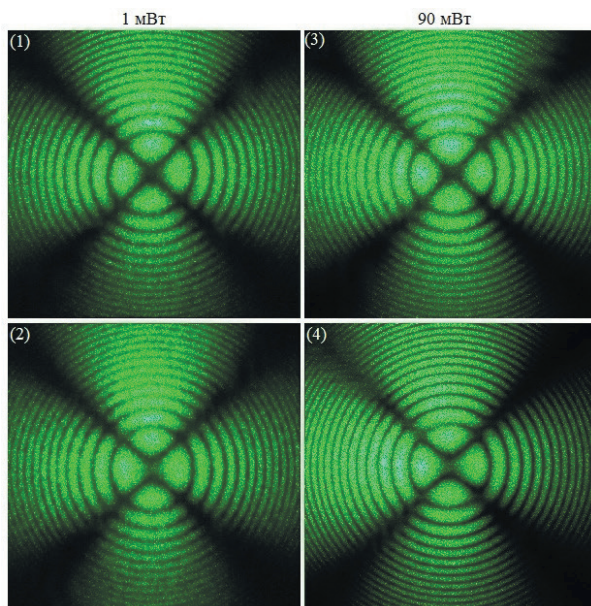


Рисунок 7.34 – Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}$ (0,12 вес. %) ($Z = 10$ мм). $\lambda = 532$ нм, (1), (2) – $P = 1$ мВт; (3), (4) – $P = 90$ мВт

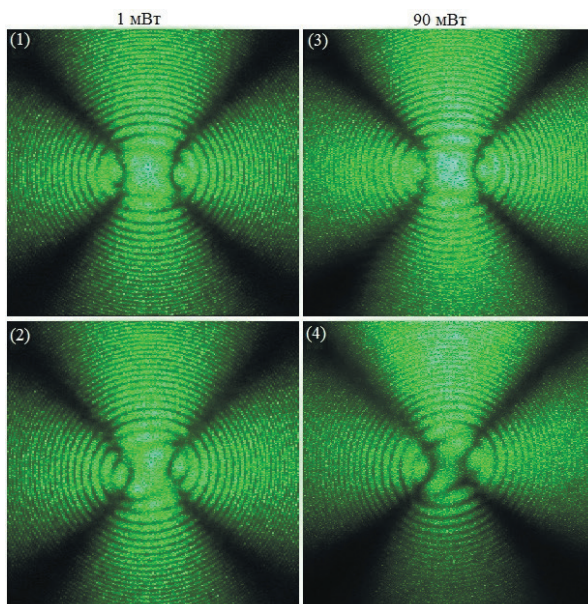


Рисунок 7.35 – Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}$ (0,12 вес. %) ($Z = 22$ мм). $\lambda = 532$ нм, (1), (2) – $P = 1$ мВт; (3), (4) – $P = 90$ мВт

Для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 22$ мм) как при малой (1 мВт), рис. 7.35 (1), (2), так и при большой (90 мВт), рис. 7.35 (3), (4), мощности лазерного излучения коноскопические картины имеют значительные аномалии, что связано с увеличением толщины образца, по сравнению с предыдущим кристаллом $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 10$ мм), рис. 7.34. На всех коноскопических картинах присутствуют явно выраженные признаки аномальной оптической двуосности: значительная деформация в центре «мальтийского креста» в виде смещения от центра фрагментов креста, просветление в центральной части «мальтийского креста». Изохромы сохраняют целостность, вытянуты в направлении смещения фрагментов креста и приобретают форму эллипсов, рис. 7.35. Присутствует размытость изображения, что указывает на оптическую неоднородность исследуемого образца, наличие структурных и ростовых искажений, микро- и наноструктур, присутствующих в кристалле, вследствие неравномерного вхождения легирующей примеси в структуру. При увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт (рис. 7.35 (3), (4)) некоторая размытость изображения сохраняется, кроме того в коноскопической картине кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 22$ мм), также как и для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 10$ мм), рис. 7.34 (3), (4), проявляются видимые аномалии в виде дополнительных систем интерференционных полос на фоне основной коноскопической картины. Особенно ярко эти аномалии проявляются на коноскопической картине на рис. 7.35 (3), в области нижней левой изогирь практически по всей ее длине. Наличие подобных аномалий в коноскопических картинах указывает на значительную оптическую неоднородность кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($Z = 22$ мм).

7.3.7 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$

Монокристаллы ниобата лития, легированные Cu, могут быть перспективным материалом для голографической записи информации [39, 266]. Принято считать, что Cu (заряд +1 и +2) является «фоторефрактивным» катионом. Кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$ проявляет фоторефрактивные свойства не только вследствие наличия собственных дефектов с локализованными на них электронами, как это наблюдается для монокристалла $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ [39, 269, 280], но и вследствие перезарядки под действием света катионов меди. Важно отметить то, что катионы Cu, даже в малых количествах, очень неравномерно распределяются в структуре кристалла ниобата лития и в кристалле возможно образование микро- и наноструктур и фрактальных образований [37]. Край оптического пропускания кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$, также как и кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$, $\text{LiNbO}_3:\text{B}(0,12 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(0,52 \text{ и } 0,62 \text{ вес. \%})$ лежит в интервале длин волн 320–400 нм [281], однако для края пропускания кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$ характерно наиболее аномальное поведение, что свидетельствует о его высокой оптической неоднородности, очевидно вследствие неравномерного распределения дефектов, а также катионов меди по объему кристалла. Неоднородность кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$, уверенно проявляется в ФИРС, см главу 9.

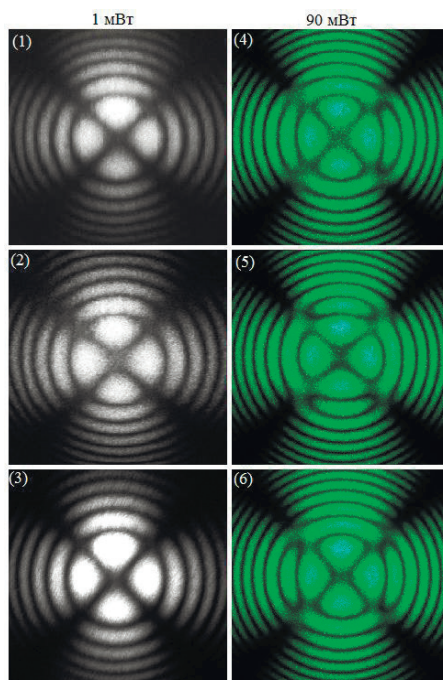


Рисунок 7.36 – Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}^{2+}(0,015 \text{ вес. } \%)$. (1)-(3) – $\lambda = 632,8 \text{ нм}$, $P < 1 \text{ мВт}$; (3)-(6) – $\lambda = 532 \text{ нм}$, $P = 90 \text{ мВт}$

В наших экспериментах ($\lambda = 632,8 \text{ нм}$, $P < 1 \text{ мВт}$) наблюдались коноскопические картины $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. } \%)$ стандартного вида, при котором черный «мальтийский крест» сохраняет целостность в центре поля зрения, а изохромы имеют вид концентрических окружностей, что свидетельствует об оптической однородности образцов, рис. 7.36 (1). Круговая симметрия коноскопических картин показала, что оптическая ось в сканируемых точках входной грани направлена вдоль направления распространения лазерного луча. При этом общий вид коноскопических картин совпал для образцов, взятых для исследования из двух разных пластин. Кроме стандартных коноскопических картин при сканировании по плоскости входной грани кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. } \%)$ наблюдались коноскопические картины с незначительными изменениями «мальтийского креста» в центре поля зрения, рис. 7.36 (2), (3). Так, в центре коноскопической картины, рис. 7.36 (2), зарегистрировано небольшое расхождение черного «мальтийского креста» в направлении горизонтальной изогирь, а на рис. 7.36 (3) – такое же расхождение заметно в направлении вертикальной изогирь. Изохромы при этом сохраняют форму окружностей и свою целостность. Такие изменения свидетельствуют о возникновении слабой оптической двуосности, что связано с незначительной деформацией оптической индикатрисы образца.

Увеличение мощности лазерного излучения, рис. 7.36 (4)-(6), приводит к увеличению контраста изображения, при этом наблюдается значительное

искажение коноскопических картин. Так же как и при мощности лазерного излучения < 1 мВт, при 90 мВт при сканировании кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. } \%)$ по плоскости входной грани наблюдалось три вида коноскопических картин: коноскопическая картина с целостным «мальтийским крестом», характеризующая кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. } \%)$, как одноосный, рис. 7.36 (4), а также коноскопические картины с расхождением «мальтийского креста» в направлении горизонтальной изогир, рис. 7.36 (5), и в направлении вертикальной изогир, рис. 7.36 (6). Необходимо отметить, что признаки аномальной оптической двуосности при увеличении мощности лазерного излучения, использованного в эксперименте, до 90 мВт, усиливаются. Кроме того, на всех трех коноскопических картинах, рис. 7.36 (4)–(6), наблюдается деформация ветвей «мальтийского креста» в области первых трех колец-изохром, считая от центра. Наблюдается разрывы изохром, попарное смыкание первой и второй, рис. 7.37 (4)–(6), второй и третьей изохром, рис. 7.36 (5), (6), размытие в области первых трех изохром, рис. 7.37 (4)–(6).

Наличие трех видов коноскопических картин, полученных при сканировании по плоскости входной грани, указывает на значительную оптическую неоднородность кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. } \%)$, очевидно вследствие наличия структурных искажений, возникших при выращивании кристалла. Этот результат подтверждается данными ФИРС, см главу 9, КРС [282] и края оптического пропускания [281]. Искажения коноскопических картин, появляющиеся при увеличении мощности лазерного излучения, связаны очевидно с наличием фоторефрактивного отклика для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. } \%)$, см. главу 9. В кристаллах, отличающихся сравнительно низким эффектом фоторефракции, в отличие от кристаллов с высоким эффектом фоторефракции ($\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$) многие оптические искажения, связанные с прохождением лазерного излучения через кристалл, не «замазаны» сильной деструкцией лазерного луча, обусловленной эффектом фоторефракции, и уверенно наблюдаемы. Например, появление аномальной оптической двуосности при увеличении мощности лазерного излучения, зафиксированное нами для кристаллов с фоторефрактивным откликом, вероятно связано с существованием локальных областей в кристалле, обладающих двулучепреломлением.

7.3.8 Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Y}$, $\text{LiNbO}_3:\text{Y:Mg}$

В данном разделе исследованы кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,46 \text{ вес. } \%)$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,24 \text{ вес. } \%):\text{Mg}(0,63)$. Раскрытие их индикатрисы ФИРС в направлении полярной оси происходит очень быстро, практически в течение первой секунды облучения кристалла лазерным излучением, см. главу 9, что потенциально ставит эти кристаллы в ряд перспективных материалов для голографии, электрооптических модуляторов и затворов.

При сканировании входной грани образца $\text{LiNbO}_3:\text{Y}^{3+}(0,46 \text{ вес. } \%)$ лазерным лучом мощностью < 1 мВт получены коноскопические картины, полностью соответствующие одноосному кристаллу, рис. 7.37 (1). Кольца-и-

зохромы, имеющие центр в точке выхода оптической оси, расположены на фоне черного «мальтийского креста», сформированного двумя изогриями, составляющими прямой угол. Контраст изображения несколько снижен в области верхней левой изогри «мальтийского креста», рис. 7.37 (1). С увеличением мощности лазерного излучения до 90 мВт в центре поля зрения зарегистрированы искажения, характерные для возникающей аномальной двуосности, рис. 7.37 (2). Нарушена круговая симметрия изображения: «мальтийский крест» деформирован в вертикальном направлении без просветления в центре, а углы между его ветвями отличаются от прямых. При этом изохромы практически сохраняют форму концентрических окружностей. В верхней и левой полуплоскости интенсивность деталей коноскопической картины отличается от минимальной, отмечено отсутствие четких контуров. В нижней полуплоскости в области правой ветви «мальтийского креста» наблюдаются разрыв, смещение и попарное смыкание изохром на границе смежных квадрантов, рис. 7.37 (2). Эти искажения наблюдаются в интервале от четвертой до седьмой изохром, считая от центра коноскопической картины: в области минимальной интенсивности правой ветви «мальтийского креста» четвертая, пятая, шестая и седьмая изохромы попарно замыкаются соответственно на пятую, шестую, восьмую и девятую изохромы в смежном вертикальном квадранте. При этом их интенсивность отличается от минимальной, рис. 7.37 (2).

Для образца монокристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}^{3+}(0,24 \text{ вес. \%}):\text{Mg}^{2+}(0,63)$ ($P < 1$ мВт), характерна небольшая аномальная двуосность, при которой на коноскопической картине наблюдаются некоторое смещение в периферийном направлении фрагментов черного «мальтийского креста» и просветление в центре, рис. 7.37 (3). Изохромы принимают форму эллипсов, с большой осью, ориентированной в вертикальном направлении коноскопической картины, и имеют правильную геометрическую форму, рис. 7.37 (3). Наблюдение коноскопической картины этого образца при использовании лазерного излучения мощностью 90 мВт, рис. 7.37 (4), показывает значительные искажения, по сравнению с коноскопической картиной, полученной при малой мощности лазерного излучения, рис. 7.37 (3). Отмечено снижение контраста и размытие коноскопической картины в целом, рис. 7.37 (4). При увеличении мощности лазерного излучения усиливаются признаки, типичные для двуосных кристаллов, рис. 7.37 (4), а именно – трансформация изогир из колец в эллипсы и деформация «мальтийского креста» с просветлением и разрывом на две части с их сдвигом в азимутальном направлении от центра, что соответствует направлению деформации оптической индикатрисы кристалла. Изохромы имеют замкнутый контур, однако их кривизна значительно изменяется при переходе через ветви «мальтийского креста» с непрямыми углами. Такие сильные искажения в коноскопических картинах при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт ранее наблюдались нами для монокристаллов ниобата лития (например: для $\text{LiNbO}_3:\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}(0,12 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}^{2+}(0,015)$, $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}(0,52)$, $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}(0,62)$), для которых характерно быстрое раскрытие индикатрисы фотоиндуцированного рассеяния света.

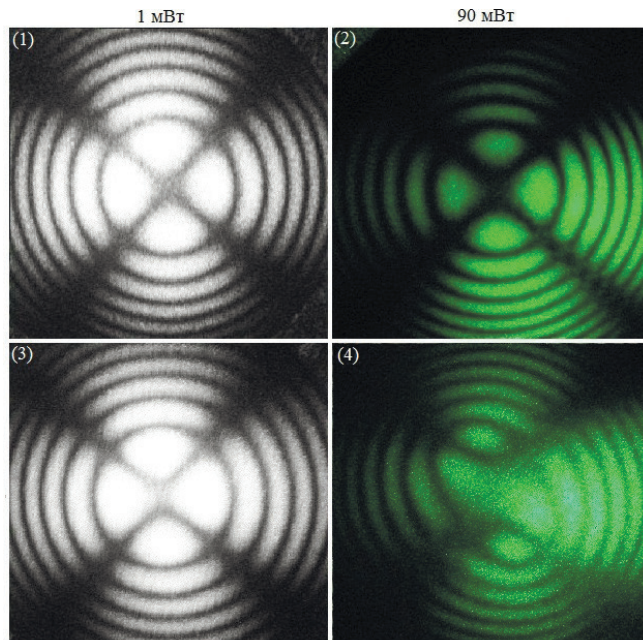


Рисунок 7.37 – Коноскопические картины кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,46 \text{ вес. \%})$ – (1), (2) и $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,24 \text{ вес. \%})\text{:Mg}(0,63)$ – (3), (4). (1), (3) – $\lambda = 632,8 \text{ нм}$, $P < 1 \text{ мВт}$; (2), (4) – $\lambda = 532 \text{ нм}$, $P = 90 \text{ мВт}$

Таким образом методом лазерной коноскопии исследованы оптическая однородность и тонкие особенности структурных искажений серии монокристаллов ниобата лития (LiNbO_3) при использовании лазерного излучения малой мощности ($P \sim 1 \text{ мВт}$) с тем чтобы максимально уменьшить возможное влияние фоторефрактивного эффекта, а также мощности 90 мВт, применение которой позволило обнаружить и исследовать искажения структуры, возникающих под действием света в фоторефрактивных кристаллах. Было обнаружено, что для кристаллов, в которых индикатриса ФИРС не раскрывается даже при мощности облучения в 160 мВт, с увеличением мощности лазерного излучения, используемого в эксперименте, до $\sim 90 \text{ мВт}$ не происходит появления дополнительных искажений в коноскопических картинах. Контраст и резкость коноскопических картин для этих кристаллов усиливаются при увеличении мощности лазерного излучения. Для кристаллов: $\text{LiNbO}_3\text{:B}^{3+}(0,12 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}^{2+}(0,015)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}^{2+}(0,52)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}^{2+}(0,62)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}^{3+}(0,46)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}^{3+}(0,24)\text{:Mg}^{2+}(0,63)$ были зафиксированы искажения коноскопических картин, появляющиеся дополнительно при увеличении мощности лазерного излучения от ~ 1 до $\sim 90 \text{ мВт}$. Эти искажения (появление аномальной оптической двусности, «размытие» коноскопических картин в целом и другие), в наибольшей степени проявляющиеся для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Y}^{3+}(0,46 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}^{3+}(0,24 \text{ вес. \%})\text{:Mg}^{2+}(0,63)$ и кристалла ниобата лития стехиометриче-

ского состава, в которых индикатриса ФИРС раскрывается очень быстро, в первые секунды с момента облучения кристалла лазерным излучением, очевидно, связаны с проявлением структурных перестроек и оптических процессов, происходящих в кристаллах под действием лазерного излучения.

Было показано, что в образцах с одинаковыми геометрическими параметрами масштаб коноскопической картины, распределение интенсивности, форма и размеры «мальтийского креста» и изохром полностью сохраняются. Изменение геометрических размеров кристаллов приводит к изменению масштаба и деталей коноскопической картины.

Было показано, что лазерная коноскопия позволяет выявить даже незначительные изменения оптических характеристик кристалла при его легировании. Значительный размер изображения (0,5 м) позволяет выполнить детальный анализ тонких особенностей структурных искажений в кристаллах, как в центре поля зрения, так и на периферийной области коноскопических картин. Коноскопические же исследования образцов в поляризационном микроскопе, в котором в качестве источника освещения используется лампа накаливания, дают возможность наблюдать лишь картину кристалла в целом, без детализации тонких особенностей структуры в виде локальных искажений. Обнаружено, что дефектная структура кристаллов LiNbO_3 , связанная с неравномерным вхождением примеси, приводит к локальному изменению упругих характеристик кристалла и появлению механических напряжений, вызывающих искажение коноскопических картин. Это могут быть локальные двулучепреломляющие включения, которые регистрируются в виде дополнительных картин интерференции на фоне основной коноскопической картины, как в центре поля зрения, так и в ее периферийной области, либо аномальная оптическая двусосность, проявляющаяся в виде разрыва и просветления «мальтийского креста» в центре коноскопической картины кристалла. Анализ пространственного распределения оптических аномалий, полученного коноскопическим методом, позволяют вносить корректировки в технологию выращивания кристаллов с целью повышения их качества.

Результаты исследования кристаллов LiNbO_3 , полученные методом лазерной коноскопии, хорошо согласуются с данными комбинационного рассеяния света, фотоиндуцированного (фоторефрактивного) рассеяния света, исследований спектров оптического пропускания.

Таким образом, коноскопический контроль оптических свойств монокристаллов LiNbO_3 является наглядным и доступным методом исследования, что обусловлено связью вида, структуры и свойств коноскопической картины со строением, оптическими свойствами, ориентацией кристалла, а также наличием в нем различного рода дефектов. Развитие лазерной коноскопии актуально для обнаружения и исследования тонких особенностей структурных ростовых искажений, микро- и наноструктур, неизбежно присутствующих в легированных монокристаллических материалах, искажений, возникающих под действием света в фоторефрактивных кристаллах. Необходимость дальнейшего развития коноскопического метода контроля обусловлена современными высокими требованиями к качеству монокристаллов, используемых в лазерной физике, в системах записи и обработки оптической информации, в оптической связи.

Глава 8 ФОТОРЕФРАКТИВНЫЙ ЭФФЕКТ И ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА ЛИТИЯ

8.1 Эффект фоторефракции в кристаллах ниобата лития

Кристалл LiNbO_3 , помимо того что является сегнетоэлектриком и пьезоэлектриком, обладает рядом уникальных свойств, среди которых стоят особняком фотоиндуцированные (наведенные лазерным излучением) эффекты. Среди них: лазерный пробой («laser-induced damage»), эффект темнового трека («dark trace» или «gray trace effect») и эффект фоторефракции («optical damage») [21]. Они существенно ограничивают возможности использования монокристаллов LiNbO_3 в оптике для изготовления активных лазерных сред, преобразователей частоты лазерного излучения, электрооптических модуляторов и др. В отличие от первых двух эффектов, эффект фоторефракции возникает при низких интенсивностях ($<10 \text{ мВт/см}^2$) лазерного излучения и не обнаруживает пороговой зависимости [21]. Эффект фоторефракции (ЭФ) заключается в обратимом локальном изменении показателя преломления кристалла при его освещении и является свойством, присущим сегнетоэлектрическим кристаллам [5, 21, 271]. Изменение показателей преломления кристалла в освещенной области связано с возникновением поля пространственного заряда, т. е. обусловлено электрооптическим эффектом [283]. Поэтому наиболее распространенными фоторефрактивными материалами являются кислородно-октаэдрические сегнетоэлектрики, обладающие высокими значениями электрооптических коэффициентов, где величины фотоиндуцированного изменения показателей преломления достигают $\Delta n_i \sim 10^{-4}$ – 10^{-3} . Другие возможные (неполевые) механизмы фоторефракции, например, фотодеформация [284], если и реализуются, то оказываются эффектами второго порядка. Эффект фоторефракции наблюдается во многих сегнетоэлектрических кристаллах, в частности, в кристаллах танталата лития (LiTaO_3).

В освещенной области сегнетоэлектрического кристалла в результате пространственного переноса электронов под действием света и их последующего захвата на глубокие энергетические уровни образуется поле неравновесного пространственного заряда, изменяющее показатель преломления [21, 271, 285, 286]. При этом, главным образом, изменяется (понижается) показатель преломления необыкновенного луча n_e .

Из-за полевой природы фоторефрактивного эффекта наведенные изменения показателя преломления обратимы: они исчезают, если облученный кристалл LiNbO_3 выдержать в печи при температуре порядка 150 – 170°C в течение $1,5$ – 2 часов [287] или однородно осветить ртутной лампой [5]. Вследствие повышения проводимости всего образца при нагреве или равномерном освещении исчезает оптически наведенная неоднородность. Однако, безусловно, такие воздействия приводят к накоплению износа кристалла

[21]. С малой темновой проводимостью связано большое различие времен записи и хранения изменений Δn . Время диэлектрической релаксации может составлять месяцы, а то и годы. Учеными Новосибирского и Боннского университетов предложена и реализована технология устранения фоторефрактивного эффекта – метод оптической чистки. Кристалл нагревается до температуры 170—190°C, после чего освещается достаточно интенсивным световым пучком. В основе метода лежит тот же фотогальванический эффект, который прежде выступал в качестве вредного, создавая оптическое повреждение. Теперь он используется как полезный: в засвеченной области фотоактивные электроны движутся вдоль оси кристалла, скапливаясь на периферии. Если бы перемещались одни электроны, то в месте их скопления возникал бы электрический заряд, препятствующий дальнейшему их накоплению. Во избежание этого, необходимо, чтобы вслед за электронами двигались положительно заряженные частицы, которые есть в кристалле – это протоны и ионы лития. Их количество на несколько порядков превышает число фотоактивных электронов, однако не в той степени, чтобы повлиять на свойства кристалла. Нагрев кристалла нужен как раз для того, чтобы ионы приобрели достаточно высокую подвижность и успевали перемещаться вслед за электронами. При этом сам кристалл в каждой точке остается электронейтральным. Таким образом, в описанных условиях засвеченная область со временем полностью освобождается от фотоактивных электронов. При медленном перемещении светового пучка в направлении движения фотоактивных электронов происходит очистка от них всего кристалла, в результате чего источник оптического повреждения устраняется сам по себе. После охлаждения кристалла, перемещенные электроны уже не могут вернуться в очищенную область, так как оказываются привязанными к «замороженным» ионам. В результате чистки наблюдается сильное (более чем в тысячу раз) подавление оптического повреждения. К недостаткам метода следует отнести продолжительность на процесс «оптической чистки» требуется много часов, что предполагает дальнейшие усилия по его оптимизации. Процесс локального уменьшения посредством воздействия света концентрации фотоактивных электронов в тысячи или десятки тысяч раз не имеет аналогов и ведет к сильному изменению свойств материала. Предполагается, что подобный эффект должен наблюдаться и при работе с другими оптическими материалами, сходными по симметрии с ниобатом лития [288].

Изменение Δn может достигать 10^{-3} единиц, время оптической памяти – от нескольких секунд до нескольких месяцев [289]. Возникновение фоторефрактивного эффекта не требует когерентности возбуждающего света: основным условием заметного изменения двулучепреломления является достаточно высокая энергия излучения. Значение Δn также зависит от длительности экспозиции. В [290] показано, что в кристаллах LiNbO_3 при малых экспозициях $\sim 0,01$ с значение Δn пропорционально произведению времени экспозиции на интенсивность излучения, вплоть до весьма больших интенсивностей. Образующееся распределение $\Delta n(r)$ зависит не только от объемных свойств кристалла, но и от внешних условий, в которых он находится. В частности, оно зависит от того, находится ли образец под напря-

жением или он изолирован, от геометрии освещенной области, от проводимости окружающей среды, теплоотвода и т.п. В создании локальных полей могут участвовать переходные токи, связанные с изменением поляризации. Тем не менее, многие существенные особенности фоторефракции можно описать, учитывая лишь приложенное напряжение и продольные токи, связанные с фотовольтаическим эффектом.

В кристалле ниобата лития дисперсия показателей преломления достаточно велика, т. е. значения показателей преломления n_e и n_o изменяются в зависимости от длины волны падающего на него излучения. Принято считать, что в сильно фоторефрактивных кристаллах ниобата лития, легированных катионами с переменной валентностью, эффект фоторефракции максимален при длинах волн менее 500 нм и практически отсутствует при длинах волн более 800 нм. Кроме того, хорошо известно, что кристалл ниобата лития обладает двулучепреломлением, величина которого довольно сильно зависит от температуры. Для кристалла ниобата лития температурные колебания показателей преломления определяются как $dn_e/dT = 5,4 \cdot 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$, $dn_o/dT = 37,9 \cdot 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$. Так, например, для кристалла длиной 10 мм при изменении температуры на $0,1^{\circ}\text{C}$ изменение разности фаз на длине волны 633 нм достигает $0,1\pi$.

В месте прохождения лазерного луча и в некоторой области вблизи лазерного луча, достигающей нескольких миллиметров, кроме заметного изменения показателя преломления (Δn) кристалла, происходит искажение кристаллической структуры, сохраняющееся длительное время после действия лазерного излучения [21, 271, 285, 291]. Тонкие особенности этого искажения, несмотря на ряд серьезных публикаций [21, 271, 278, 285, 286], в зависимости от состава монокристалла LiNbO_3 в литературе исследованы явно недостаточно. Лазерное излучение, проходя через такой неоднородный монокристалл, претерпевает случайную модуляцию, которая проявляется в структуре рассеянного света, делая его также пространственно неоднородным. Лазерное излучение, рассеянное на неоднородностях, интерферирует с накачкой, образуя сложную картину минимумов и максимумов интенсивности фотоиндуцированного рассеяния света (ФИРС) – спекл-картину [278]. То есть в процессе облучения кристалла в пространственной области прохождения лазерного луча в сильно нестационарных условиях в системе развивается неустойчивость, и формируются структуры с явными признаками пространственной самоорганизации.

Эффект фоторефракции оказывает существенное влияние на оптические свойства кристаллов ниобата лития, в ряде случаев ограничивая область его применения, либо, напротив, усиливая необходимые качества. Изначально эффект фоторефракции рассматривался исключительно как негативное явление, ухудшающее оптические характеристики монокристаллов LiNbO_3 и препятствующее его широкому применению в электрооптических элементах и приборах квантовой электроники. Негативным последствием эффекта фоторефракции является деградация (искажение фронта) световой волны и нестациональность или потеря генерации в лазерах с использованием в качестве активного элемента кристалла LiNbO_3 , легированного редкоземельными элементами.

Однако в то же время наличие эффекта фоторефракции делает монокристалл ниобата лития одним из наиболее перспективных материалов для голографической записи информации, где повышенный отклик структуры по отношению к воздействию лазерного излучения является чрезвычайно выгодным фактором [21]. Значительно выросший в последние годы интерес к разработке оптических систем записи, хранения и обработки информации на основе фотосегнетоэлектриков (в том числе, LiNbO_3) связан с перспективами создания полностью оптических и гибридных поточных комплексов обработки данных и других интересных приложений, прежде всего в области телекоммуникационных технологий [292]. При этом монокристаллы ниобата лития имеют существенное преимущество перед другими ввиду наличия низкой темновой проводимости [263]. Многочисленные применения явления фоторефракции достаточно подробно описаны в литературе и относятся к ряду активно развиваемых научно-технических направлений [266, 293].

Таким образом, для решения обеих задач необходимы фундаментальные исследования, направленные на выяснение механизмов фоторефрактивного эффекта в фотосегнетоэлектриках.

Эффект фоторефракции в сегнетоэлектрических кристаллах может быть обусловлен несколькими механизмами. Основными из них являются аномальный фотовольтаический эффект, оптическая перезарядка центров, обуславливающих изменение спонтанной поляризации, экранирование спонтанной поляризации, сопровождающееся формированием полей объемных зарядов, диффузионный механизм [21, 41, 273, 285, 284, 294–296]. Большинство моделей не учитывают состояние дефектности конкретного кристалла и предполагают ответственным за эффект фоторефракции некоторое внутреннее поле E_s , возникающее в освещенной области сегнетоэлектрика и приводящее к изменению двулучепреломления за счет электрооптического эффекта [285, 284, 294, 295]. В сегнетоэлектрическом кристалле всегда существует собственное внутреннее электрическое поле E_i , направленное противоположно вектору спонтанной поляризации кристалла P_s , и дефекты, выступающие в роли «ловушек» электронов. При этом часть «ловушек» до облучения не заполнена электронами [285, 286, 296]. В кристалле ниобата лития, кроме глубоких ловушек, создаваемых «фоторефрактивными» центрами (катионами с переменной валентностью и собственными дефектами с локализованными электронами) в формировании эффекта фоторефракции активную роль играют относительно мелкие ловушки электронов, способствующие рекомбинации фотовозбужденных носителей без их захвата на глубокие уровни [286, 297, 298]. При этом свободные электроны в кристалле могут образовываться за счет распада биполяронов на поляроны при облучении образца лазерным излучением видимого диапазона [297].

Согласно модели Чена [299], при облучении в освещенной области кристалла появляются фотовозбужденные электроны, которые под действием поля E_s дрейфуют в направлении положительного полюса P_s , оставляя за собой ионизированные ловушки, заряженные положительно. Так как за пределами освещенной области фотовозбуждение отсутствует, то на границе этой области электроны захватываются свободными ловушками. Для

глубоких ловушек температура оказывается недостаточной для вторичного возбуждения, и происходит пространственное разделение зарядов, приводящее к образованию локального поля пространственного заряда, которое вследствие линейного электрооптического эффекта приводит к локальному изменению показателя преломления Δn . При этом наведенные изменения показателя преломления в области насыщения прямо пропорциональны плотности мощности падающего излучения.

В модели Амодее [294, 295] внутреннее поле E_s имеет термодиффузионную природу. В этой модели анализируются два механизма, под действием которых происходит движение электронов: дрейф под действием внутреннего поля и диффузия электронов. Под влиянием электрического поля и вследствие термодиффузии возбужденные свободные носители образуют пространственно неоднородный ток. Протекающий через кристалл ток приводит к образованию пространственного заряда. Если внешнее и внутреннее поля значительно больше $E_{кр}$, то диффузионным механизмом можно пренебречь.

В фотовольтаических моделях Гласса и Фридкина [283, 285, 296, 298, 300] возникновение внутреннего поля E_s в освещенном кристалле связано с анизотропией процессов возбуждения и захвата электронов вдоль и против направления спонтанной поляризации P_s . Так, при освещении кристалла ниобата лития было обнаружено, что ток, который Чен в своей модели [299] определил как переходный, протекает стационарно в режиме короткозамкнутых электродов и может генерировать аномально большое фотонапряжение, превышающее ширину запрещенной зоны на 2–4 порядка. Данный эффект получил название аномальный фотовольтаический эффект (АФВЭ) или аномальный фотогальванический эффект (АФГЭ) [285, 296].

Джонстоном был предложен поляризационный механизм фоторефрактивного эффекта, не требующий необходимости образования какого-либо внутреннего поля [301]. Согласно этой модели, при освещении сегнетоэлектрика возникает локальное изменение спонтанной поляризации, приводящее к изменению двулучепреломления. При этом пространственная неоднородность кристаллов, содержащих фотовозбужденные дефекты, обусловлена пространственным изменением макроскопической плотности поляризации. Недостатком модели Джонстона, в частности, является то, что дипольный момент примесей в кристалле ниобата лития, обладающих зарядом одного знака, зависит от выбора начала координат [301].

Модель Леванюка и Осипова [284] основана на предположении о том, что фоторефрактивный эффект в сегнетоэлектриках связан с возникновением макроскопических полей деполяризации в неоднородно освещенных кристаллах в результате возбуждения донорно-акцепторных пар. При этом существенно меняются электронная поляризуемость (α) и Δn за счет перезарядки примесных центров. Величина наведенного изменения Δn пропорциональна концентрации возбужденных доноров. Дипольный момент атома примеси при этом меняется, а следовательно, меняется и спонтанная поляризация P_s . Изменение P_s вызывает появление деполяризующего электрического поля. При этом зависимость Δn от температуры и интенсивности возбуждающего света определяется конкретным механизмом возбуждения.

Эта модель использовалась для объяснения эффекта фоторефракции в кристаллах α -LiIO₃ [302] и в конгруэнтных кристаллах LiNbO₃ и LiTaO₃, легированных Cr³⁺ и Cu²⁺ [303-308]. Однако в расчетах не учитывалось изменение поляризации самой кристаллической решетки при возбуждении примесей, что оправдано только для «жестких» сегнетоэлектриков, к которым относится, в частности, ниобат лития. Экспериментальные исследования показали, что при оптическом возбуждении ионов Cr³⁺ и Cu²⁺ в LiNbO₃ и LiTaO₃ имеет место изменение спонтанной поляризации, а не зарядового состояния примесного центра, связанное с изменением дипольного момента примеси [302-304].

В номинально чистых и легированных кристаллах ниобата лития фотовольтаический механизм, как показано многочисленными исследованиями (обзор дан в [21, 271, 285, 296, 309]), является преимущественным механизмом фоторефракции. Электроны, связанные с собственными или примесными дефектами, под действием света переходят из запрещенной зоны в зону проводимости, где они, перемещаясь в электрическом поле или за счет диффузии, рекомбинируют на ловушки. При этом образуются сильные некомпенсированные электрические поля. Появление таких полей приводит к изменению показателей преломления в нецентросимметричном кристалле за счет линейного электрооптического эффекта [273, 285, 296]:

$$(1/\varepsilon_{ij}) = (1/\varepsilon_o)_{ij} + r_{ijk} E_k, \quad (8.1)$$

где ε_{ij} и r_{ijk} – компоненты тензоров диэлектрической проницаемости и линейного электрооптического эффекта соответственно; ε_o – исходная величина; E_k – компонента электрического поля.

Возможные механизмы возникновения поля Es в полярном диэлектрике более подробно рассмотрены в [273].

Фоторефрактивный эффект может быть как примесным, так и собственным. Природа уровней, ответственных за примесный фоторефрактивный эффект, исследована преимущественно для LiNbO₃:Fe. Кристалл LiNbO₃ является кислородно-октаэдрическим сегнетоэлектриком, у которого валентная зона образована перекрытием кислородных орбиталей, а зона проводимости – орбиталей ионов ниобия. Примесные фоторефрактивные центры в LiNbO₃:Fe образуют локализованные состояния в запрещенной зоне и достаточно хорошо изучены. Процессы переноса заряда в сильно фоторефрактивных кристаллах ниобата лития, легированных многозарядными катионами (Fe, Cu, Mn и др.) удовлетворительно описываются одноцентровой моделью фоторефрактивного эффекта [21, 41, 273]. В этой модели предполагается, что имеется схема уровней с единственным донорным центром, которым является многозарядный примесный катион. Процесс переноса фотоэлектронов реализуется между низковалентными примесными катионами (например, Fe²⁺, которые являются единственными донорными центрами) и высоковалентными катионами (Fe³⁺), которые в ионизированном состоянии являются единственными центрами рекомбинации (захвата) электронов. В одноцентровой модели величина фоторефрактивного эффекта не зависит от длины волны и плотности мощности лазерного излучения.

Эта модель удовлетворительно работает при сравнительно низких уровнях лазерного излучения, не более 1 Вт/см².

В двухцентральной модели [21, 41, 273] предполагается, что в процессах переноса заряда участвует не только основной центр рекомбинации фотоносителей, но и дополнительный более мелкий уровень захвата фотоносителей, который в равновесном состоянии не заполнен. Вклад этих мелких ловушек в перенос фотоносителей будет проявляться при высокой интенсивности возбуждающего излучения, когда концентрация неравновесно заполненных мелких ловушек станет сравнимой с концентрацией донорного центра. В роли мелких фоторефрактивных центров в монокристалле ниобата лития могут выступать разнообразные собственные и примесные дефекты структуры. Необходимо отметить, что обсуждение в рамках одно- и двухцентральной моделей микроскопии переноса заряда в кристаллах ниобата лития, легированных катионами переходных элементов, основаны на предположении о наличии в кристалле фотопроводимости *n*-типа [37].

Интересное объяснение природы фоторефрактивного эффекта в кристалле LiNbO₃:Fe было предложено в работе [297] на основе анализа экспериментальных данных по спектральному распределению фотоиндуцированных изменений в преломлении, поглощении и в концентрациях ионов ниобия и железа. Авторы [297] полагают, что при облучении образца лазерным излучением ($\lambda \geq 500$ нм) свободные электроны могут генерироваться, в основном, за счет распада биполяронов на поляроны (центр этой полосы поглощения находится на длине волны 500 нм), поскольку полоса возбуждения ионов Fe²⁺ расположена на более коротковолновой области (~370 нм). Далее свободные электроны мигрируют по кристаллу и поглощаются на мелких ловушечных уровнях (ионы Nb_{Li}⁵⁺) и частично на глубоких уровнях (ионы Fe³⁺). Эти процессы поглощения электронов можно описать следующим образом [297]:



При этом ионы Nb⁴⁺ образуют поляроны, что подтверждается изменением распределения концентраций ионов Nb⁴⁺ в зависимости от спектра оптического облучения. При $\lambda_{\text{обл}} \leq 500$ нм дополнительно к этому процессу начинается фотовозбуждение электронов с ионов Fe²⁺ и их миграция в зоне проводимости. В диапазоне $400 \leq \lambda_{\text{обл}} \leq 500$ нм вклады процессов возбуждения электронов с биполяронов и ионов Fe²⁺ сравним, что находит отражение в сдвиге центра спектральной линии δn в область меньших $\lambda_{\text{обл}}$ для образцов с большей относительной концентрацией ионов Fe²⁺ [297].

Одно- и двухцентровые модели описывают эффект фоторефракции в кристаллах ниобата лития, легированных многозарядными катионами переходных металлов [21, 309]. В то же время вопрос о микроскопии переноса заряда в чистых (нелегированных) кристаллах и кристаллах, легированных катионами с постоянной валентностью, остается открытым. До недавнего времени предполагали, что существует только примесная природа эффекта фоторефракции, при этом небольшой эффект фоторефракции в номинально чистых (нелегированных) монокристаллах ниобата лития связывали с

присутствием следов примесей многозарядных катионов в кристалле [21, 309]. Вклад собственных дефектов структуры в величину эффекта фоторефракции считался малым. И только в последние годы совершенствование технологий очистки ростового сырья, позволившее получать кристаллы, имеющие концентрацию примесей $C \leq 10^{-4} - 10^{-5}$ вес. %, выдвинуло на первый план проблемы определения «собственного» механизма фоторефракции. О существенном участии собственных дефектов структуры с локализованными на них электронами в формировании эффекта фоторефракции в кристалле ниобата лития свидетельствует наличие высокого эффекта фоторефракции в кристаллах стехиометрического состава, отличающихся более высокоупорядоченной катионной подрешеткой [21]. Существование собственного фотовольтаического эффекта впервые было описано в работах [263, 310]. Возможность существования в кристалле ниобата лития фотовольтаического тока собственной природы подтверждается также зависимостью величины фотовольтаического тока от стехиометрии (отношения Li/Nb) в ниобате лития [21]. Было установлено, что «собственный» эффект фоторефракции в кристаллах ниобата лития связан с наличием специфических структурных дефектов, появляющихся на этапе роста кристалла. В [59] показано, что степень заполнения Li-вакансий ионами Nb носит случайный характер и может быть связана, например, с ростовыми условиями. Поэтому в номинально чистых кристаллах, выращенных с дефицитом по Li (кристалл ниобата лития конгруэнтного состава ($\text{Li/Nb} = 0,946$)), существуют, по-видимому, все три типа катионных нарушений: $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$, V_{Li}^- , V_{Nb}^{5-} . Еще раз подчеркнем, что заключение о существовании дефекта Nb_{Li} является общепринятым. Обсуждение целого ряда свойств кристаллов LiNbO_3 базируется именно на предположении о существовании Nb_{Li} . Например, смещение УФ края собственного поглощения в коротковолновую область с увеличением концентрации Li [311] объясняется снижением концентрации Nb_{Li} . Обобщенное уравнение Зельмейера, описывающее дисперсионные характеристики показателей преломления в кристаллах LiNbO_3 с различной стехиометрией, основано на расчете изменения силы осциллятора Nb_{Nb} за счет изменения Nb_{Li} [312, 313]. В настоящее время общепризнан также вклад Nb_{Li} в процессы переноса, т. е. в фоторефракцию [21].

Различие сил связи Nb–O и Li–O как одна из причин несоответствия состава конгруэнтного плавления стехиометрическому составу обуславливает сравнительно легкое образование в кристалле литиевых вакансий. Количество этих вакансий не уменьшается вследствие процесса гетеровалентного изоморфизма – замещения лития ниобием в катионной подрешетке (благодаря близости ионных радиусов Li^+ и Nb^{5+}). Неизбежным следствием такого процесса является образование новых вакансий в литиевых положениях. Основным следствием упомянутого изоморфизма является разупорядочение структуры в катионной подрешетке кристалла, связанное, кроме всего прочего, с частичным восстановлением ионов Nb^{5+} и формированием собственных кластерных заряженных дефектов, определяющих характер эффекта фоторефракции и фотоиндуцированного рассеяния света в кристалле. Кроме того, на эффект фоторефракции оказывают влияние неизвестные вторичные фоторефрактивные центры, которые ранее были идентифициро-

ваны как малые поляроны Nb_{Li} [292]. При этом современные представления о дефектной структуре $LiNbO_3$ трактуют схему транспорта заряда при фотовозбуждении кристалла в тесной взаимосвязи с появлением вторичных фоторефрактивных центров Nb_{Li}^{4+} и Nb_{Nb}^{4+} возможным возбуждением предполагаемой антиструктурной связки $Nb_{Li}-Nb_{Nb}$, с вытекающей отсюда последовательностью физических процессов, приводящих в конечном счете к изменению показателя преломления кристалла в освещенной области [314]. В настоящее время совершенно не исследована и не ясна природа дефектов, наведенных лазерным излучением, в номинально чистых монокристаллах $LiNbO_3$ стехиометрического состава ($Li/Nb = 1$), отличающегося большим эффектом фоторефракции, чем монокристаллы конгруэнтного состава. Большая роль собственных дефектов с локализованными электронами в формировании эффекта фоторефракции в таких кристаллах очевидна [21, 271]. Таким образом имеются указания на регулярную зависимость фоторефрактивных свойств от «собственных» (структурных) дефектов. Кристалл ниобата лития – фотовольтаический кристалл, а исследование микроскопии фотовольтаического эффекта, вклада в него центров различного типа само по себе представляется весьма интересной задачей.

Монокристалл ниобата лития является материалом с хорошо регулируемым фоторефрактивным эффектом. Это определяется тем, что ниобат лития – фаза переменного состава с широкой областью гомогенности на фазовой диаграмме, что позволяет эффективно изменять физические характеристики кристалла легированием и изменением стехиометрии [37]. Реальные кристаллы ниобата лития, вне зависимости от химического состава, обладают высокоразвитой дефектной структурой [21]. На образование дефектов в реальных кристаллах ниобата лития влияет ряд трудноконтролируемых технологических факторов: состав шихты, материал тигля, ориентация кристалла во время роста, качество затравки, условия выращивания и охлаждения и многие др. [5]. Помимо точечных дефектов, кластеров, микровключений примесных фаз и др., в них всегда присутствуют дефекты с локализованными электронами [21]. Именно такие дефекты определяют фоторефрактивные свойства кристалла. Все типы дефектов нарушают трансляционную инвариантность кристалла. При этом общая симметрия решетки кристалла остается неизменной [5, 57]. Микро- и нанообразования кластерного типа являются важной разновидностью дефектов в ниобате лития. Именно на таких дефектах происходит локализация электронов, поэтому они играют исключительно важную роль в формировании эффекта фоторефракции в кристалле [21].

Таким образом, величина эффекта фоторефракции в кристаллах ниобата лития может изменяться на несколько порядков в зависимости от химического состава кристалла и состояния дефектности [21, 266, 271, 273]. Примесный фоторефрактивный эффект исследован достаточно подробно в кристаллах ниобата лития, легированных «фоторефрактивными» катионами Fe, Cu, Mn и др., способными изменять свое зарядовое состояние и существенно повышать эффект фоторефракции [21, 271, 278, 285, 286], в основном, в связи с возможным его применением для голографической записи информации. Исследованиям фоторефрактивного эффекта в номи-

нально чистых монокристаллах с разным отношением Li/Nb и в кристаллах, легированных «нефоторефрактивными» катионами, не способными изменять свой заряд, в литературе уделялось существенно меньшее внимание [21]. Легирование кристаллов ниобата лития катионами Zn, Mg, B, Gd, Y и др., имеющими постоянную валентность, приводит к подавлению фоторефрактивного эффекта [21, 26, 90, 315]. Причем, при пороговых концентрациях «нефоторефрактивных» катионов, снижение эффекта фоторефракции происходит на порядок [21, 273]. Для кристалла ниобата лития накоплена детальная информация о центрах различного типа и разработаны методы их исследования. В [273] показана общность влияния «нефоторефрактивных» катионов на оптические, фотоэлектрические и фоторефрактивные свойства кристаллов LiNbO_3 . Эта общность обусловлена не прямым влиянием примесей на свойства кристалла, но изменением дефектной структуры LiNbO_3 при вхождении ионов Me в решетку. Т.е. участие ионов Me в переносе заряда сводится к управлению концентрацией структурных дефектов (Nb_{Li}). Снижение фоторефракции при легировании LiNbO_3 «нефоторефрактивными» катионами Me происходит за счет роста фотопроводимости и связано с уменьшением концентрации ловушек Nb_{Li} и резким уменьшением сечения захвата электронов (т. е. потерей акцепторных свойств) ионами переходных металлов (примеси, случайно присутствующие в кристалле) при высоких концентрациях Me. Т.е. при локализации Fe^{3+} в положении Li центр $(\text{Fe}_{\text{Li}}^{3+})^{2+}$ является электронной ловушкой. При локализации железа в Nb узле при пороговых значениях легирующих катионов «нефоторефрактивных» Me, центр $(\text{Fe}_{\text{Nb}}^{3+})^{2-}$ не является электронной ловушкой [273]. Но могут появляться новые центры захвата – например, $(\text{Mg}_{\text{Li}})^+$ [316].

В [273] показано, что в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ при концентрациях Mg, Zn выше порогов ($\sim 5,5$ мол. % MgO , $\sim 7,5$ мол. % ZnO в расплаве [21, 34, 89, 96, 272, 317, 318]) изменяется знак фотопроводимости, что свидетельствует о принципиальном изменении схемы переноса заряда. Фоторефрактивная чувствительность в $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ возрастает с ростом интенсивности света, подобно эффекту, наблюдаемому ранее в $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ при записи интенсивным импульсным светом. Этот эффект обусловлен участием дополнительных центров в переносе заряда [273]. При обсуждении фоторефракции в фотовольтаических кристаллах обычно предполагается, что фотовольтаический ток стационарен [273]. В случае двухуровневой схемы фотовольтаический ток может оказаться нестационарным. В результате нестационарности тока появляются особенности фоторефракции в кристаллах с фотовольтаическим механизмом фоторефракции. Неравновесное перезарядание уровней при освещении («оптическая перезарядка») сопровождается изменением концентрации фотовольтаических центров. Фотовольтаический ток, следуя концентрации фотовольтаических центров, выходит на квазистационарное значение. Характер нестационарности тока (спад или рост) определяется параметрами уровней. Расчет полей пространственного заряда показал, что переходная компонента фотовольтаического тока, возникающая в начальный момент освещения, приводит к сложным кинетикам записи и стирания фоторефракции.

Варьирование оптических и фотоэлектрических свойств кристаллов LiNbO_3 в широких пределах путем изменения концентраций Me и комбинирования различных Me обуславливает широкие возможности применений кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Me}$: от чувствительных быстродействующих голографических сред (в слаболегированных кристаллах) до эффективных нелинейно-оптических преобразователей, устойчивых к воздействию лазерного излучения (при высоких уровнях легирования).

Весьма информативными для оценки вклада собственных дефектов в эффект фоторефракции могут быть сравнительные исследования фоторефракции и связанных с ней явлений (фотопроводимости, спектров КРС и др.) в кристаллах ниобата лития разной стехиометрии, выращенных разными способами. Такие исследования стали активно развиваться в последние годы в связи с появлением новых и развитием уже существующих методов выращивания монокристаллов стехиометрического состава. Необходимо отметить, что во многих случаях кристаллы стехиометрического состава являются более предпочтительными для практических приложений в оптике. В частности, сравнение кинетик записи или стирания фоторефракции в конгруэнтных и стехиометрических кристаллах ниобата лития показывает, что последние обладают большим быстродействием [21]. Кристаллы стехиометрического состава обладают существенно более низким (в пять раз) коэрцитивным полем по сравнению с конгруэнтными, что делает их перспективными материалами для нелинейно-активных лазерных сред с периодически поляризованными доменами [21].

Особую роль в формировании оптических характеристик сегнетоэлектрических фоторефрактивных монокристаллов играют нано- и микроструктуры фрактального типа, макронеоднородности, возникающие в процессе роста в условиях неравновесной кристаллизации, собственные и примесные дефекты, а также сформированные дефектами кластеры с локализованными на них электронами и дефекты, наведенные лазерным излучением [37]. Процессы формирования таких структур и дефектов, их влияние на оптические свойства материалов в литературе исследованы явно недостаточно. Совершенно не изучено влияние макро-, микро- и наноструктуры кристалла на начальную фазу формирования эффекта фоторефракции. Между тем показатель преломления под действием лазерного излучения в различных макро- и микрообластях кристалла, различающихся своими физическими характеристиками, может изменяться по-разному. Таким образом, неоднородность кристалла может влиять не только на особенности оптических характеристик материалов, но и на формирование и динамику развития во времени эффекта фоторефракции.

Проблема повышения структурного совершенства и однородности монокристаллов, а также проблема целенаправленного формирования в них микро- и макроструктур заданной конфигурации с целью улучшения или создания качественно новых физических свойств являются важнейшими в технологии сегнетоэлектриков [37]. Для того, чтобы понять природу образования мелких собственных и примесных фоторефрактивных центров, и их роль в формировании и регулировании эффекта фоторефракции при создании конкретных материалов на основе монокристалла ниобата лития, необходимо

обратиться к рассмотрению тонких особенностей строения номинально чистых и легированных кристаллов в зависимости от их состава. Помимо большой практической значимости экспериментальные исследования эффекта фоторефракции и фотоиндуцированного рассеяния света в кристаллах ниобата лития в зависимости от их состава важны также для понимания природы структурных перестроек и оптических процессов, происходящих при взаимодействии лазерного излучения с фоторефрактивным кристаллом, а также для управления ими. В кристаллах с низким эффектом фоторефракции в отличие от кристаллов с высоким эффектом фоторефракции можно уверенно наблюдать многие оптические искажения, связанные с прохождением лазерного излучения через кристалл, поскольку они не «замазаны» сильной деструкцией лазерного луча, обусловленной эффектом фоторефракции.

8.2 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах ниобата лития

Фотоиндуцированное (фоторефрактивное) рассеяние света (ФИРС) является прямым следствием фоторефрактивного эффекта. Оно возникает в сегнетоэлектрическом кристалле на дефектах, индуцированных возбуждающим излучением, с флуктуирующим или измененным под действием света показателем преломления, диэлектрической проницаемостью и другими физическими параметрами [278, 319]. Лазерное излучение, рассеянное на таких дефектах, интерферирует с накачкой, образуя сложную картину минимумов и максимумов интенсивности рассеянного света (спекл-структура), рис. 8.1, 8.2. В ниобате лития ФИРС может проявляться также на мелкомасштабной структуре 180° иглообразных доменов, ориентированных вдоль полярной оси (микродоменное рассеяние) [319, 320].

Как и фоторефрактивный эффект, спекл-структура индикатрисы ФИРС «раскрывается» – с увеличением времени засветки она меняет свою форму, контраст и интенсивность, а также происходит увеличение угла раскрытия индикатрисы рассеяния, вследствие изменения показателя преломления [278, 319, 321, 322]. При этом в кристаллах с высоким эффектом фоторефракции угол раскрытия может достигать 90° , а первоначальная структура луча на выходе из кристалла может быть полностью разрушенной. Раскрытие индикатрисы ФИРС наблюдается в виде «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла (рис. 8.1). При этом в положительном направлении полярной оси кристалла наблюдается больший «лепесток», а в отрицательном направлении – меньший. Оба лепестка имеют четко выраженную спекл-структуру, размеры зерен которой различаются в зависимости от угла рассеяния света. При удалении от оси индикатрисы ФИРС зерна спекл-картины уменьшаются в размерах. Строение каждого слоя этой структуры более подробно показано на рис. 8.2. В связи с тем, что индикатриса ФИРС, раскрывающаяся при облучении монокристалла лазерным излучением, не является единой, а имеет три разновидности спеклов, которые расположены последовательно друг за другом, она получила название «трехслойная спекл-структура» [39, 291, 323].

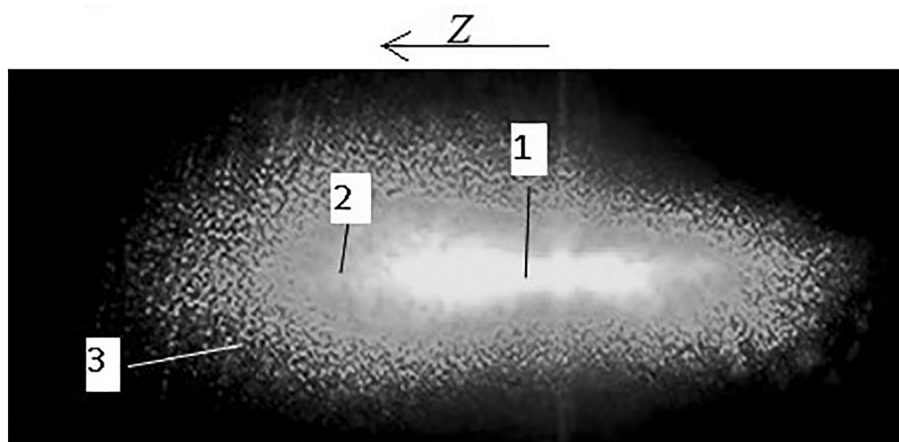


Рисунок 8.1 – Трехслойная спекл-структура ФИРС в монокристалле ниобата лития: 1 – центральный слой; 2 – второй слой; 3 – третий слой

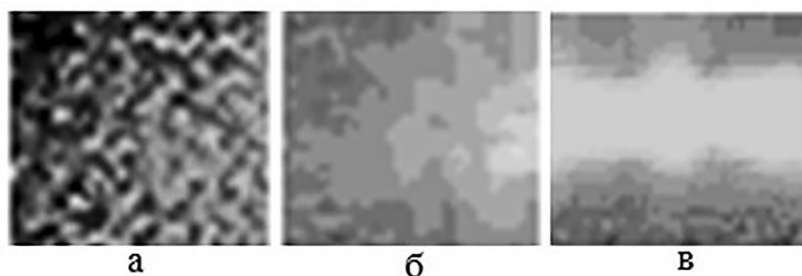


Рисунок 8.2 – Спекл-слои, получаемые при освещении кристаллов ниобата лития лазерным излучением: а – третий слой, ФИРС на микроточках (микроструктурах кристалла) с флуктуирующим показателем преломления; б – второй слой, ФИРС на микроточках с измененным показателем преломления; в – первый (центральный) слой, ФИРС на лазерном треке

На рис. 8.3 в качестве примера показана спекл-структура рассеянного излучения в монокристаллах ниобата лития стехиометрического состава $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ при разных мощностях возбуждающего излучения [269, 280, 324]. Из рис. 8.3 можно наблюдать поэтапное раскрытие трех слоев спекл-структуры. Центральное пятно индикатрисы ФИРС появляется практически мгновенно – это след от падения лазерного излучения. При этом центральное пятно трансформируется в овал и приблизительно за минуту облучения монокристалла индикатриса ФИРС принимает форму симметрично расположенных «лепестков» с явно выраженным центром, рис. 8.3. По контуру центральных лепестков появляется спекл-структура меньшей интенсивности, состоящая из крупных, хаотически расположенных зерен

спекл-картины. Эта структура составляет второй слой и соответственно – вторую разновидность спекла (рис. 8.3). И только затем раскрывается третий слой, соответствующий ФИРС на флуктуирующих дефектах, также наведенных лазерным излучением. Крайний по периметру (третий) слой имеет явно выраженную зернистую спекл-структуру. Данный слой претерпевает значительные изменения по форме и углу раскрытия индикатрисы, связанные с увеличением мощности и длительности пропускания лазерного излучения через кристалл, рис. 8.3. Форма индикатрисы ФИРС принимает более четкую форму ассиметричной восьмерки с выраженными границами слоев спеклов, рис. 8.3. При этом происходит перекачка энергии от слоя к слою (от центра к периферии). Вероятно, с изменением мощности возбуждающего излучения каждый слой спекл-структуры можно экспериментально наблюдать отдельно. При малых мощностях лазерного излучения должен наблюдаться только первый (мерцающий) слой спекл-структуры. Повышение мощности приводит к появлению второго слоя спекл-структуры. Третий слой спекл-структуры появляется при еще большем повышении мощности лазерного излучения.

Таким образом, при ФИРС имеют место три различных физических процесса. В зависимости от количества поступающей с лазерным лучом энергией, структура кристалла LiNbO_3 реагирует по-разному. В месте прохождения лазерного луча весь объем кристалла имеет измененный показатель преломления – следовательно, структура катионной и дефектной подрешеток, которые отвечают за появление фоторефрактивного эффекта, обратимо изменена во всем объеме. Изменение катионной и дефектной подрешеток необходимо для кристалла LiNbO_3 , который представляет собой открытую систему для того, чтобы под воздействием лазерного луча не разрушится и эффективно диссипировать энергию. В объеме вокруг лазерного луча рассеиваемая в первом слое энергия уже недостаточна для создания области с полностью измененной структурой – и как следствие – с полностью измененным показателем преломления. Однако в локальных минимумах энергии системы – то есть в структурных и примесных дефектах с мелкими ловушками, на которых происходит перераспределение электронов, возникает локальная область, которая проявляется как статичная точка с измененным показателем преломления. Так как с отдалением от центра лазерного луча количество энергии в кристалле уменьшается, то чем дальше от первого слоя, тем более мелким должен быть локальный минимум, чтобы проявилась статическая точка с измененным показателем преломления. Следовательно, в непосредственной близости от лазерного луча возбуждаются почти все имеющиеся в кристалле ловушки – но дальше возбуждаются только самые мелкие ловушки. Так как видимые статические точки с измененным показателем преломления отличны от материальной точки и имеют некоторую конечную площадь, можно предположить, что в области вокруг точечного дефекта происходит локальное изменение структуры кристалла LiNbO_3 . Изменение происходит для более эффективной диссипации энергии света, рассеиваемого на локальной ловушке с объемным зарядом, вызывающим локальное перераспределение поля. Таким образом, формируется второй слой ФИРС. Если в первом и втором слоях ФИРС происходят схожие

процессы – разница лишь в объеме происходящих изменений, то в третьем слое ФИРС происходит принципиально другой физический процесс. Вклад в мерцание вносят три составляющие. Первой из них, очевидно, является накачка – то есть монохроматическое излучение лазера, подаваемое в кристалл и не искаженное локальными полями. Вторая составляющая – это интерференционная картина, возникающая при рассеянии входящего света на первом слое ФИРС и на локальных областях с измененным показателем преломления. Однако и первая и вторая составляющие вносят статический вклад в третий слой ФИРС. Динамику ему придает третья составляющая – рассеяние света на флуктуациях физических параметров кристалла LiNbO_3 .

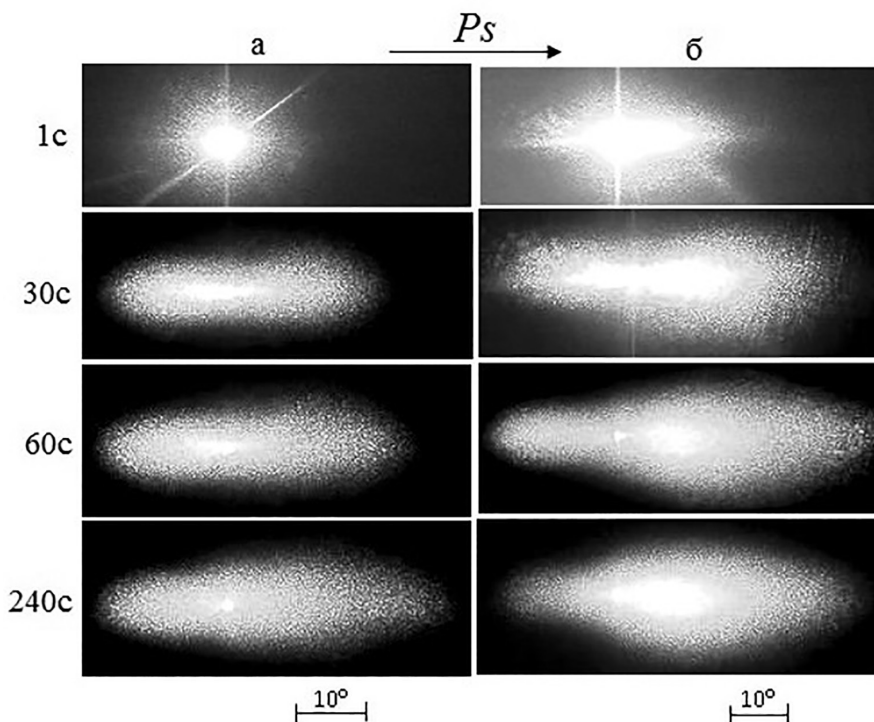


Рисунок 8.3 – Индикатрисы ФИРС в монокристалле $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ при возбуждении излучением лазера Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532$ нм) мощностью 35 мВт (а), 160 мВт (б)

Для $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ уже при мощности возбуждающего излучения 35 мВт на экране в первые же секунды ФИРС появляется трёхслойная спекл-структура. При этом в первую секунду центральный слой представляет собой наиболее яркое по интенсивности пятно, второй слой имеет меньшую интенсивность свечения, и крайний по периметру слой имеет точечную спекл-структуру (рис. 8.3 а). В течение следующих тридцати секунд центральное пятно из окружности трансформируется в овал, вытянутый вдоль полярной оси кристалла. Через минуту интенсивность излучения из центрального пятна перераспределяется в рассеянное излучение и интенсивность центрального пятна

заметно снижается. Через четыре минуты (240 с), в стационарном состоянии, форма спекл-структуры ФИРС имеет вид асимметричной восьмерки относительно нормали к главному сечению кристалла с центральным пятном в форме окружности (рис. 8.3 а).

При облучении кристалла лазерным излучением мощностью 160 мВт наблюдается существенно более быстрое раскрытие трёхслойной спекл-структуры (рис. 8.3 б). При этом в стационарном состоянии индикатриса ФИРС и центральное пятно спекл-структуры сильно асимметричны. То, что угол раскрытия индикатрисы ФИРС достигает стационарного значения значительно быстрее при больших мощностях накачки, чем при малых, рис. 8.3 а, б, объясняется полевым механизмом возникновения ФИРС.

Образование индуцированных лазерным излучением микродефектов в фоторефрактивных кристаллах вносит дополнительное разупорядочение в структуру кристалла, которое после прекращения действия излучения исчезает со временем или при воздействии температуры [21, 278, 325, 326]. В процессе воздействия лазерного излучения образуются два вида микродефектов: статические (с постоянным показателем преломления) и динамические (с флуктуирующим показателем преломления).

Наиболее актуальным является исследование флуктуирующих микродефектов и характеристик рассеянного ими излучения. Наведенные лазерным излучением флуктуирующие дефекты в монокристаллах, легированных катионами с переменной валентностью («фоторефрактивными» катионами), обусловлены перезарядкой этих катионов [5, 291]. В литературе в основном исследовано фоторефрактивное рассеяние света в монокристаллах ниобата лития конгруэнтного состава ($R = \text{Li/Nb} = 0.946$), легированных «фоторефрактивными» катионами Fe и Rh. Подробный обзор исследований дан в [291].

Особенности и характеристики ФИРС в ниобате лития сильно зависят от многих факторов: способа выращивания монокристалла, состояния его дефектности, отношения Li/Nb, типа легирующей примеси, степени легирования, геометрии освещения, поляризации и плотности мощности светового пучка, степени когерентности возбуждающего света и др. [278, 319, 322]. Интенсивное исследование ФИРС в кристаллах, отличающихся высоким эффектом фоторефракции (например, в $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$) связано с возможным применением таких кристаллов в голографии [278, 319]. ФИРС в кристаллах с высоким эффектом фоторефракции носит сложный динамический характер, обуславливает сильную деструкцию лазерного луча, проходящего через монокристалл и, наряду с разупорядочением структурных единиц кристалла и дефектами, является одним из наиболее значительных факторов, ухудшающих качество голограмм, а также параметров активных лазерных элементов и преобразователей частоты лазерного излучения [278, 319].

ФИРС представляет собой особый случай голографических эффектов [278, 319, 322, 327-333]. Существует несколько моделей ФИРС в кристаллах. Согласно е-модели ФИРС [319, 333], в результате переноса заряда в неоднородном световом поле в фоторефрактивном кристалле записывается фазовая голограмма, т. е. модулируется показатель преломления среды. В результате взаимодействия двух волн в фоторефрактивном кристалле, при выполнении определенных условий, может осуществляться перекачка энер-

гии от сильного пучка к слабому [334, 335]. Исходный световой шум (рэлеевское рассеяние), усиленный таким образом, интерпретируется в е-модели как ФИРС.

В *R*-модели ФИРС полагается, что не только диэлектрическая проницаемость, но и многие другие параметры среды (проводимость, компоненты фотовольтаических тензоров и др.) могут испытывать пространственные флуктуации [332, 336]. Так, в [332] показано, что из-за неоднородностей распределения в кристалле фотовольтаически активных примесей фотовольтаический ток может быть неоднородным даже в случае однородного освещения. В многоволновой модели [337] ФИРС предполагается, что в процессах неселективного рассеяния существенное значение имеет глубокая модуляция фотопроводимости среды.

По характеру индикатрисы определяют два типа ФИРС [278]. При селективном ФИРС индикатриса рассеяния имеет узко-угловой характер из-за наличия направлений синхронизма; при неселективном ФИРС – широкоугловой характер. Неселективное ФИРС проявляется за счет появления в кристалле шумовых голограмм и имеет и другое название – индуцированное рэлеевское рассеяние. При этом в кристаллах класса $3m$ асимметрия индикатрисы обусловлена особенностями электрооптических свойств среды [278].

При исследовании особенностей наведенной оптической неоднородности в сильно фоторефрактивных кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ [338] обнаружено ФИРС нескольких типов: *ee*-, *oo*-, *oe*- (по классификации [319]). Если лазерное излучение распространяется в кристалле в виде волны с необыкновенной поляризацией, то ФИРС в дальней зоне в сечении, перпендикулярном направлению распространения накачки, имеет вид восьмерки, вытянутой вдоль оптической оси кристалла. При этом поляризация рассеянного излучения, в основном, совпадает с поляризацией накачки (*ee* - рассеяние) [319]. Со временем картина ФИРС «схлопывается» к центру восьмерки с одновременным уменьшением интенсивности рассеяния. В случае использования в качестве накачки излучения обыкновенной (*o*) поляризации процесс рассеяния приобретает более сложный вид. Сначала происходит *oo* - рассеяние (аналогичное *ee* - рассеянию), однако через определенное время ($t \gg 40$ с) появляется рассеяние ортогональной поляризации (рассеяние *oe* - типа). Этот тип рассеяния проявляется в виде двух пятен, расположенных на оси, перпендикулярной полярной оси кристалла и носит название поляризационно-анизотропного рассеяния [319].

В работе [328] установлено, что поляризационно-анизотропное рассеяние в сильно фоторефрактивных кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ не наблюдается при воздействии на кристалл обыкновенной волны. Эффект имеет заметную спектральную чувствительность и на длине волны гелий-неонового лазера (6328 Å) не наблюдается. По мнению авторов [328], в нецентросимметричных кристаллах при этом эффекте возникает *oe* - рассеяние с дифракцией падающего на кристалл излучения на шумовых динамических фазовых решетках, возникающих в кристалле из-за возбуждения пространственно-осциллирующих фотовольтаических токов [285, 339].

В сегнетоэлектрических кристаллах класса $3m$, к которым принадлежит ниобат лития, фотовольтаический тензор *b* имеет четыре независимые ком-

поненты b_{333} , b_{311} , b_{131} , b_{222} что определяет возможность записи и считывания шумовых решеток, ориентированных по всем трем кристаллографическим осям. Диагональные компоненты b_{ijk} , связывающие световые волны одной поляризации, вызывают появление скалярных фотовольтаических токов, направление которых постоянно в пространстве, а плотность изменяется в соответствии с изменением интенсивности в интерференционной картине [285, 339].

Среди компонент тензора в кристаллах группы $3m$ только b_{15} содержит как симметричную β_{15}^c , так и асимметричную часть β_{15}^a . Последняя, вызывая циркулярный фотовольтаический ток, способна привести к записи сдвиговой динамической решетки и обеспечить стационарный энергообмен между взаимодействующими пучками. В работах [328, 340] показано, что знак произведения $g_{54} \cdot \beta_{15}^a$ однозначно определяет знак экспоненциального коэффициента усиления, определяющего перекачку энергии из падающей волны в рассеянную и, следовательно, определяет направление перекачки между волнами с различными поляризациями. В случае с $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$, коэффициент усиления положителен для е- волны и отрицателен для о- волны.

В работе [327] был обнаружен режим «просветления» кристалла, представляющий собой увеличение нерассеянной мощности накачки. Этот режим реализуется в легированных кристаллах LiNbO_3 только при выполнении определенных условий, накладываемых на поперечные размеры пучка накачки [327]. Наиболее сильное рассеяние происходит при выполнении соотношения $\Delta n_e l > \lambda$ (Δn_e – изменение необыкновенного показателя преломления, l – длина кристалла вдоль распространения луча, λ – длина волны). Режим просветления обусловлен уменьшением интенсивности ФИРС после достижения максимума, что связано с возможностью лишь нестационарного энергообмена. По мнению авторов [327], при $\Delta n_e l > \lambda$ в приповерхностной области реализуется стационарное условие $J_{ph} = \sigma E + K_{ph} I$ (J_{ph} – плотность фотовольтаического тока, σ – проводимость кристалла, E – напряженность электрического поля, K_{ph} – константа Гласса, I – интенсивность света) в связи с закорачиванием приповерхностного поля по поверхности (либо специально созданным, либо реализуемым при поверхностных пробоях). При $\Delta n_e l < \lambda$ рассеяние имеет не голографический механизм, а обусловлено распылением пучка на фотоиндуцированной линзе с Δn , растущим по мере роста поперечного градиента интенсивности накачки.

Авторами работы [327] обнаружена также качественная зависимость ФИРС от степени когерентности накачки. В частности, при освещении кристаллов ниобата лития некогерентным светом ФИРС не наблюдается, что объясняется авторами [327] голографической природой ФИРС. Однако авторы работы [325] указывают на вклад в ФИРС и других (не голографических) механизмов, в частности, рассеяния на фотоиндуцированных неоднородностях показателя преломления, вызванных неоднородным распределением примеси и дефектов в кристалле.

В работах [326, 341-344] исследована кинетика ФИРС по форме центрального пятна картины рассеяния при облучении кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Rh}$. При этом происходит эффект периодической перекачки энергии из центрального пятна в рассеянное излучение и обратно. После мно-

гократной термической обработки картина рассеяния заметно изменяется, что свидетельствует об ослаблении фоторефрактивных свойств кристалла вследствие наличия эффекта термической усталости.

Таким образом, анализ литературных данных показывает, что к настоящему времени подробно исследовано ФИРС только в кристаллах LiNbO_3 конгруэнтного состава, легированных катионами с переменной валентностью («фоторефрактивными» катионами), в основном Fe, существенно повышающими эффект фоторефракции. Нам не удалось обнаружить в литературе исследований ФИРС в номинально чистых и легированных монокристаллах LiNbO_3 с существенно низким эффектом фоторефракции. В то же время для создания современных материалов для преобразования и генерации лазерного излучения (где фоторефрактивный эффект и, как следствие, ФИРС являются ограничивающими факторами) значительный интерес представляют исследования ФИРС в номинально чистых монокристаллах LiNbO_3 с разным отношением Li/Nb , легированных «нефоторефрактивными» катионами, понижающими эффект фоторефракции. Важной особенностью таких кристаллов является то, что в них эффекты структурного разупорядочения, обусловленные изменением состава, технологическими и ростовыми факторами, не «затенены» сильным эффектом фоторефракции. Такие кристаллы, кроме того, отличаются повышенной лучевой прочностью. Также важной практической задачей является подавление ФИРС с сохранением фоторефрактивных свойств монокристалла, что является необходимым условием успешного использования кристалла в голографии. При этом величина и скорость угла раскрытия индикатрисы ФИРС определяют чувствительность и быстродействие голографической записи информации, электрооптических модуляторов и затворов.

И наконец, необходимо отметить следующее. Вид наведенных лазерным излучением флуктуирующих и статических микроструктур, а также спекл-структура ФИРС характерны для кристаллов ниобата лития разного состава как номинально чистых, так и легированных. Однако такие дефекты и рассеянное излучение на них имеют свои тонкие особенности, благодаря исследованию которых можно получать информацию о структуре, микро- и макронеоднородности кристаллов. Дальнейшие исследования особенностей распространения лазерного излучения в кристаллах ниобата лития разного состава, выращенных различными способами и в разных режимах, представляют несомненный интерес для создания материалов с заданными оптическими свойствами.

8.3 Регистрация фотоиндуцированного рассеяния света

Схема экспериментальной установки для исследований ФИРС изображена на рис. 8.4. ФИРС возбуждалось лазером Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532,0$ нм, $P = 160$ мВт, диаметр пучка $D = 1,8$ мм, плотность мощности лазерного излучения: $p \sim 6,3$ Вт/см²). С помощью нейтральных светофильтров мощность излучения лазера варьировалась в пределах от 2 до 160 мВт. В условиях нашего эксперимента наблюдалось ФИРС *ee*-типа [278]. Кристалл

устанавливался на пути лазерного луча. При этом волновой вектор световой волны был направлен вдоль оси Y , по нормали к входной грани кристалла, а вектор напряженности ее электрического поля E параллелен оси Z , совпадающий с направлением полярной оси кристалла и, соответственно, вектора спонтанной поляризации P_s . Рассеянное кристаллом излучение падало на полупрозрачный экран, размещенный за кристаллом, и регистрировалось цифровой фото(видео)камерой. Угол рассеяния θ рассчитывался по формуле: $\theta = \arctg(a/b)$, где a – размер индикатрисы ФИРС в положительном направлении полярной оси, b – расстояние от кристалла до экрана. Поскольку явление ФИРС является многофакторным [319, 323], а форма индикатрисы рассеянного излучения может быть различной и многослойной [278, 323], то за крайнюю точку на картине ФИРС, по которой определяется угол рассеяния, принимали точку, в которой интенсивность рассеянного излучения падает на порядок. Для оценки степени асимметрии индикатрисы ФИРС применен введенный в работе [345] параметр $\gamma = \theta/b$, где θ – максимальный угол рассеянного излучения в положительном направлении полярной оси кристалла; b – максимальный угол рассеянного излучения в отрицательном направлении полярной оси кристалла.

При взаимодействии лазерного излучения с исследуемыми кристаллами возможен существенный нагрев образца (до 100°C). Нагрев особенно заметен для окрашенных образцов (например, для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$), имеющих высокое поглощение в видимой области спектра. Как хорошо известно [21, 278] уже при температуре кристалла $\sim 80^\circ\text{C}$ происходит существенное уменьшение фоторефрактивного эффекта и угнетение (уменьшение) индикатрисы рассеяния. Для температурных исследований фоторефрактивных свойств монокристаллов была изготовлена оптическая термокамера и система термостатирования к ней, которая позволяла регистрировать ФИРС в интервале температур $20 \div 150^\circ\text{C}$ [346].

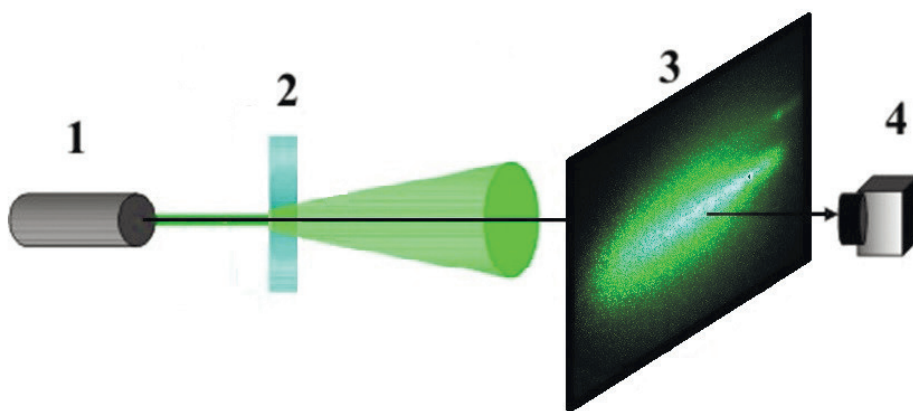


Рисунок 8.4 – Схема установки для исследования фотоиндуцированного рассеяния света: 1 – лазер Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532$ нм, $P = 160$ мВт); 2 – кристалл; 3 – полупрозрачный экран; 4 – видео(фото)камера

8.4 Установка для определения кинетических зависимостей фоторефрактивного эффекта в электрооптических кристаллах

Установка предназначена для исследования интерференционно-поляризационным методом кинетических зависимостей фоторефрактивного эффекта (ФРЭ) и фотоэлектрических полей (фотовольтаического и диффузионного) в электрооптических кристаллах. Схема эксперимента представлена на рис. 8.5. По одной оптической ветви распространяется основное излучение (мощное), а по второй ветви с помощью стеклянной пластинки, системы зеркал, рассеивателя и линз отводится вторичное излучение (слабое) с широкоапертурным пучком (рис. 8.5). Во второй оптической ветви (рис. 8.5) направления пропускания поляризатора и анализатора взаимно перпендикулярны и составляют угол 45° с главным сечением кристалла. На полупрозрачном экране *12* с помощью цифровой видеокамеры *13* фиксируются интерферограммы с течением времени облучения. Одновременно с этим ведется запись фотоиндуцированного рассеяния света (ФИРС) на экране *14* (первая оптическая ветвь, рис. 8.5) *ee*-типа, преимущественно развивающегося в плоскости главного сечения кристалла.

По параметрам ФИРС (углу рассеянного излучения $\theta = \pm 25^\circ$ и соответствующей интенсивности), в соответствие с описанной методикой в работе [347], определяются фотовольтаическое и диффузионные поля в кристалле, но не в статическом режиме, а в зависимости от времени облучения. Также в зависимости от времени облучения по интерферограммам определяется ФРЭ (наведенное двулучепреломление). В течение облучения основным излучением за счет электрооптического эффекта в кристалле изменяется показатель преломления. Изменение показателя преломления визуально наблюдается по интерферограммам во второй оптической ветви в виде интерференционных замкнутых линий в форме вложенных друг в друга эллипсов. Появление в границах кристалла каждой замкнутой линии означает, что фаза между интерферирующими лучами (обыкновенный и необыкновенный) изменилась на 2π . Исходя из известного соотношения между набегом фазы $\Delta\phi$ и двулучепреломлением $\Delta\phi = 2\pi d\Delta n/\lambda$, где d – длина кристалла вдоль распространения света, λ – длина волны излучения, определяется наведенное двулучепреломление Δn (величина ФРЭ). Для сравнения кинетических зависимостей величина ФРЭ определяется из соотношения [195]: $\Delta n = 0,5(n_o^3 r_{13} - n_e^3 r_{33})$, где n_o – обыкновенный показатель преломления кристалла; n_e – необыкновенный показатель преломления кристалла; r_{13} , r_{33} – электрооптические коэффициенты; E – фотовольтаическое поле.

Преимущество предложенной схемы заключается в одновременной записи параметров ФИРС, интерферограмм и сравнительном анализе определяемых величин ФРЭ. Экспериментальные результаты показывают, что кинетическая зависимость фотовольтаического поля коррелирует с кинетической зависимостью ФРЭ.

Технические характеристики. Рабочий диапазон длин волн ограничивается спектром поглощения кристалла; рабочая апертура 50 мм; погрешность $\Delta n = \pm 1 \cdot 10^{-6}$.

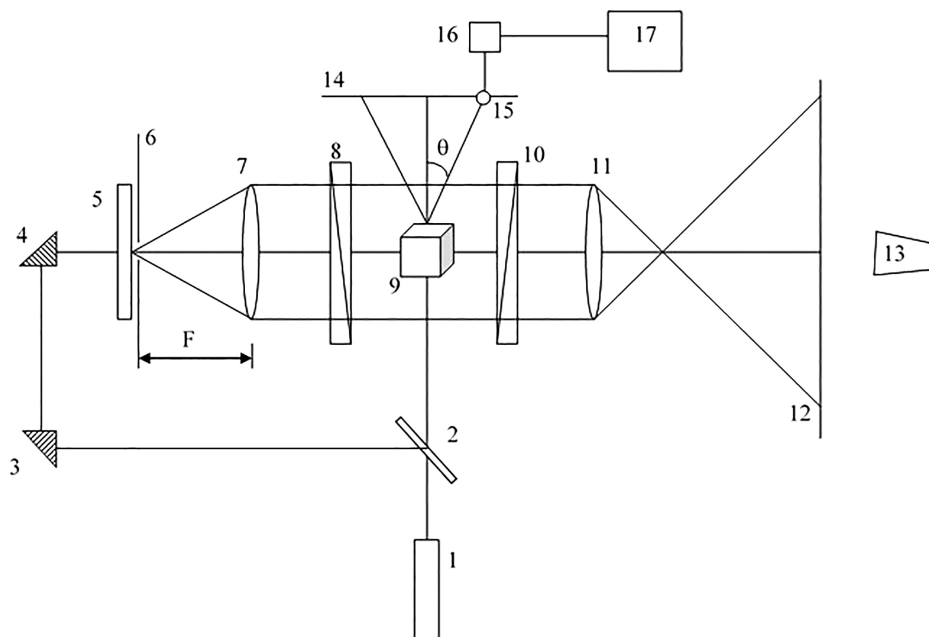


Рисунок 8.5 – Схема экспериментальной установки для определения кинетических зависимостей фоторефрактивного эффекта в электрооптических кристаллах
 1 – лазер; 2 – стеклянная пластинка; 3, 4 – зеркала; 5 – рассеиватель; 6 – диафрагма; 7, 11 – линзы; 8 – поляризатор; 9 – кристалл; 10 – анализатор; 12, 14 – полупрозрачный экран; 13 – цифровая видеокамера; 15 – фотодиод; 16 – мультиметр; 17 – компьютер

Глава 9 ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В РЕАЛЬНЫХ КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА ЛИТИЯ

Вид спекл-структуры ФИРС является характерным для кристаллов ниобата лития. И всё же спекл-структура ФИРС для кристаллов разного состава, выращенных разными способами имеет свои тонкие особенности, по которым можно исследовать структуру, микро- и макрооднородность кристаллов. Дальнейшие исследования спекл-структуры в кристаллах ниобата лития разного состава, полученных по разным технологиям, отличающихся упорядочением структурных единиц и состоянием дефектности кислородной и катионной подрешеток, представляют несомненный интерес для создания материалов с заданными фоторефрактивными характеристиками. Кроме того, в кристаллах ниобата лития существуют микро- и наноструктуры с локализованными электронами, определяемые составом и способами выращивания, существенно влияющие на эффект фоторефракции.

В этой связи, а также для отработки промышленных технологий выращивания монокристаллов, значительный интерес представляют исследования спекл-структуры ФИРС в зависимости от мощности возбуждающего лазерного излучения, а также динамики ее развития во времени в номинально чистых монокристаллах ниобата лития одинакового состава, выращенных разными способами, а также легированных монокристаллах ниобата лития.

9.1 Распространение лазерного излучения в кристаллах ниобата лития стехиометрического состава

Вследствие эффекта фоторефракции в кристалле происходит изменение показателя преломления в месте прохождения лазерного излучения.

На рис. 9.1 а, б показано прохождение лазерного излучения через фоторефрактивный кристалл LiNbO_3 стехиометрического состава, выращенный из расплава с 58,6 мол. % Li_2O , и сечение конуса прошедшего через кристалл излучения. Из рис. 9.1 отчетливо видно достаточно сильное расхождение лазерного луча, происходящее вследствие эффекта фоторефракции, прежде всего, в плоскости ZY .

Угол расхождения излучения в фоторефрактивном кристалле LiNbO_3 может достигать 30° и более. В качестве примера на рис. 9.1 в приведена кривая зависимости величины угла ФИРС от времени и мощности возбуждающего излучения в фоторефрактивном кристалле LiNbO_3 . Расхождение возбуждающего лазерного излучения в фоторефрактивном кристалле LiNbO_3 при распространении его вдоль оси Z приводит к появлению составляющих вектора \mathbf{E} вдоль других координатных осей (X и Y) (Рис. 9.2).

Из полученных результатов становится ясной динамика развития эффекта фоторефракции в сегнетоэлектрическом монокристалле ниобата лития (рис. 9.3). Эффект фоторефракции также развивается в три этапа. Сначала в мо-

нокристалле в месте распространения лазерного луча появляются светящиеся точки, соответствующие рассеянию излучения на собственных микродефектах и микродефектах (флуктуирующих и статических), наведенных лазерным излучением (рис. 9.3 а). Со временем облучения, а также с повышением мощности лазерного излучения наведенных им дефектов становится все больше и постепенно они трансформируются в трек с показателем преломления, отличающимся от показателя преломления монокристалла (рис. 9.3 в). Этот трек способен сохраняться в кристалле длительное время, обусловленное временем максвелловской релаксации (до года в темноте [5]). Наличие трека свидетельствует о возможности записи информации с использованием данного материала.

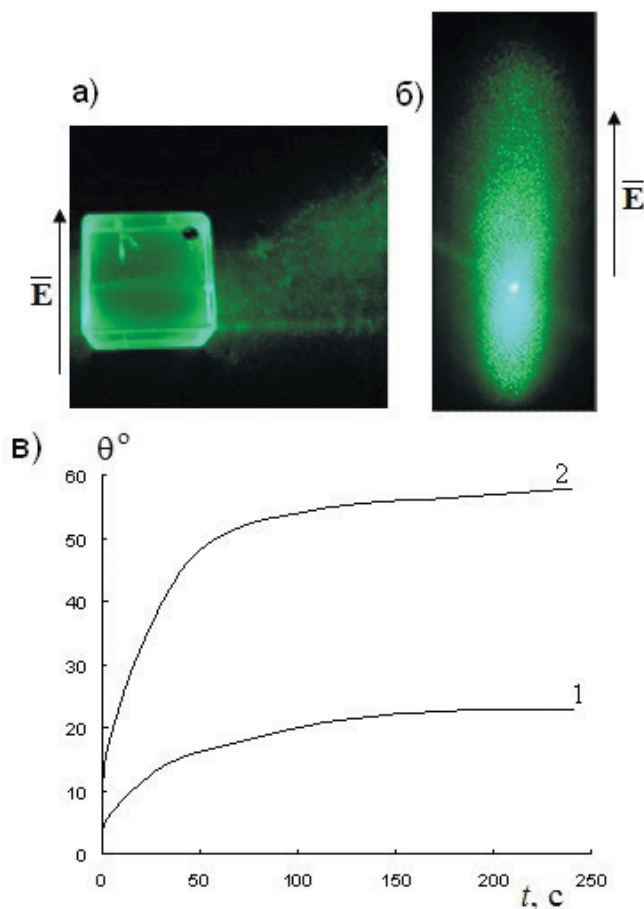


Рисунок 9.1 – Прохождение лазерного излучения через фоторефрактивный кристалл $\text{LiNbO}_{3\text{стек}}$, выращенный из расплава с 58,6 мол. % Li_2O вдоль оси Z (вектор \vec{E} параллелен оси Y) (а); сечение конуса прошедшего через кристалл излучения (ФИРС) (б); кривая зависимости величины угла ФИРС от времени и мощности возбуждающего излучения (в): 1- $P = 160$ мВт, 2- $P = 35$ мВт

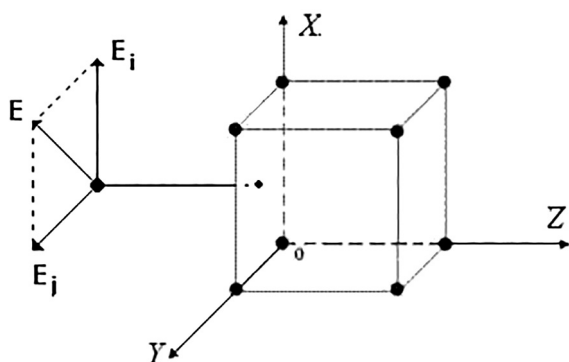


Рисунок 9.2 – Схема трансформации суммарного вектора E вдоль оси Z в фоторефрактивном кристалле LiNbO_3

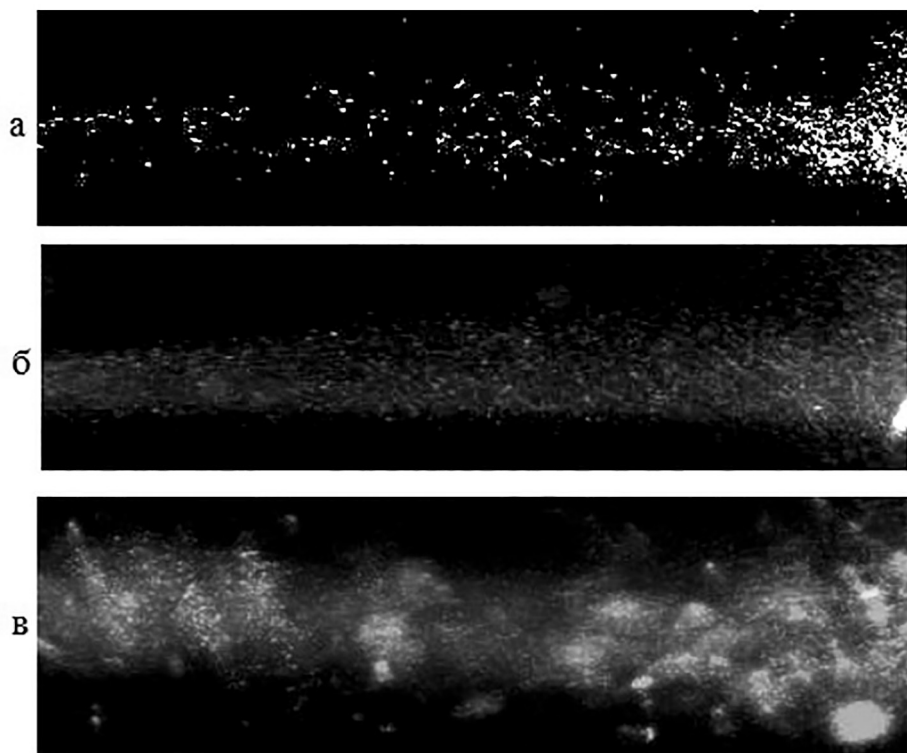


Рисунок 9.3 – Распространение лазерного излучения в монокристалле LiNbO_3 стехиометрического состава, выращенного из расплава с 58,6 мол. % Li_2O

Интересен следующий факт. При распространении лазерного излучения в стехиометрическом монокристалле LiNbO_3 , выращенном из расплава с

58,6 мол. % Li_2O , вдоль оси роста Z (рис. 9.4), нами было впервые обнаружено, что с увеличением времени засветки монокристалла ниобата лития наблюдалась периодическая структура лазерного луча вдоль направления его распространения. Величина периода m составляла примерно 0,33 мм. В начальный же момент времени вышеупомянутая периодичность отсутствовала. При этом данный эффект не наблюдался при облучении образца в направлении кристаллографических осей X и Y . Аналогичные исследования также проводились и на номинально чистых монокристаллах ниобата лития, выращенных из конгруэнтного расплава и из расплава, близкого к стехиометрическому. В данных кристаллах периодическая структура лазерного луча вне зависимости от направления распространения отсутствовала. Необходимо отметить, что аналогичный эффект впервые был описан в работах [348, 349], однако, наиболее подробное описание механизма данного явления дано в более поздней работе [6]. Периодическая структура лазерного луча может быть обусловлена наличием эффекта гиротропии [350], но следует отметить, что монокристалл ниобата лития стехиометрического состава, выращенный из расплава с 58,6 мол. % Li_2O , не является оптически активным. Проявление данного явления только в монокристаллах ниобата лития стехиометрического состава может быть связано со спецификой процесса роста данных кристаллов [1, 21], в результате чего полученные образцы обладают значительной неоднородностью состава вдоль оси роста Z [7].

Можно предположить, что наличие эффекта периодической структуры лазерного луча в кристалле ниобата лития свидетельствует о стехиометричности его состава и, следовательно, может являться одним из критериев оценки соответствия выращенного образца стехиометрическому составу. Данный метод не требует значительных временных затрат и наличия высокотехнологичной аппаратуры и, вероятно, будет чрезвычайно удобным для экспресс-оценки состава, выращенного монокристалла в производстве.

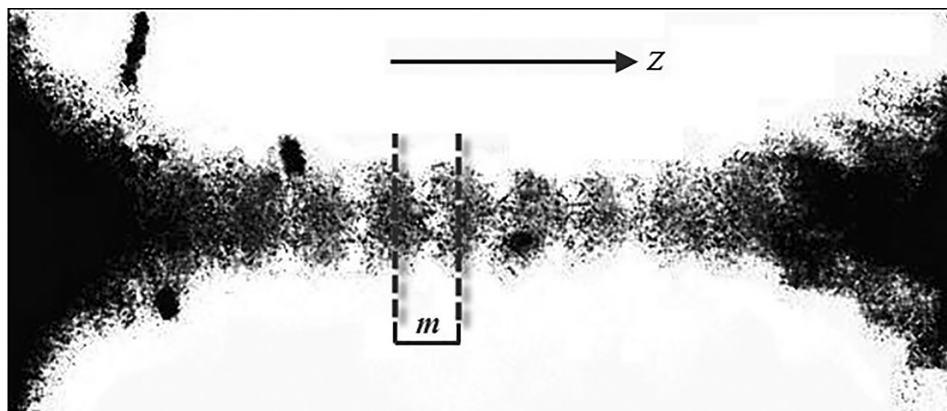


Рисунок 9.4 – Периодическая структура лазерного луча в монокристалле ниобата лития стехиометрического состава при облучении образца вдоль оси роста Z . $\lambda = 514,5$ нм

На рисунке 9.5 приведена фотография прохождения лазерного луча с длиной волны 514,5 нм в монокристалле ниобата лития стехиометрического состава. Отчетливо видно рассеяние излучения на объемной подрешетке микро- и наноструктур с измененными физическими параметрами в виде локальных неоднородностей показателя преломления, возникших в кристалле вследствие наличия эффекта фоторефракции. Наведенные микро-структуры отсутствуют при освещении кристалла лазерным излучением в ИК-области ($\lambda_0 = 1064$ нм), поскольку в этом случае эффект фоторефракции практически не проявляется. Размер наиболее крупных микро-структур составляет около 0,08 мм.

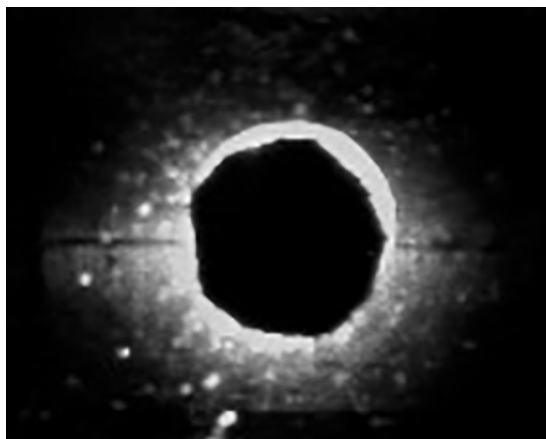


Рисунок 9.5 – Фотография освещенной области вблизи лазерного луча в фоторефрактивном монокристалле ниобата лития стехиометрического состава. Полярная ось Z и луч лазера направлены перпендикулярно плоскости рисунка

9.2 Фотоиндуцированное рассеяние света в номинально чистых кристаллах ниобата лития стехиометрического и конгруэнтного составов

Нами была исследована спекл-структура ФИРС в монокристаллах LiNbO_3 конгруэнтного и стехиометрического составов, выращенных: обычным способом из расплава конгруэнтного состава или из расплава, содержащего ~ 58,6 мол. % Li_2O , а также из расплава конгруэнтного состава в присутствии флюса - K_2O (4,5 и 6 вес. %), рис. 9.6.

Для создания оптических материалов для лазерных сред и преобразования излучения с субмикронными периодически поляризованными доменными структурами высокосовершенные монокристаллы ниобата лития стехиометрического состава ($\text{Li/Nb} = 1$) имеют существенное преимущества по сравнению с конгруэнтными ($\text{Li/Nb} = 0,946$) кристаллами ввиду наличия у них значительно более низкого (в пять раз) коэрцитивного поля [37]. Однако при выращивании стехиометрических кристаллов из расплава с 58,6 мол. %

Li_2O существует высокая неоднородность показателя преломления вдоль оси роста, что делает невозможным практическое применение таких кристаллов [36]. Кроме того, кристаллы LiNbO_3 обладают гораздо более высоким, чем конгруэнтные кристаллы, эффектом фоторефракции (optical damage) и фотоиндуцированным рассеянием света [21, 36, 269, 271], что может существенно снизить эффективность нелинейно-оптических преобразований.

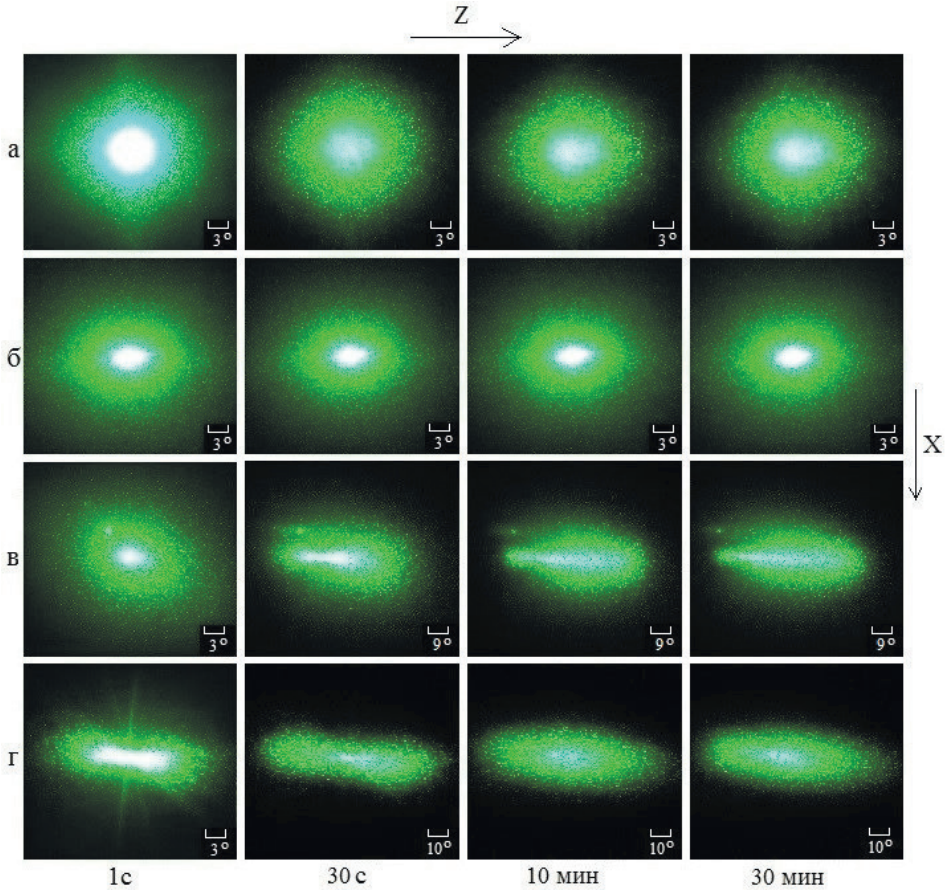


Рисунок 9.6 – Картины ФИРС кристаллов: а) LiNbO_3 ; б) LiNbO_3 (4,5 вес. % K_2O); в) LiNbO_3 (6 вес. % K_2O); г) LiNbO_3 . $\lambda_0 = 532$ нм. $P = 160$ мВт

Предпринимались попытки получения стехиометрических монокристаллов ниобата лития с пониженным фоторефрактивным эффектом путем выращивания из расплава конгруэнтного состава в присутствии флюса K_2O [37, 287, 351]. Этот метод позволяет получать кристаллы, близкие к стехиометрическому составу, при этом их дефектность катионной подрешетки ниже, чем в кристаллах конгруэнтного состава, поскольку количество структурных дефектов, связанных с избытком ионов ниобия (Nb_{Li}) в структуре стехиометрического кристалла мало. В литературе практически

отсутствуют подробные исследования оптических кристаллов ниобата лития, выращенных таким способом.

Из рис. 9.6 видно, что для кристаллов LiNbO_3 и LiNbO_3 (4,5 вес. % K_2O) даже после облучения в течение 30 минут лазерным излучением мощностью 160 мВт, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах, рис. 9.6 а, б. Необходимо отметить, что центральный слой спекл-структуры картины ФИРС кристалла LiNbO_3 , рис. 9.6 а, соответствующий сечению лазерного луча, практически полностью пропадает в течение первых 30 секунд после начала облучения кристалла, затем снова появляется. Это указывает на то, что энергия луча диссипирует на дефектах в объеме кристалла.

В то же время картины ФИРС кристаллов LiNbO_3 (6 вес. % K_2O) и LiNbO_3 значительно изменяются в течение времени, рис. 9.6 в, г. Индикатриса ФИРС из округлой формы со временем трансформируется сначала в овальную («кометообразную») форму, а затем приобретает вид асимметричной «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла. Для этих кристаллов со временем характерно также постепенное «перетекание» интенсивности разных слоев картины ФИРС в направлении полярной оси кристалла, рис. 9.6 в, г. Для кристалла LiNbO_3 индикатриса ФИРС раскрывается в первые секунды облучения, рис. 9.6 г. Угол раскрытия ФИРС составляет 46° и 56° для кристаллов LiNbO_3 (6 вес. % K_2O) и LiNbO_3 , соответственно.

Наличие ФИРС свидетельствует о наличии фоторефрактивного эффекта в монокристаллах ниобата лития стехиометрического состава. При этом обнаруженные различия в ФИРС в монокристаллах LiNbO_3 и LiNbO_3 (6 вес. % K_2O) могут быть обусловлены разными особенностями расположения в структуре и разной концентрацией дефектов с локализованными на них электронами, определяющих величину фоторефрактивного эффекта. Важную роль при этом могут играть также различия в значении величины $R = \text{Li}/\text{Nb}$, определяющей как тонкие особенности упорядочения структурных единиц катионной подрешетки кристалла, так и состояние ее дефектности, существенно влияющей на сегнетоэлектрические свойства ниобата лития [5]. Таким образом, как показывают наши исследования, стехиометрический монокристалл, выращенный из расплава конгруэнтного состава в присутствии флюса K_2O , является менее фоторефрактивным материалом по сравнению со стехиометрическим монокристаллом, выращенным из расплава с 58,6 мол. % Li_2O .

Обнаруженные различия фоторефрактивных свойств монокристаллов LiNbO_3 и LiNbO_3 (6 вес. % K_2O) можно объяснить следующим. Как известно, фоторефрактивный эффект обусловлен захватом на глубоких ловушках в запрещенной зоне фотоэлектронов, дрейфующих в поле, возникающем при освещении кристалла вследствие проявления фотовольтаического эффекта в нецентросимметричной среде [271, 285, 286]. Поскольку в обоих случаях при выращивании монокристаллов LiNbO_3 и LiNbO_3 (6 вес. % K_2O) использованы исходные компоненты одинаковой квалификации (осч), кристаллы имеют весьма близкий состав малых количеств неконтролируемых примесей и соответственно, имеют сравнимое количество глубоких ловушек в запрещенной зоне, связанных с примес-

ными дефектами. С другой стороны, в кристаллах могут образовываться мелкие электронные ловушки электронов вблизи дна зоны проводимости, («уровни прилипания») с энергетическими уровнями около 2,34 эВ, что соответствует энергии света на длине волны 532 нм, которые могут заметно повышать фоторефрактивный эффект за счет повышения эффективности излучательной рекомбинации фотовозбужденных носителей без их захвата на глубокие уровни [22, 286]. Эффективность такой рекомбинации в значительной степени определяет интенсивность люминесценции в таких кристаллах [22]. Монокристаллы, обладающие меньшей дефектностью, обладают максимальной интенсивностью люминесценции и повышенной стойкостью к оптическому повреждению.

Полученные результаты показывают, что между упорядочением структурных единиц и дефектов вдоль полярной оси кристалла и состоянием его электронной подсистемы наблюдается существенная связь, требующая дальнейшего исследования. Исследование природы возникновения в реальных кристаллах таких дефектов, определяющих фоторефрактивные свойства материалов, является важной научной задачей.

Таким образом, результат освещения кристалла ниобата лития лазерным излучением определяется двумя конкурирующими процессами. С одной стороны, при увеличении степени структурного совершенства в кристалле уменьшается количество заряженных дефектов и связанных с ними глубоких уровней захвата в запрещенной зоне, с другой стороны, при уменьшении количества мелких электронных ловушек, уменьшается вероятность излучательной рекомбинации фотовозбужденных носителей, и основная часть фотоэлектронов захватывается глубокими ловушками. Следовательно, больше становятся некомпенсированные внутренние электрические поля, влияющие на показатель преломления и определяющие фоторефрактивные свойства монокристалла. Образование таких электронных состояний («уровней прилипания» [286]), во многом определяющих величину эффекта фоторефракции, по-видимому, обуславливается тонкими особенностями упорядочения структурных единиц и дефектов катионной подрешетки кристалла вдоль полярной оси кристалла, которые, в свою очередь, зависят от величины R [21, 22, 352]. Следовательно, тонкие различия в упорядочении структурных единиц и дефектов в монокристаллах $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ и LiNbO_3 (6 вес. % K_2O) определяют большую вероятность излучательной рекомбинации фотоэлектронов для $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$.

Скорость раскрытия индикатрисы ФИРС зависит от мощности излучения накачки. На рис. 9.7 приведены зависимости угла раскрытия индикатрисы ФИРС от времени при мощностях накачки 35 и 160 мВт (диаметр луча 1,8 мм) [346].

Из рис. 9.7 видно, что скорость раскрытия индикатрисы ФИРС явно зависит от мощности возбуждающего излучения. Причем раскрытие индикатрисы происходит приблизительно в течение минуты с начала облучения. Но, затем наблюдается плавное её уменьшение со временем, что, на наш взгляд, обусловлено нагревом кристалла лазерным излучением и уменьшением вследствие этого фоторефрактивного эффекта.

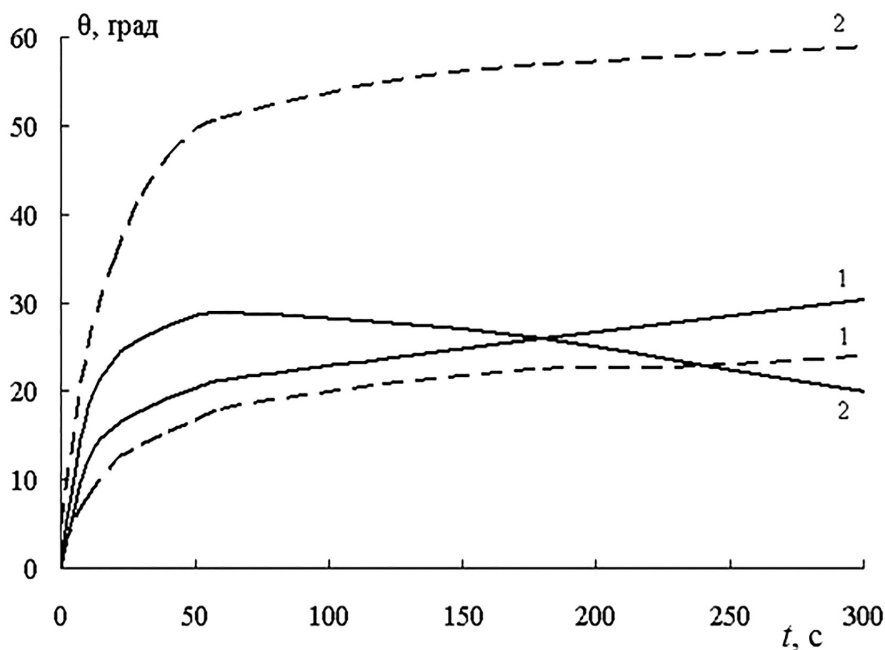


Рисунок 9.7 – Зависимость угла Фирса в монокристаллах $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ (сплошные линии) и $\text{LiNbO}_3(6 \text{ вес. \% K}_2\text{O})$ (пунктирные линии) от времени при возбуждении излучением лазера Nd:YAG (MLL-100) ($\lambda_0 = 532 \text{ нм}$) мощностью 35 мВт (1) и 160 мВт (2) [346]

Исследование оптической однородности кристаллов методом лазерной коноскопии показало достаточно высокое оптическое качество кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ и $\text{LiNbO}_3(4,5 \text{ вес. \% K}_2\text{O})$, см. главу 7. Кристалл $\text{LiNbO}_3(6 \text{ вес. \% K}_2\text{O})$ является более оптически однородным, чем $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$. При исследовании структурных особенностей кристаллов по спектрам КРС обнаружена более высокая степень структурного разупорядочения катонной подрешетки и более сильная деформация кислородного каркаса кристаллов $\text{LiNbO}_3(4,5 \text{ вес. \% K}_2\text{O})$ и $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$. Исследование ширин линий в спектрах КРС свидетельствует о таком же высоком упорядочении катионной подрешетки кристалла $\text{LiNbO}_3(6 \text{ вес. \% K}_2\text{O})$, как и $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ [353]. Значительное Фирс в кристалле $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$, выращенном с 58,6 мол. % Li_2O может быть связано со спецификой процесса выращивания данных кристаллов [306, 354]. При таком способе выращивания монокристаллы обладают значительной неоднородностью состава вдоль оси роста. Необыкновенный показатель преломления более подвержен изменению в стехиометрическом кристалле, чем обыкновенный. Возможно предположить, что необыкновенный показатель преломления зависит от концентрации вакансий ионов лития; уменьшение концентрации вакансий при добавлении избытка Li_2O в расплаве уменьшает величину n_e и соответственно увеличивает двупреломление ($n_o - n_e$) [5].

Для монокристаллов ниобата лития состава, близкого к стехиометрическому, выращенных из конгруэнтного расплава с добавлением K_2O и отличающихся более высокой однородностью показателя преломления вдоль оси роста, периодическая структура лазерного луча, обнаруженная для $LiNbO_3$ _{стех}, рис. 9.4, отсутствует. Необходимо также отметить, что способ выращивания монокристаллов ниобата лития из расплава с K_2O не позволяет получить кристаллы строго стехиометрического состава [343, 354, 355], а лишь кристаллы, близкие по составу к стехиометрическим.

9.2.1 Асимметрия индикатрисы фотоиндуцированного рассеяния света в номинально чистых кристаллах ниобата лития стехиометрического состава

Из рис. 9.6 видно, что при облучении лазерным излучением монокристаллов $LiNbO_3$ _{стех} и $LiNbO_3$ (6 вес. % K_2O) ФИРС наблюдается в виде асимметричной восьмерки, вытянутой в направлении полярной оси кристалла. Асимметрия индикатрисы рассеяния наблюдается уже внутри монокристалла кристалле $LiNbO_3$ _{стех} (рис. 9.1). При этом со временем индикатриса рассеяния изменяется. В отрицательном направлении полярной оси кристалла интенсивность рассеянного излучения уменьшается, а в положительном направлении полярной оси кристалла увеличивается. При этом увеличивается асимметрия рассеянного излучения, вследствие частичной перекачки энергии из одного лепестка в другой. При времени облучения кристаллов 200 с индикатриса ФИРС практически достигает насыщения (рис. 9.7).

Для оценки степени асимметрии индикатрисы ФИРС можно применить параметр $\gamma = a/b$, где a – максимальный угол рассеянного излучения в положительном направлении полярной оси кристалла, b – максимальный угол рассеянного излучения в отрицательном направлении полярной оси кристалла [280]. Значения параметра γ при достижении насыщения ФИРС представлены в табл. 9.1. Параметр γ , характеризующий асимметрию индикатрисы ФИРС, практически линейно зависит от мощности излучения вплоть до 160 мВт (диаметр луча 1,8 мм) (рис. 9.8).

Судя по зависимости угла ФИРС от времени (рис. 9.7), при больших мощностях возбуждающего излучения фоторефрактивный эффект в монокристалле $LiNbO_3$ (6 вес. % K_2O) больше, чем в монокристалле $LiNbO_3$ _{стех} [346]. Параметр γ , характеризующий асимметрию индикатрисы ФИРС в кристалле $LiNbO_3$ (6 вес. % K_2O) также существенно больше, чем в кристалле, выращенном из расплава с 58,6 мол. % Li_2O (табл. 9.1). При этом асимметричность индикатрисы ФИРС практически линейно зависит от мощности излучения до 200 мВт. По мнению авторов [346], это может свидетельствовать о том, что кристалл $LiNbO_3$ (6 вес. % K_2O) характеризуется большей дефектностью, неоднородностью состава и показателя преломления вдоль полярной оси кристалла и повышенным значением, вследствие этого, спонтанной поляризации по сравнению с кристаллом $LiNbO_3$ _{стех}. Это не согласуется с нашими данными по исследованию ФИРС, рис. 9.6, лазерной коноскопии, глава 7, и спектров КРС [353] показывающими такое

же высокое упорядочение катионной подрешетки кристалла LiNbO_3 (6 вес. % K_2O), как и $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$, при этом большую оптическую однородность, чем у кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$, и меньшее ФИРС.

Таблица 9.1 – Значения параметра асимметрии g индикатрисы ФИРС при разных мощностях возбуждающего излучения для кристаллов ниобата лития $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ и LiNbO_3 (6 вес. % K_2O) [346]

Мощность излучения, мВт	Кристалл	
	$\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$	LiNbO_3 (6 вес. % K_2O)
35	1,64	3
65	1,80	3,2
110	2,01	3,45
160	2,17	3,7

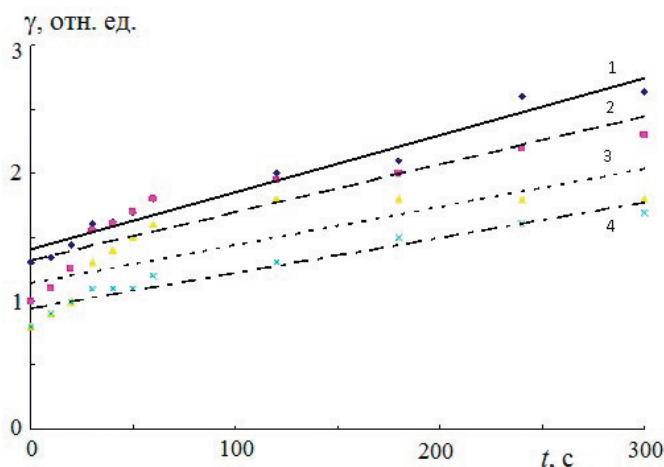


Рисунок 9.8– Зависимость параметра γ от времени для кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ при разных мощностях возбуждающего лазерного излучения $\lambda_0 = 532$ нм: 1 – 160 мВт, 2 – 110 мВт, 3 – 65 мВт, 4 – 35 мВт [346]

9.2.2 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах LiNbO_3 конгруэнтного состава, выращенных из разной шихты

На рис. 9.6 а показано, что индикатриса ФИРС кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$, полученного по стандартной технологии, не раскрывается даже после облучения в течение 30 минут лазерным излучением мощностью 160 мВт, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Для исследования влияния способа приготовления шихты и термической предыстории на фоторефрактивные свойства были выращены кристаллы: $\text{LiNbO}_{3\text{конг}} \text{ №1}$ ($Z = 5$ мм) (шихта получена из Nb_2O_5 при его экстракционном

выделении с использованием в качестве экстрагента циклогексанона (ЦГН шихта)), $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ №2 ($Z = 10$ мм) (использовалась негранулированная шихта), и $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ №3 ($Z = 10$ мм) (для приготовления шихты в качестве экстрагентов дополнительно использовались диметиламиды карбоновых кислот (ЦГН+А шихта). Кристаллы $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ №2 и $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ №3 были взяты для исследований до и после отжига в закороченном состоянии.

Из рис. 9.9-9.11 видно, что для всех исследованных кристаллов характерен фоторефрактивный отклик. Однако способ приготовления шихты оказывает значительное влияние на фоторефрактивные свойства полученных кристаллов. Наименьший угол раскрытия индикатрисы ФИРС характерен для кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ №1, выращенного из шихты с использованием в качестве экстрагента циклогексанона (ЦГН шихта), рис. 9.9. При облучении этого кристалла лазерным излучением мощностью 160 мВт в течение 10 минут наблюдается незначительная деформация центрального слоя картины ФИРС (след от падения лазерного излучения), а также второго слоя картины ФИРС (ФИРС на микроточках с измененным показателем преломления). При этом третий слой, ФИРС на микроточках (микроструктурах кристалла) с флуктуирующим показателем преломления, практически не изменяется даже в течение достаточно долгого времени облучения кристалла, рис. 9.9.

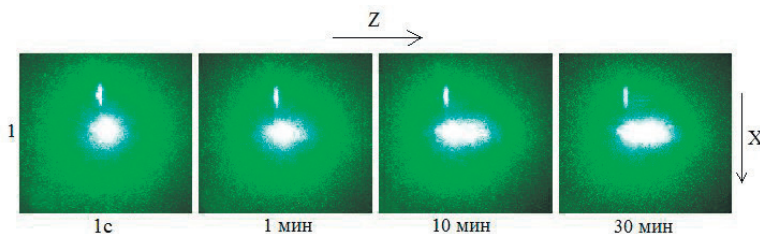


Рисунок 9.9 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ №1 ($Z = 5$ мм). $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

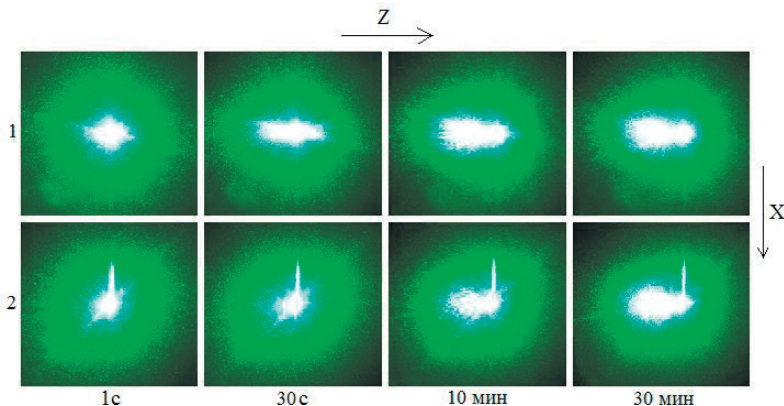


Рисунок 9.10 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ №2 ($Z = 10$ мм), до (1) и после (2) отжига в закороченном состоянии. $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

Такой же угол раскрытия индикатрисы ФИРС ($\sim 10^\circ$) характерен и для кристалла LiNbO_3 №2, выращенного из негранулированной шихты, рис. 9.10, однако в отличие от кристалла LiNbO_3 №1, рис. 9.9, на картине ФИРС кристалла LiNbO_3 №2 наблюдается незначительная деформация также третьего слоя, отвечающего фотоиндуцированному рассеянию света на микроструктурах кристалла с флуктуирующим показателем преломления, рис. 9.10 (1). Возможно большее ФИРС кристалла LiNbO_3 №2 связано с большей толщиной кристалла ($Z = 10$ мм), по сравнению с кристаллом LiNbO_3 №1 ($Z = 5$ мм). После отжига в закороченном состоянии кристалла LiNbO_3 №2 на картине ФИРС практически не наблюдается деформации третьего слоя, рис. 9.10 (2).

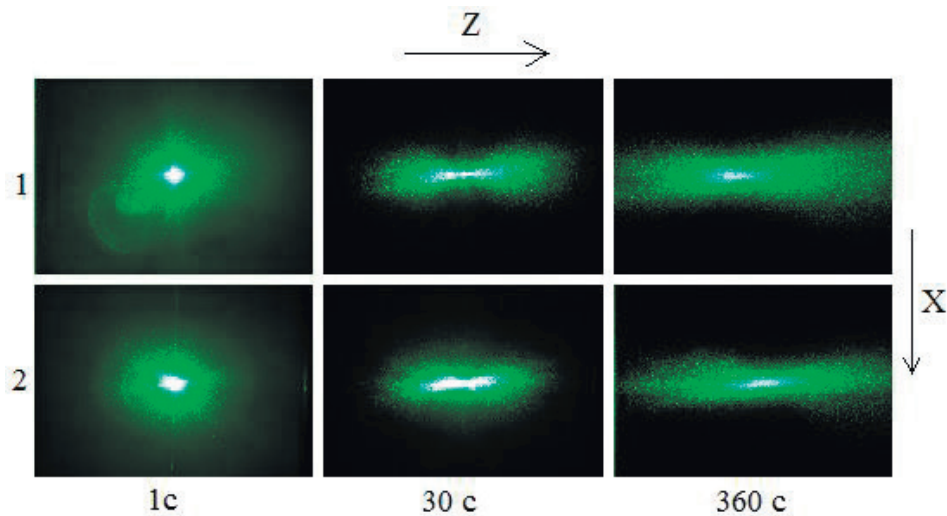


Рисунок 9.11 – Картины ФИРС кристаллов LiNbO_3 №3 ($Z = 10$ мм), до (1) и после отжига в закороченном состоянии (2). $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

На рис. 9.11 представлены картины ФИРС кристалла LiNbO_3 №3, выращенного из шихты с использованием в качестве экстрагента циклогексанона и диметиламидов карбоновых кислот (ЦГН+А шихта), до и после отжига в закороченном состоянии. Из рис. 9.11 видно, что уже в первые 30 секунд облучения кристалла лазерным излучением происходит раскрытие индикатрисы ФИРС, причем угол раскрытия для кристалла LiNbO_3 №3 до отжига в закороченном состоянии, рис. 9.11 (1), и для LiNbO_3 №3 после отжига, рис. 9.11 (2), равен $\sim 30^\circ$ и $\sim 25^\circ$, соответственно, а после 6 минут облучения угол раскрытия индикатрисы ФИРС достигает $\sim 65^\circ$ и $\sim 60^\circ$, соответственно.

9.3 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$

Временные зависимости картин ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,03÷4,5 мол. %), полученные при мощности возбуждающего лазерного излучения ($\lambda_0 = 532$ нм) в 160 мВт, представлены на рис. 9.12. Зависимости от времени угла раскры-

тия θ и параметра асимметрии γ индикатрисы ФИРС в кристаллах, для которых характерно раскрытие индикатрисы ФИРС, представлены на рис. 9.13.

Из рис. 9.12 видно, что динамика изменения картины ФИРС во времени для исследованных кристаллов существенно различается. Так, для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,05 мол. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (4,5 мол. %) вид картины рассеяния практически не изменяется во времени, рис. 9.12 (2), (6). При этом для этих кристаллов даже при мощности излучения 160 мВт фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Картина рассеяния сохраняет форму близкую к кругу на протяжении всего эксперимента. Такое временное поведение картин ФИРС свидетельствует о низком значении эффекта фоторефракции в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,05 мол. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (4,5 мол. %). В то же время картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,05 мол. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (4,5 мол. %) значительно отличаются друг от друга. Для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (4,5 мол. %) характерен гораздо больший размер центрального слоя, соответствующего сечению лазерного луча. Вся картина рассеяния указывает на большую рассеивающую способность кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (4,5 мол. %) по сравнению с кристаллом $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,05 мол. %), рис. 9,12 (2), (6), что указывает на его существенно более высокую дефектность.

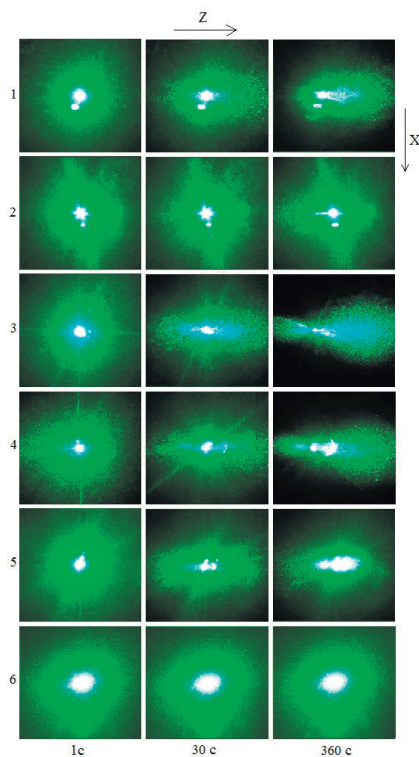


Рисунок 9.12 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: 1). 0,03; 2). 0,05; 3). 0,94; 4). 1,12; 5). 1,59; 6). 4,5 мол. %. $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

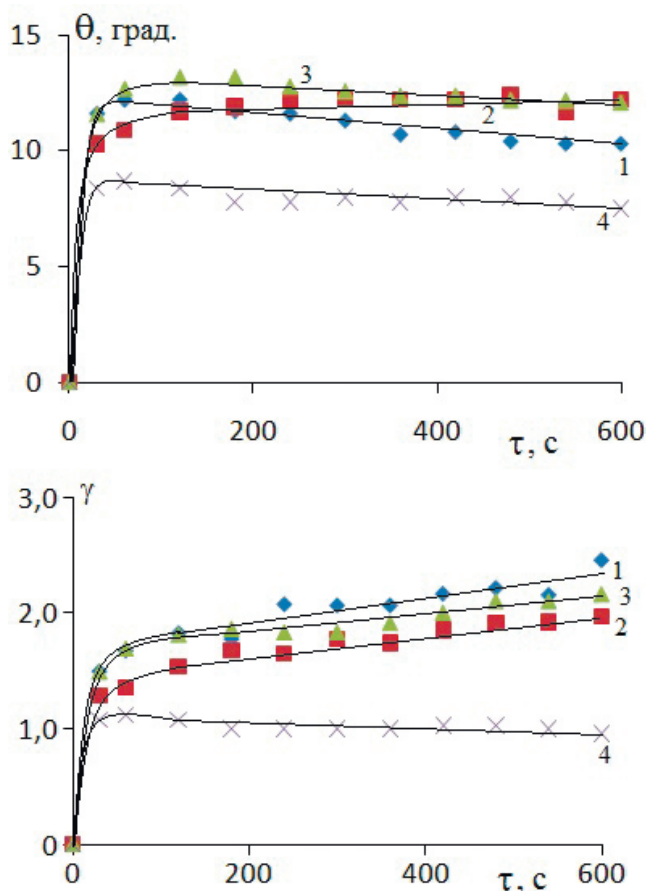


Рисунок 9.13 – Временные зависимости угла рассеяния ФИРС (θ) и параметра асимметрии (γ) кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: 1). 0,03; 2). 0,94; 3). 1,12; 4). 1,59 мол. %. $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

Для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,03), $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,94), $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (1,12), $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (1,59 мол. %) наблюдалась трехслойная спекл-структура картины ФИРС, существенно изменяющаяся с течением времени, рис. 9.12 (1), (3)–(5). При этом индикатриса ФИРС из округлой формы (первые секунды возбуждения ФИРС) со временем трансформируется сначала в овальную («кометообразную») форму, а затем приобретает вид асимметричной «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла. Со временем в положительном направлении полярной оси развивается больший «лепесток» восьмерки, а в отрицательном – меньший. Для этих кристаллов со временем характерно также постепенное «перетекание» интенсивности разных слоев картины ФИРС в направлении полярной оси кристалла. Необходимо отметить и то, что для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,94) и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (1,12 мол. %) наблюдается явно выраженное деление центрального пятна на две полови-

ны, рис. 9.12 (3), (4), что обусловлено, на наш взгляд, двулучепреломлением, поскольку в данном случае лазерное излучение, возбуждающее ФИРС, распространяется перпендикулярно полярной оси кристалла.

Индикатриса ФИРС в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (0,03), $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (0,94), $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (1,12), $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (1,59 мол. %) при мощности лазерного излучения в 160 мВт раскрывается в первые 30 секунд облучения, рис. 9.13. Со временем происходит незначительное уменьшение угла рассеяния из-за уменьшения эффекта фоторефракции вследствие нагрева кристалла излучением, рис. 9.13. При этом параметр асимметрии γ для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (0,03), $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (0,94), $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (1,12) со временем увеличивается, а для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (1,59 мол. %), наоборот, незначительно уменьшается, рис. 9.13. Асимметрия индикатрисы ФИРС обусловлена перераспределением энергии между обыкновенным и необыкновенным лучами [279]. Лазерный луч, испытывая двулучепреломление при распространении перпендикулярно полярной оси, разделяется на два близко расположенных луча меньшей мощности, которые часто не создают трек, поскольку значительная часть энергии луча диссипирует на дефектах в объем кристалла.

Согласно данным [21, 89, 271-273], легирование конгруэнтного кристалла LiNbO_3 катионами Zn^{2+} при концентрациях выше пороговых должно приводить к подавлению эффекта фоторефракции не менее чем на два порядка, вследствие практически полного вытеснения катионами Zn^{2+} антиструктурных дефектов Nb_{Li} , являющихся наиболее глубокими ловушками электронов. При концентрации Zn^{2+} в 5,2 мол. % в кристалле LiNbO_3 практически нет дефектов Nb_{Li} [21, 272, 273]. Таким образом можно объяснить наблюдаемое нами значительное уменьшение эффекта фоторефракции в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (4,5 мол. %). Однако в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (0,05 мол. %), где концентрация дефектов Nb_{Li} велика (в чистом конгруэнтном кристалле $\approx 6\%$ [21]) снижение фоторефрактивного эффекта, рис. 9.12 (2), обусловлено несколько другими причинами.

Этому может быть дано следующее объяснение. Согласно данным [21, 89, 356], при малых концентрациях катионы Zn^{2+} вытесняют не только антиструктурные дефекты Nb_{Li} и V_{Li} (вакансии в положении лития), но и одновременно катионы Li^+ , находящиеся в собственных положениях, и заполняют вакантные октаэдры. При этом при замещении дефекта Nb_{Li} три литиевые вакансии исчезают, а при замещении дефекта V_{Li} или катиона Li^+ в собственном положении, наоборот, одна вакансия появляется. Таким образом, малые количества катионов Zn^{2+} , вытесняя дефекты Nb_{Li} и V_{Li} , упорядочивают чередование основных, примесных катионов и вакансий вдоль полярной оси и уменьшают, кроме того, дефектность кристалла по отношению к вакансиям Li^+ . Поскольку электроны в структуре локализуются на дефектах, то уменьшение дефектности кристалла неизбежно уменьшит эффект фоторефракции. Между упорядочением структурных единиц и состоянием электронной подсистемы кристалла наблюдается прямая существующая связь [357]. При определенных малых концентрациях нефоторефрактивные примеси в LiNbO_3 могут образовывать существенное количество мелких электронных ловушек вблизи дна зоны проводимости («уровней прилипания»). Так, в работе [286] показано, что нефоторефрактивные при-

меси в LiNbO_3 могут образовывать мелкие электронные ловушки, как, например, при легировании магнием «комплекс Mg^+ », который представляет собой ион Mg^+ на месте Li^+ с делокализованным на ряде окружающих ионов электроном [316]. При этом заметно снижается фоторефрактивный эффект за счет повышения эффективности излучательной рекомбинации фотовозбужденных носителей без их захвата на глубокие уровни (типа Nb_{Li} или Fe^{3+}). То есть, при освещении кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,05 мол. %) лазерным излучением имеют место два конкурирующих процесса. С одной стороны, при значительном количестве глубоких уровней захвата в запрещенной зоне – антиструктурных дефектов Nb_{Li} образуются некомпенсированные внутренние электрические поля, влияющие на показатель преломления и определяющие фоторефрактивные свойства кристалла. С другой стороны, при увеличении степени структурного совершенства в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,05 мол. %), существенно возрастает количество мелких электронных ловушек («уровней прилипания») и соответственно сильно повышается вероятность излучательной рекомбинации фотовозбужденных носителей без их захвата имеющимися глубокими ловушками. Этим и объясняется существенное ослабление эффекта фоторефракции в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,05 мол. %) даже при наличии значительного количества глубоких уровней захвата – антиструктурных дефектов Nb_{Li} .

Увеличение упорядочения структурных единиц катионной подрешетки кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Me}$ при малых концентрациях катионов $\text{Me} = \text{Mg}^{2+}, \text{Zn}^{2+}, \text{Gd}^{3+}$ др. подтверждается данными спектроскопии КРС [21, 356]. При этом ширины линий, отвечающих колебаниям катионов Nb^{5+} и Li^+ $A_1(\text{TO}, \text{LO})$ типа симметрии (вдоль полярной оси) уменьшаются [21]. Для кристаллов, легированных Zn^{2+} , концентрационная зависимость ширин большинства линий обнаруживает явно выраженный минимум в области концентраций Zn^{2+} $0,05 \div 0,94$ мол. %, свидетельствующий об упорядочении структурных единиц катионной подрешетки [358]. При этом наблюдается корреляция в концентрационных зависимостях величин угла раскрытия (θ) индикатрисы ФИРС, ширин (S) и относительных интенсивностей ($I_{\text{отн.}}$) линий с частотами 268 и 596 см^{-1} в спектре КРС. В [358] нами было показано, что θ и S линии с частотой 268 см^{-1} минимальны, а S линии с частотой 596 см^{-1} и $I_{\text{отн.}}$ линий с частотами 268 и 596 см^{-1} , наоборот, максимальны для концентраций Zn^{2+} в 0,05 мол. %.

Такое поведение ширины и интенсивностей линий, отвечающих внутренним колебаниям кислородных октаэдров O_6 $E(\text{TO})$ типа симметрии и колебаниям катионов Nb^{5+} и Li^+ в октадрах O_6 указывает на связь между порядком расположения катионов вдоль полярной оси, деформацией октаэдров, изменением их поляризуемости, дефектов с локализованными на них электронами и величиной эффекта фоторефракции. При изменении содержания Zn^{2+} в структуре кристалла происходит анизотропная деформация и изменение поляризуемости кислородных октаэдров. Деформации октаэдров способствует и тот факт, что ионный радиус Zn^{2+} больше, чем ионные радиусы Li^+ и Nb^{5+} . Анизотропное расширение кислородных октаэдров при легировании подтверждают также несинхронное увеличение параметров a и с элементарной ячейки при увеличении содержания Zn^{2+} [21, 90] и увеличение ширины линии с частотой 876 см^{-1} (соответствующей валентным мостиковым колеба-

ниям атомов кислорода в октаэдрах O_6) [358], чувствительной к кластеризации катионов [21].

На анизотропную деформацию кислородных октаэдров O_6 при увеличении концентрации Zn^{2+} в кристалле указывает то, что на концентрационной зависимости коэффициента линейного электрооптического эффекта в кристаллах $LiNbO_3:Zn$ имеется минимум при концентрации $Zn \sim 3\%$. Согласно [89, 272], именно такая концентрация Zn^{2+} соответствует существенному замещению дефектов Nb_{Li} и минимуму концентрации литиевых вакансий. Кроме того, необходимо учитывать также наличие в исследуемых кристаллах неконтролируемых «фоторефрактивных» примесей [358], оказывающих существенное влияние на эффект фоторефракции. Так, ионы Fe^{3+} в конгруэнтном кристалле $LiNbO_3$ входят в литиевые позиции [21]. При внедрении в структуру кристалла ионов Zn^{2+} , которые при малых концентрациях замещают не только дефекты Nb_{Li} и V_{Li} , но и одновременно катионы Li^+ в собственных положениях [21, 272], непременно будет происходить изменение локализации части ионов Fe и изменение типа ловушки, что также окажет влияние на величину эффекта фоторефракции [21].

Необходимо отметить и то, что край оптического пропускания кристалла $LiNbO_3:Zn$ (4,5 мол. %) характеризуется наиболее крутым подъемом и существенным сдвигом в коротковолновую область по сравнению с другими кристаллами [358]. Это связано с существенным уменьшением (вблизи порога) количества дефектов Nb_{Li} и, соответственно, с малой вероятностью изменения зарядового состояния дефектов Nb_{Li} (появления катионов Nb^{4+}) и образования локальных нарушений в кислородной подрешетке кристалла, приводящих к образованию заряженных центров, изменяющих характер оптического поглощения кристалла [21, 77].

Для всех остальных кристаллов $LiNbO_3:Zn$ край пропускания смещен в более длинноволновую область, при этом подъем является более плавным [358]. Наши данные хорошо совпадают с данными, полученными в работах [21, 273].

Таким образом, эффект фоторефракции немонотонно зависит от концентрации катионов Zn^{2+} в кристалле. При концентрациях Zn^{2+} 0,03; 0,94; 1,12 и 1,59 мол. % в кристалле обнаружено увеличение фоторефракции, а при концентрациях 0,05 и 4,5 мол. % – существенное уменьшение фоторефракции по сравнению с номинально чистым конгруэнтным кристаллом. При этом эффект фоторефракции снижается уже начиная с концентрации Zn^{2+} в 1,59 мол. % и практически отсутствует при концентрации Zn^{2+} в 4,5 мол. %. В области концентрациях $Zn^{2+} \sim 0,05 \div 0,94$ мол. % по спектрам КРС обнаружена область повышенного упорядочения структуры, когда в катионной подрешетке повышен порядок чередования основных, примесных катионов и вакансий вдоль полярной оси [358]. При этом на коноскопических картинах кристаллов зафиксировано появление аномальной оптической двусосности, особенно заметной при мощности лазерного излучения в 90 мВт. Однако для кристалла $LiNbO_3:Zn$ (4,5 мол. %) при мощности лазерного излучения в 90 мВт наблюдается стандартная коноскопическая картина одноосного кристалла высокого оптического качества, существенно лучшая, чем при мощности в 1 мВт, что обусловлено «залечиванием» дефектов лазерным излучением, см. главу 7. О высоком оптическом качестве кристалла $LiNbO_3:Zn$ (4,5

мол. %) свидетельствует также существенное (по сравнению с остальными исследованными кристаллами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$) смещение края оптического пропускания в коротковолновую область [358].

На рис. 9.14 представлены картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ с малым шагом по концентрации, легированных разными способами (4,46, 4,52, 4,61 мол.% – твердофазное легирование и 4,69 мол. % – гомогенное легирование), до и после отжига в закороченном состоянии. Картины ФИРС всех исследованных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ как до, так и после отжига в закороченном состоянии практически не изменяются во времени или изменяются очень незначительно. Для этих кристаллов даже при мощности возбуждающего излучения в 160 мВт фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Угол рассеяния составляет не более 10 градусов. При этом картина рассеяния сохраняет форму близкую к кругу на протяжении всего эксперимента, рис. 9.14.

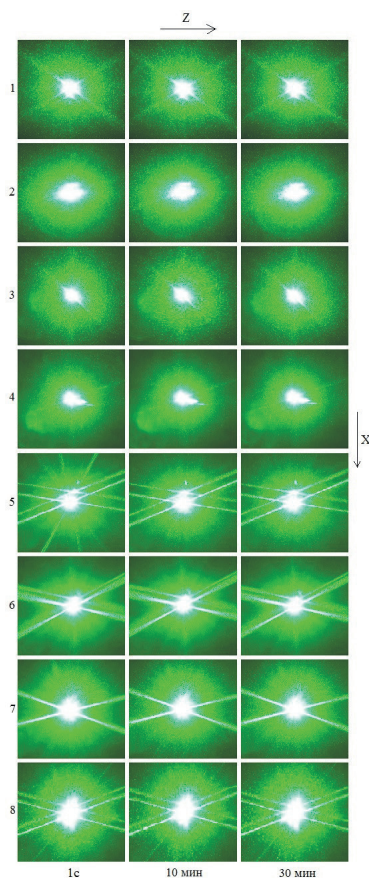


Рисунок 9.14 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$: 1, 5- 4,46; 2, 6- 4,52; 3, 7- 4,61 и 4, 8- 4,69 мол. %; 1-4 до отжига, 5-9 после отжига в закороченном состоянии. $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

В то же время картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46, 4,52, 4,61, 4,69 мол. %) значительно отличаются друг от друга. Для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 мол. %) характерен несколько больший размер центрального слоя, соответствующего сечению лазерного луча, рис. 9.14 (2). Картины рассеяния кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 и 4,69 мол. %), рис. 9.14 (2), (4) указывают на большую рассеивающую способность этих кристаллов по сравнению с кристаллами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46, 4,61 мол. %), рис. 9.14 (1), (3). Особенно сильно выражено это для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,69 мол. %), рис. 9.14 (4). Картина рассеяния для этого кристалла существенно менее контрастна, присутствует значительная размытость изображения, рис. 9.14 (4). Анализ картин рассеяния исследованных кристаллов указывает на существенно более высокую дефектность кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,52 и 4,69 мол. %) по сравнению с кристаллами $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}^{2+}$ (4,46, 4,61 мол. %).

9.4 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$

При легировании кристалла ниобата лития катионами Mg^{2+} значения концентрационных порогов составляют $\sim 3,0$ и $\sim 5,5$ мол. % MgO в расплаве [21, 359]. При этом происходит подавление фоторефрактивного эффекта за счет, в основном, снижения содержания дефектов Nb_{Li} [21]. Считается, что 3,0 мол. % MgO достаточно для полного вытеснения дефектов Nb_{Li} из структуры кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ [359]. Вхождение катионов Mg^{2+} имеет поэтапный характер – сначала полностью вытесняются основные дефекты катионной подрешетки Nb_{Li} (в области первого концентрационного порога при $\sim 3,0$ мол. % MgO в расплаве), затем происходит замещение Li^+ , расположенных в позициях идеальной (базовой) структуры (при $3 \div 5,5$ мол. % MgO в расплаве) [21, 318, 359], и при концентрации свыше 5,5 мол. % – замещение ионов Li^+ и Nb^{5+} в собственных положениях [359]. Необходимо отметить, что вхождение катионов Zn^{2+} является более плавным: оба процесса – вытеснение дефектов Nb_{Li} и замещение базовых катионов Li^+ мВт. происходят одновременно [21, 34, 89, 91, 92, 96, 97, 272, 275, 279, 317, 356, 360, 361]. При этом даже при ~ 3 мол. % ZnO в расплаве (первый концентрационный порог 3 мол. % ZnO в расплаве) в кристалле еще присутствуют дефекты Nb_{Li} [34, 96]. Вполне возможно, что этими особенностями обусловлено существенно разное расстояние между концентрационными порогами в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$.

На рис. 9.15 представлены зависимости картин ФИРС от времени облучения кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (0,19-3,01 мол. %) с малым шагом по концентрации. Из рис. 9.15 можно видеть, что с увеличением времени облучения для всех исследованных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ наблюдается лишь незначительная деформация центрального слоя картин ФИРС. Очевидно, можно сделать вывод о малом фоторефрактивном отклике данных кристаллов при облучении их лазерным излучением мощностью 160 мВт ($p \sim 6,29$ Вт/см²). При этом в целом рассеивающая способность кристаллов

$\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ увеличивается с увеличением концентрации ионов Mg^{2+} от 0,19 до 3,01 мол. %, рис. 9.15, что видимо связано с увеличением беспорядка в катионной подрешетке кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ при увеличении содержания легирующего катиона.

Как было показано для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$, в области малых концентраций легирующих добавок Me ($\text{Me} = \text{Mg}^{2+}$ и Zn^{+2} , Gd^{3+} др.) одновременно работают два тонких механизма изменения упорядочения структурных единиц катионной подрешетки, конкурирующие между собой [279, 356, 360, 361]. Один механизм (упорядочивающий) приводит к упорядочению структурных единиц катионной подрешетки вдоль полярной оси вследствие вытеснения дефектов Nb_{Li} легирующей добавкой Me . При этом уменьшается число вакансий катионов Li . Этот процесс упорядочения приводит к уменьшению ширины линий в колебательном спектре и параметра с элементарной ячейки кристалла [21, 279, 356, 360, 361]. При этом для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ было отмечено увеличение эффекта фоторефракции по сравнению с номинально чистым конгруэнтным кристаллом, рис. 9.13. Другой механизм (разупорядочивающий) ведет к нарушению порядка следования основных катионов (Li^+ , Nb^{5+}) и вакансий вдоль полярной оси собственно легирующими катионами Me вследствие попадания легирующего катиона Me в вакантные кислородные октаэдры идеальной структуры [360]. При малых концентрациях легирующих катионов Me преобладает упорядочивающий механизм. Однако с увеличением концентрации катионов Me механизм разупорядочения начинает преобладать, а ширины линий колебательного спектра и параметр с элементарной ячейки возрастают [279, 356, 360, 361].

Таким образом, для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}^{2+}$ (0,19-3,01 мол. %) не наблюдалось такого существенного различия в изменениях картин ФИРС во времени, как для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ (0,03÷4,5 мол. %). Можно также предположить, что для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}^{2+}$ (0,19-3,01 мол. %) и по спектрам КРС не будет обнаружена область повышенного упорядочения структуры, когда в катионной подрешетке повышен порядок чередования основных, примесных катионов и вакансий вдоль полярной оси [358]. Очевидно такие различия можно объяснить разным механизмом вхождения катионов Mg^{2+} и Zn^{+2} в структуру кристалла.

Ниобат лития – нестехиометрическая фаза переменного состава с широкой областью гомогенности на фазовой диаграмме [5, 21]. При интерпретации экспериментальных результатов монокристалл необходимо рассматривать как твердый раствор Me:Nb:LiNbO_3 (Me – легирующий металл), обладающий широко развитой вторичной структурой (дефектами), состояние которой существенно изменяется при изменении его состава [5, 21, 89, 271]. При изменении состава происходят изменения взаимодействий между структурными единицами кристалла, а также структурные явления «порядок–беспорядок», связанные с изменением распределения катионов по октаэдрам [21, 89, 272, 318] и образованием в кристалле микроструктур и кластеров [98, 362-364]. Причем, зависимость многих физических характеристик от состава и состояния вторичной структуры, как правило, не монотонная и характеризуется одним или несколькими экстремумами (концентрационными порогами) [21, 89, 272, 318]. Наличие пороговых кон-

концентраций легирующих элементов Zn и Mg, при переходе через которые вследствие изменения механизма вхождения легирующего катиона в структуру кардинально изменяются свойства кристалла, привлекает пристальное внимание многих исследователей [21, 34, 89, 91, 92, 96-98, 272, 275, 318, 362, 363, 365].

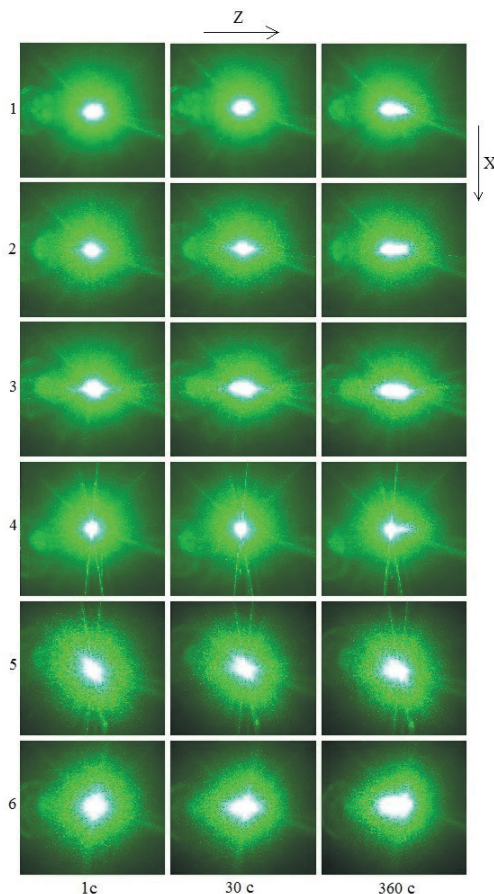


Рисунок 9.15— Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$: 1- 0,19; 2- 0,48; 3- 1,53; 4- 1,65; 5- 2,12; 6- 3,01 мол.%. $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

При изучении влияния легирования кристалла ниобата лития «нефоторефрактивными» катионами на эффект фоторефракции (optical damage) и величину коэрцитивного поля необходимо учитывать следующее: важной особенностью монокристаллов ниобата любого состава, выращенных в воздушной атмосфере, является наличие в структуре гидроксильных групп (OH^-). OH^- группы занимают места ионов кислорода в узлах кристаллической решетки [5, 362, 363]. Присутствие OH^- групп повышает проводимость, вследствие чего снижается эффект фоторефракции. Атом водорода ангармонично связан с атомом кислорода водородной связью, и особенно-

сти локализации OH^- групп в кристалле LiNbO_3 существенно зависят от состояния его вторичной структуры: от порядка чередования катионов и вакансий в катионной подрешетке, наличия кластеров, микроструктур, молекулярных комплексов, то есть от факторов, вызывающих «возмущение» и деформации кислородных октаэдров BO_6 (B – основные (Li^+ , Nb^{5+}), примесные катионы, вакансии).

Валентные и деформационные колебания OH^- групп хорошо проявляются в спектре комбинационного рассеяния света (КРС) и в инфракрасном (ИК) спектре поглощения кристалла LiNbO_3 , соответственно, в областях $1600\div 1800$ и $3450\div 3550$ см^{-1} . Причем, количество линий, соответствующих колебаниям OH^- групп, их основные параметры (частота, ширина, интенсивность) зависят от стехиометрии, особенностей легирования и выращивания монокристалла [366], т. е. от состава кристалла LiNbO_3 и условий его получения. Так, в спектре ИК-поглощения строго стехиометрического кристалла LiNbO_3 , выращенного в вакууме или в инертной атмосфере, нет линий в области валентных колебаний OH -групп [367]. При появлении в структуре кристалла LiNbO_3 протонов, которые располагаются в плоскостях кислорода на длинной $\text{O}-\text{O}$ связи (336 пм), вблизи позиции Li [368], в спектре ИК-поглощения появляется линия с частотой 3466 см^{-1} , отвечающая валентным колебаниям протонов с O^{2-} [368]. Эта полоса поглощения очень узкая (< 3 см^{-1}) [369]. При незначительном отклонении от стехиометрии в спектре ИК-поглощения кристалла LiNbO_3 кроме линии с частотой 3466 см^{-1} появляется слабая линия с частотой 3480 см^{-1} . Ее появление обусловлено наличием в катионной подрешетке нестехиометрических кристаллов дефектов Nb_{Li} (катионов Nb , находящихся в позициях катионов Li структуры) [367]. При большем отклонении от стехиометрии, в частности, в спектре ИК-поглощения конгруэнтного кристалла наблюдаются уже 3 полосы поглощения: интенсивная полоса с частотой 3466 см^{-1} , полоса средней интенсивности – 3481 см^{-1} и слабая полоса с частотой 3489 см^{-1} [368]. При этом две дополнительные полосы поглощения (с частотами 3481 и 3489 см^{-1}) обусловлены колебаниями комплекса OH_{Li}^- вблизи собственных дефектов (Nb_{Li}), находящихся в катионной подрешетке в разных позициях [368]. Таким образом, исследуя концентрационные зависимости параметров линий в колебательном спектре, соответствующих валентным колебаниям OH -групп, можно получить важную информацию о характере дефектов и их локализации в структуре, о структурных перестройках, происходящих в кристалле LiNbO_3 при изменении его состава и особенностей получения монокристалла. Такая информация представляет также интерес при обработке технологий получения оптически и структурно высокосовершенных монокристаллов LiNbO_3 .

В работах [370, 371] исследовано концентрационное влияние легирующих добавок Mg^{2+} и Zn^{2+} в широком диапазоне концентраций (0,19÷5,91 мол. % MgO) и (0,04÷4,46 мол. % ZnO) на особенности локализации OH -групп в конгруэнтном кристалле LiNbO_3 . Механизм кардинальной перестройки системы водородных связей в кристалле LiNbO_3 в области пороговой концентрации легирующей добавки магния и цинка до сих пор не ясен. Сильно легированные Mg^{2+} и Zn^{2+} оптически и структурно высокосовершенные

монокристаллы LiNbO_3 отличаются высокой стойкостью к оптическому повреждению (optical damage) и более низкими значениями коэрцитивного поля. Такие монокристаллы перспективны как оптические материалы для преобразования лазерного излучения на периодически поляризованных структурах микронных и субмикронных размеров.

С повышением концентрации Mg^{2+} до первого порога ($\approx 3,0$ мол. % MgO) общий вид спектра и основные параметры спектральных линий практически не изменяются, что свидетельствует о малом изменении в данном диапазоне концентрации Mg^{2+} положения гидроксильных групп и величин квазиупругой постоянной связей О-Н в кристалле [371]. В то же время для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ до первого порога ($\approx 2,0$ мол. % ZnO) концентрационное поведение ширин линий ИК-спектра поглощения испытывает изломы. Эти изломы возможно обусловлены тонкими особенностями процессов «порядок-беспорядок» в катионной подрешетке, возникающими при изменении концентрации легирующей добавки, влияющей на валентные колебания ОН-групп. В частности, явно выраженный минимум при $\approx 0,07$ мол. % ZnO в концентрационном поведении ширин линий в ИК-спектре поглощения кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ может быть обусловлен механизмом упорядочения структурных единиц катионной подрешетки вследствие вытеснения цинком дефектов Nb_{Li} и попадания катионов Zn^{2+} в вакантные октаэдры идеальной структуры, подробно описанном в работах [360, 361]. При этом одновременно происходит уменьшение числа вакансий катионов Li^+ . Далее при концентрации Zn^{2+} более 0,07 мол. % ZnO начинает преобладать и работать разупорядочивающий механизм [360, 361], приводящий к нарушению порядка следования основных катионов (Li^+ и Nb^{5+}) и вакансий вдоль полярной оси собственно легирующими катионами Zn^{2+} . Однако в области концентрационного порога $\approx 2,0$ мол. % ZnO вновь наблюдается уменьшение ширин линий ИК-спектра поглощения в области валентных колебаний ОН-групп [371]. Данные ИК-спектроскопии подтверждают данные КРС спектроскопии, лазерной коноскопии и ФИРС о наличии области повышенного упорядочения структуры кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ ($0,03\div 4,5$ мол. %) при малых концентрациях легирующего катиона в отличие от кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ ($0,19\text{--}3,01$ мол. %), что объясняется разным механизмом вхождения катионов Mg^{2+} и Zn^{2+} в структуру кристалла.

С увеличением концентрации Mg^{2+} выше порога ($\sim 5,0$ мол. %), Mg начинает занимать Nb-позиции, образуя отрицательно заряженный дефект решетки ($\text{Mg}_{\text{Nb}}^{3-}$), вследствие чего вблизи этого дефекта будут локализоваться протоны, образуя связи с кислородом [372, 373]. Кроме того, О-Н связи вблизи этих дефектов имеют большую энергию связи ($> 0,25$ эВ), чем О-Н связи, расположенные в других позициях структуры, не связанные с дефектами Mg_{Nb} [372]. Подавление эффекта фоторефракции в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ при содержании Mg выше порогов вероятно можно объяснить изменением локализации протонов в структуре кристалла и экранированием поля простанственного заряда. В [374] было показано, что повышенная устойчивость к оптическому повреждению в сильно легированных кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ не связана с изменением содержания примеси Mg . Фотовольтаическая составляющая эффекта фоторефракции чувствительна к степени окисления

кристалла, которая будет зависеть от содержания и локализации протонов, а также ионов переходных металлов, в частности Fe, присутствующих в кристалле LiNbO_3 в качестве неконтролируемых примесей.

На рис. 9.16. представлены временные зависимости картин ФИРС, полученные при мощности возбуждающего лазерного излучения в 2 и 160 мВт, сильно легированных (при концентрациях легирующих катионов близких к пороговым) кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,21 мол. %), выращенных из шихты различного генезиса: с использованием методов гомогенного легирования и с использованием твердофазной лигатуры. Для обоих кристаллов картина ФИРС практически не изменяется во времени. Для этих кристаллов даже при мощности возбуждающего излучения в 160 мВт фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. При этом картина рассеяния сохраняет форму на протяжении всего эксперимента, рис. 9.16. Необходимо отметить, что кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,21 мол.%), выращенный из шихты гомогенного легирования, рис. 9.16 2а, 2б, как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения проявляет несколько большую рассеивающую способность, чем кристалл $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,21 мол.%), выращенный из шихты твердофазного легирования, рис. 9.16 1а, 1б. Это подтверждается данными лазерной коноскопии, согласно которым коноскопические картины для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (гомогенное легирование) как при малой, так и при большей мощности лазерного излучения характеризуются некоторой размытостью изображения, снижением резкости и контраста, а также заметной спекл-структурой изображения, что указывает на значительно большую оптическую неоднородность исследуемого кристалла по сравнению с кристаллом $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$ (твердофазное легирование), см. главу 7.

При анализе данных спектроскопии КРС $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,1 мол. %) в сравнении с монокристаллом $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ также можно сделать вывод о разупорядочении катионной подрешетки, а также деформации кислородных октаэдров кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,1 мол. %), вызванных увеличением содержания Mg в структуре. Хотя, сильно уширенный спектр КРС кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ (5,1 мол. %) в целом сохраняет свою индивидуальность. При этом необходимо отметить появление в спектре КРС кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{MgO}$ (5,1 мол. %) дополнительных линий с частотами 209, 230, 298, 694, 880 см^{-1} , которые, возможно, соответствуют псевдоскалярным колебаниям A_2 -типа симметрии, не вызывающим изменения дипольного момента элементарной ячейки [317], отсутствующих в спектре кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$. Колебания A_2 -типа симметрии запрещены правилами отбора для пространственной группы $R3c$. Их появление в спектре возможно при существенном искажении легирующими катионами (особенно в области пороговых концентраций) локальной структуры кристалла, вследствие появления большого количества пространственных дефектов в виде микроструктур и кластеров, что приводит к локальным изменениям симметрии кристалла. Вследствие понижения в таких кластерах точечной симметрии кристаллической решетки от группы C_{3v} до C_3 псевдоскалярные колебания A_2 типа симметрии преобразуются в полносимметричные колебания $A_1(Z)$ и становятся активными в КРС.

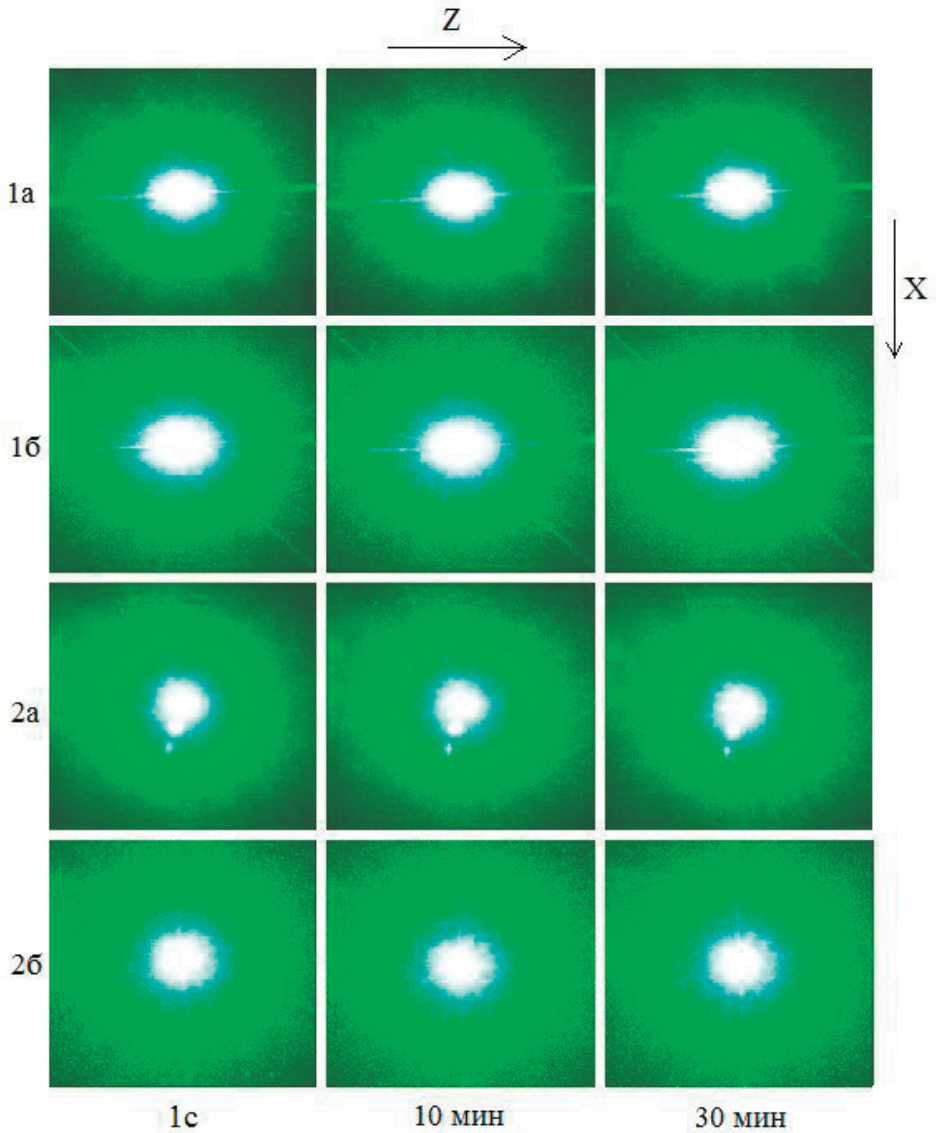


Рисунок 9.16 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}^{2+}$: 1– 5,21 мол. % твердофазное легирование, 2– гомогенное легирование. $\lambda = 532$ нм. а) $P = 2$ мВт; б) $P = 160$ мВт

В спектрах ИК-поглощения кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ наблюдается изменение интенсивностей, а также исчезновение линий из ИК-спектра, что объясняют вытеснением катионами Mg дефектов Nb_{Li} при приближении содержания Mg к пороговой концентрации ($\sim 5,0$ мол. %) [370]. При этом в спектрах КРС в области колебаний внутриоктаэдрических катионов наблюдается существенное уширение линий и сдвиг частот, отвечающих $A_1(\text{TO})$

колебаниям атомов лития и ниобия, соответственно на 11 и 6 см⁻¹, что может быть обусловлено как увеличением разупорядочения структурных единиц катионной подрешетки, так и влиянием ОН-групп через ангармоническое взаимодействие атомов кислорода с внутриоктаэдрическим катионом [317]. Уширение линий в спектре кристалла LiNbO₃:MgO (5,1 мол. %) по сравнению со спектром кристалла LiNbO₃_{конг} наблюдается также для области колебаний атомов кислорода в кислородных октаэдрах, что можно объяснить деформацией кислородных октаэдров, вызванных как увеличением содержания Mg в структуре кристалла, так и изменением локализации протонов.

9.5 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах LiNbO₃:Fe(0,009):Mg(5,04) и LiNbO₃:Fe(0,02):Zn(4,34) мол. %

Кристаллы LiNbO₃:Fe(0,009 мол. %):Mg(5,04) имели легкую красно-коричневую окраску. Временные зависимости картин ФИРС кристаллов LiNbO₃:Fe(0,009 мол. %):Mg(5,04), полученные при разной мощности возбуждающего лазерного излучения в 2 и 160 мВт, представлены на рис. 9.17. Картины ФИРС кристаллов LiNbO₃:Fe(0,009 мол. %):Mg(5,04) практически не изменяются во времени или изменяются очень незначительно. Для этих кристаллов даже при мощности возбуждающего излучения в 160 мВт фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. При этом картина рассеяния сохраняет форму близкую к кругу на протяжении всего эксперимента, рис. 9.17. Отсутствие эффекта фоторефракции говорит о том, что «фоторефрактивные» катионы Fe в данном случае не оказывают столь существенного влияния на эффект фоторефракции, как в номинально чистых кристаллах конгруэнтного состава, легированных Fe [21, 266, 271, 278]. Это может быть обусловлено заметным поглощением лазерного излучения в кристалле LiNbO₃:Fe(0,009 мол. %):Mg(5,04). Примесные катионы Fe в кристалле ниобата лития присутствуют в двух зарядовых состояниях (Fe²⁺ и Fe³⁺) и образуют в запрещенной зоне локализованные состояния, приводящие к появлению дихроичных полос поглощения, вызывающих темную окраску кристаллов [21].

В работе [375] изучены спектры оптического поглощения и пропускания монокристаллов LiNbO₃:Mg(5,21 мол. %) и LiNbO₃:Fe(0,009):Mg(5,04). На спектрах оптического поглощения и пропускания видно существенное различие оптических характеристик кристаллов LiNbO₃:Mg(5,21 мол. %) и LiNbO₃:Fe(0,009):Mg(5,04), полученных на основе прекурсоров Nb₂O₅:Mg и Nb₂O₅:Fe,Mg. Экстраполяцией прямолинейного участка спектров были определены края поглощения, соответствующие $\lambda_{\text{LiNbO}_3:\text{Mg:Fe}} = 363,3$ нм и $\lambda_{\text{LiNbO}_3:\text{Mg}} = 308,8$ нм. То есть наблюдается резкий сдвиг (на 54,5 нм) в область длинных волн края фундаментального поглощения для кристаллов LiNbO₃:Fe(0,009 мол. %):Mg(5,04), что свидетельствует об образовании значительного количества заряженных дефектов в структуре кристалла и наличии структурных неоднородностей. Спектр оптического поглощения кристалла характеризуется наличием слабо выраженных полос поглощения в диапазоне ~ 400÷600

нм. Эта спектральная область была обработана с помощью программы Origin и определены длины волн максимумов поглощения $\sim 485,2$ нм и $497,1$ нм. По данным работы [376] первый максимум соответствует внутрицентровому переходу иона Fe^{3+} ($\text{Fe}^{3+}[\text{Nb}]-\text{Li}^+[\text{I}]$), а второй – фотоионизации иона Fe^{2+} , находящегося в позиции катионов Li^+ структуры.

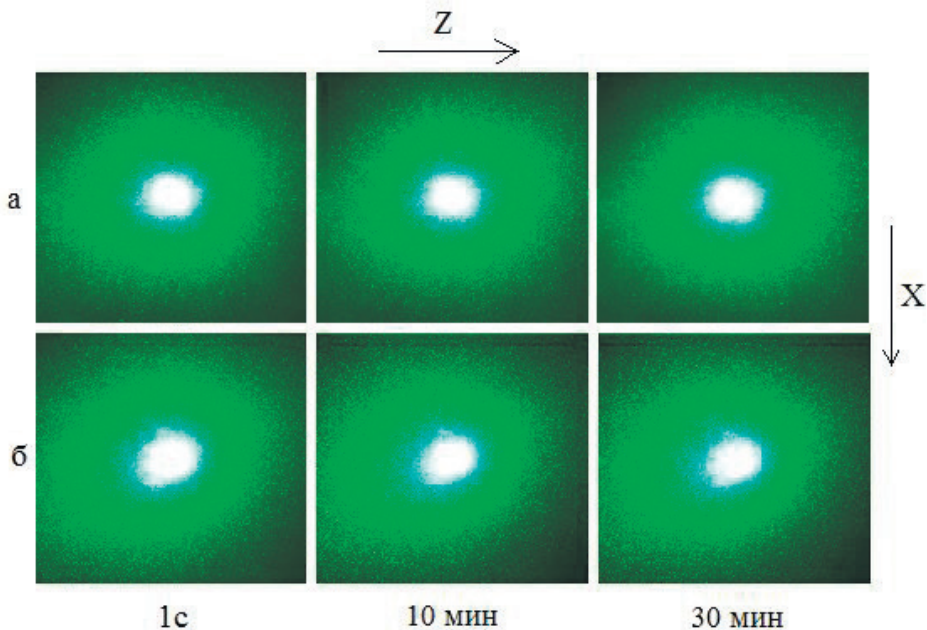


Рисунок 9.17 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол.}\%):\text{Mg}(5,04)$. $\lambda = 532$ нм. а) $P = 2$ мВт; б) $P = 160$ мВт

Вопрос о локализации легирующих катионов в структуре ниобата лития все еще является дискуссионным. В частности, в работе [316] обосновывается, что при добавлении в кристалл катионов Mg^{2+} они вытесняют катионы Nb^{5+} и Fe из литиевых позиций идеальной структуры. При этом в зависимости от концентрации примеси Fe , а также отношения Li/Nb , предполагается, что процесс замещения может протекать по одному из двух механизмов. Когда концентрация Mg^{2+} ниже пороговой, доминирующим процессом является замещение катионами Mg^{2+} катионов Nb^{5+} в литиевых позициях идеальной структуры, в то время как антиструктурный дефект Fe_{Li} остается нетронутым. Когда большинство катионов Nb^{5+} вытеснено с литиевых позиций, катионы Mg^{2+} начинают вытеснять дефекты Fe_{Li} . Железо, в свою очередь, начинает встраиваться в позиции катионов Nb^{5+} . Необходимо отметить, что корректное исследование распределения основных и примесных катионов по позициям в структуре кристалла ниобата лития является сложной задачей и требует проведения экспериментов методом полнопрофильного рентгеноструктурного анализа в сочетании с расчетами с использованием вакансионных сплит-моделей [89, 272, 377]. В случае исследован-

ного нами кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}): \text{Mg}(5,04)$, вероятно, встраивание катионов Mg^{2+} происходит по второму механизму, так как концентрация катионов Mg^{2+} в кристалле превышает пороговую (4,6 мол. %) на 0,2–0,4 мол. %. Ионный радиус железа составляет 0,8 Å, в то время как у лития и ниобия – по 0,67 Å. Поэтому вытеснение катионами Fe катионов Nb^{5+} из кислородных октаэдров должно приводить к значительному искажению всего кислородного каркаса.

В кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}:\text{Fe}$, $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}:\text{Fe}$, $\text{LiNbO}_3:\text{In}:\text{Fe}$ от концентрации нефоторефрактивных ионов (ниже или выше порога) резко зависят спектральные характеристики радиационно-индуцированного поглощения [378]. При сверхпороговых концентрациях Mg, Zn, In форма и характеристики радиационного спектра скачкообразно изменяются. Это означает, что облучение не приводит к образованию Fe^{2+} , т. е. в «сверхпороговых» кристаллах центр Fe^{3+} не является более ловушкой электронов. Этот результат согласуется с выводом о том, что в таких кристаллах Fe^{3+} локализован в Nb-позиции (по крайней мере, частично) [379–381]. Из качественных соображений очевидно, что $[\text{Fe}^{3+}_{\text{Nb}}]^{2-}$ не является электронной ловушкой. Подчеркнем, что полученный вывод об изменении ловушечных свойств Fe^{3+} имеет принципиальное значение для обсуждений транспорта заряда в нефоторефрактивных кристаллах ниобата лития [21]. Наиболее интересной с фундаментальной точки зрения является интерпретация, предложенная в [310, 382]. Авторы предположили, что индуцированная полоса поглощения и структура ЭПР обусловлены захватом межзонных электронов и дырок дефектом Nb_{Li} и прилегающим ионом O^{2-} с образованием полярона малого радиуса (ПМР), электронного $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ и дырочного O^- , соответственно. При освещении полоса поглощения и спектр ЭПР стираются. Одновременно наблюдается спадающий сигнал тока, который авторы интерпретировали как «собственный» фотовольтаический ток, обусловленный распадом дырочного ПМР. Более того, авторами высказано предположение о том, что возникновение короткоживущих собственных фотовольтаических центров является необходимым условием возникновения фотовольтаического тока и фоторефракции при комнатной температуре. К сожалению, эти работы, принципиально важные для микроскопии фотовольтаического эффекта, не нашли дальнейшего продолжения.

Наличие структурной неоднородности кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}): \text{Mg}(5,04)$ подтверждается данными лазерной коноскопии (см. главу 7). Для исследованных образцов кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}): \text{Mg}(5,04)$ при лазерном сканировании наблюдались размытые коноскопические картины с видимыми аномалиями, что может быть обусловлено наличием структурных и ростовых искажений, микро- и наноструктур, присутствующих в кристаллах, вследствие неравномерного вхождения легирующей примеси в структуру.

Методы лазерной коноскопии и ФИРС не дают информации об особенностях внутренней структуры кристаллов и дефектов, определяющих их фоторефрактивные свойства. Информативным методом исследования тонких особенностей кристаллической структуры, состояния ее дефектности и изменений в структуре, вызванных легированием и эффектом фоторефракции, является спектроскопия КРС. Спектры КРС обладают высокой чувствительностью к изменению взаимодействий между структурными единицами кристалла, а также к дефектам, собственным и наведенным лазерным излучением [21]. КРС – в настоящее

время пока единственный метод одновременного исследования эффекта фоторефракции и вызванных им изменений в структуре кристалла.

В спектре КРС кристалла ниобата лития эффект фоторефракции (как и ФИРС) максимально проявляется тогда, когда он индуцируется лазерным излучением, поляризованным вдоль полярной оси Z , т. е. в поляризационных геометриях рассеяния (ZX) , (ZY) , (ZZ) [21]. При этом в кристалле наблюдается перекачка энергии от возбуждающего лазерного излучения в рассеянный свет и вследствие преимущественного изменения показателя преломления вдоль оси Z происходит сильная дефокусировка лазерного луча кристаллом и раскрытие картины ФИРС [21, 278, 319]. По причине дефокусировки возбуждающего излучения, в частности, геометрия $X(ZX)Y$ (активны $E(TO)$ фононы) преобразуется в геометрию $X/Z(Z/XX)Y$ и в спектре проявляются линии, соответствующие $A_1(TO)$ фононам, которые правилами отбора запрещены в геометрии $X(ZX)Y$, но разрешены в геометрии $Z(XX)Y$ [21]. Измеряя интенсивность линий в спектре, соответствующих фононам, запрещенным в данной геометрии рассеяния, можно оценить величину фоторефрактивного эффекта. Теоретически не имеет значения, какую группу линий в спектре КРС выбрать для оценки относительной интенсивности [21]. Необходимым условием является лишь однотипный механизм перекачки энергии, в данном случае (для геометрии рассеяния $X(ZX)Y$) - $E(TO) \rightarrow A_1(TO)$ фононный переход. В спектре КРС кристалла ниобата лития наиболее удобной аналитической линией для оценки эффекта фоторефракции является линия с частотой 578 см^{-1} , соответствующая дважды вырожденным колебаниям кислородных октаэдров $E(TO)$ типа симметрии [21].

В работе [375] исследованы спектры КРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(5,21 \text{ мол. \%})$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}):\text{Mg}(5,04)$ в геометрии рассеяния $X(ZX)Y$. Согласно правилам отбора [21], в геометрии рассеяния $X(ZX)Y$ в области $500\text{--}650 \text{ см}^{-1}$ в отсутствие эффекта фоторефракции должна наблюдаться только одна линия с частотой 574 см^{-1} , $E(TO)$. Линия с частотой 628 см^{-1} , уверенно наблюдаемая в спектре кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(5,21 \text{ мол. \%})$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}):\text{Mg}(5,04)$, запрещена правилами отбора в геометрии рассеяния $X(ZX)Y$ и присутствует в этой геометрии вследствие наличия эффекта фоторефракции. При этом для оценки эффекта фоторефракции в кристалле ниобата лития, основываясь на дисперсионной зависимости частот [21], удобно использовать не абсолютную интенсивность линии, а относительную интенсивность $I_{\text{отн}}$, определяемую по формуле: $I_{\text{отн}} = I_{630}/I_{580} \cdot 100\%$. Определенные таким образом относительные интенсивности «запрещенных» линий составили: $I_{\text{отн LiNbO}_3:\text{Mg}} = 22\%$, $I_{\text{отн LiNbO}_3:\text{Mg:Fe}} = 30\%$. Таким образом, относительная интенсивность «запрещенных» линий в спектре кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}):\text{Mg}(5,04)$ больше, чем в спектре кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(5,21 \text{ мол. \%})$, что свидетельствует о большем эффекте фоторефракции. Это, на наш взгляд, связано с присутствием фоторефрактивной примеси железа. Известно, что в монокристаллах ниобата лития конгруэнтного состава железо находится в двух валентных формах Fe^{2+} и Fe^{3+} , отношение между которыми зависит от термохимической истории выращивания кристалла [21, 271]. Под действием света между Fe^{2+} и Fe^{3+} происходит обмен электронами по реакции $\text{Fe}^{3+} + h\nu \rightarrow \text{Fe}^{2+} + \text{дырка}$. В качестве доноров и акцепторов выступают освещенные и темные области соответственно [21].

Ширина «запрещенной» линии с частотой 628 см^{-1} в спектре кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}): \text{Mg}(5,04)$ значительно (на 15 см^{-1}) больше, чем в спектре кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(5,21 \text{ мол. \%})$ [375], что, видимо, связано с незначительной деформацией кислородных октаэдров, которая в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}): \text{Mg}(5,04)$ больше, чем в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(5,21 \text{ мол. \%})$. Согласно [316, 383, 384], пороговая концентрация катионов Mg^{2+} в конгруэнтном кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$, при которой он становится устойчив к оптическому повреждению, составляет 4,6 мол. %.

На рис. 9.18 представлены зависимости картин ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,02 \text{ мол. \%}): \text{Zn}(4,34)$ от времени, полученные при мощности возбуждающего лазерного излучения в 160 мВт. Как это следует из полученных нами данных по ФИРС (рис. 9.18), наличие в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,02 \text{ мол. \%}): \text{Zn}(4,34)$ «фоторефрактивных» катионов железа не приводит к существенному увеличению эффекта фоторефракции кристаллов, так же, как это наблюдалось для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,009 \text{ мол. \%}): \text{Mg}(5,04)$, рис. 9.17. Из рис. 9.18 видно также, что в кристалле $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,02 \text{ мол. \%}): \text{Zn}(4,34)$ даже при сравнительно высокой мощности лазерного излучения (160 мВт) картина ФИРС со временем не раскрывается и постоянно присутствует только незначительное круговое рассеяние, свидетельствующее о малости эффекта фоторефракции. Подавление ФИРС с сохранением фоторефрактивных свойств монокристалла является необходимым условием успешного использования кристалла в голографии.

При исследовании кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,02 \text{ мол. \%}): \text{Zn}(4,34)$ методом лазерной коноскопии было обнаружено, что коноскопические картины, полученные как при малой (1 мВт), так и при большой (90 мВт) мощности лазерного излучения, практически соответствуют стандартным коноскопическим картинам одноосного кристалла. Имеются незначительные аномалии на периферии коноскопических картин, что может быть обусловлено некоторой оптической неоднородностью кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,02 \text{ мол. \%}): \text{Zn}(4,34)$, очевидно вследствие неравномерного вхождения примесей в структуру кристалла при его выращивании.

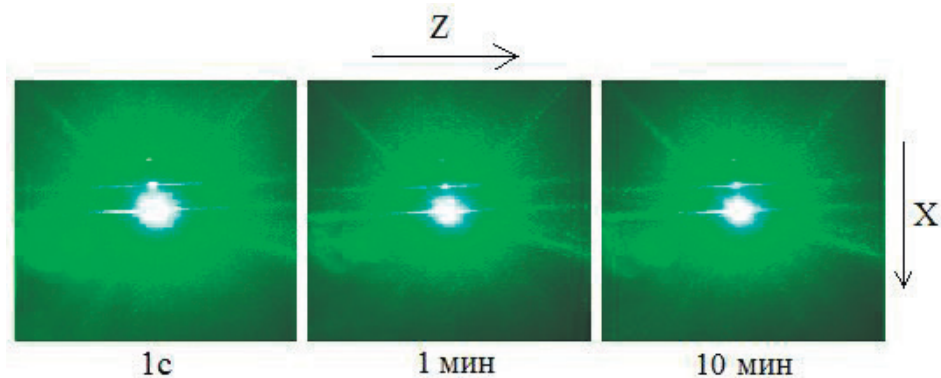


Рисунок 9.18 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,02 \text{ мол. \%}): \text{Zn}(4,34)$. $\lambda = 532 \text{ нм}$. $P = 160 \text{ мВт}$

9.6 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{B}$

Легирование конгруэнтного кристалла LiNbO_3 ($R = \text{Li}/\text{Nb} = 0,946$) «нефоторефрактивными» катионами металлов (Zn^{2+} , Mg^{2+} , Gd^{3+} и др.), которые хорошо входят в кислородные октаэдры O_6 структуры кристалла LiNbO_3 является одним из способов существенного снижения эффекта фоторефракции [5, 21]. Такое легирование приводит, прежде всего, к вытеснению легирующими катионами основных антиструктурных дефектов (Nb_{Li}) катионной подрешетки конгруэнтного кристалла LiNbO_3 – катионов Nb^{5+} , находящихся в позициях катионов Li^+ идеальной структуры стехиометрического состава ($R = 1$). В то же время легирование металлическими катионами в значительных концентрациях приводит к существенному повышению оптической и структурной неоднородности монокристалла [21, 98, 275, 363]. Неметаллические катионы практически не входят в кислородные октаэдры структуры кристалла LiNbO_3 . По этой причине исследования влияния легирования неметаллическими катионами на структуру и физические характеристики монокристаллов LiNbO_3 считались неперспективными. Однако легирующие неметаллические катионы, практически не входя в структуру кристалла (или входя в следовых количествах), могут оказывать заметное влияние на структуру расплава и его физико-химические характеристики, на условия кристаллизации расплава, а, следовательно, на характеристики и особенно вторичную структуру выращенного монокристалла [79, 385]. Информативен подход к исследованию изменений вторичной структуры кристалла, его оптической и структурной однородности с использованием комплекса методов: спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС), лазерной коноскопии и фотоиндуцированного рассеяния света (ФИРС) [97, 98, 275].

В данном разделе исследованы кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,55÷1,24 мол. % в шихте)² в зависимости от изменения концентрации бора. Результаты для кристаллов, легированных бором, сравнивались с результатами, полученными для номинально чистых стехиометрических и конгруэнтных кристаллов ($\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ и $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$, соответственно). Влияние легирования катионами B^{3+} на структуру и физические свойства кристаллов LiNbO_3 в литературе ранее почти не исследовалось, за исключением работ [25, 386, 387]. Катионы B^{3+} отличаются крайне низким коэффициентом вхождения в октаэдрические пустоты O_6 кристаллической структуры LiNbO_3 ($K_p \ll 1$). Согласно нашим предварительным данным масс-спектрометрии при содержании около 1,2 мол. % B_2O_3 в расплаве, в кристалле будет присутствовать всего лишь $\sim 4 \cdot 10^{-4}$ мол. % B_2O_3 , что соответствует концентрации многочисленных посторонних следовых катионных примесей в LiNbO_3 (Zr, Mo, Ca, Fe, Ti, Si и др.) [5, 21, 97, 275]. Однако полученные кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ отличаются высокой структурной и оптической однородностью и низким эффектом фоторефракции [25, 386]. О низком эффекте фоторефракции

² Концентрация легирующей добавки указана для шихты ниобата лития. Концентрации легирующей добавки в кристалле, в расплаве и в шихте, как правило, отличаются ввиду отличия от единицы коэффициента вхождения легирующей добавки в кристалл.

и высоком качестве монокристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ свидетельствует также двулучепреломление, явно выраженное визуально, при распространения лазерного луча перпендикулярно полярной оси Z [387]. В более разупорядоченных монокристаллах LiNbO_3 с более высоким эффектом фоторефракции двулучепреломление «замазано» эффектами разупорядочения и фоторефракцией, поэтому визуально не проявляется. Таким образом, выяснение природы высокого оптического качества монокристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ представляет несомненный интерес.

Номинально чистые конгруэнтные кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,55÷1,24 мол. % в шихте) выращивались из расплава конгруэнтного состава. Легирование при выращивании монокристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ осуществлялось путем добавления легирующей примеси в реэкстракт при получении особо чистого пентаоксида ниобия. В последнем случае борсодержащий реагент (борную кислоту) вводили непосредственно в ниобиевый реэкстракт, полученный в процессе экстракционного передела технической гидроокиси ниобия до высокочистой. Борную кислоту добавляли из расчета 0,08 - 0,15 мас. % по отношению к ниобию (в перерасчете на пентаоксид), содержащемуся в реэкстракте, и с учетом того, что часть кислоты связывала фтор в HBF_4 . Далее из реэкстракта осаждали гидрооксид ниобия, нейтрализуя его аммиачной водой до pH = 8-9. Промытую деминерализованной водой гидроокись ниобия сушили и затем прокаливали до получения пентаоксида. Из пентаоксида ниобия была синтезирована шихта ниобата лития, из которой была выращена затем серия монокристаллов. Выращивание номинально чистого кристалла LiNbO_3 стехиометрического состава осуществлялось из расплава с 58,6 мол. % Li_2O . При выращивании номинально чистых конгруэнтных кристаллов LiNbO_3 использовалась оригинальная гранулированная шихта ниобата лития, синтезированная в ИХТРЭМС КНЦ РАН, позволяющая получать абсолютно бесцветные (water white) номинально чистые монокристаллы LiNbO_3 [2]. Концентрация посторонних примесей в шихте не превышала 5×10^{-4} мас. %. Все кристаллы выращивались в воздушной атмосфере методом Чохральского на установке «Кристалл-2», снабженной системой автоматического контроля диаметра кристалла. Подробно методики приготовления шихты и выращивания монокристаллов описаны в работах [2, 4, 386].

На рис. 9.19. показана спекл-структура индикатрисы ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,55÷1,24 мол. % B_2O_3 в шихте) после облучения кристаллов лазерным излучением в течение 60 секунд. Из рис. 9.19 видно, что исследованные кристаллы отличаются по своим фоторефрактивным свойствам в зависимости от концентрации B_2O_3 в шихте.

На рис. 9.20 показаны изменения относительной интенсивности линии с частотой 630 см^{-1} $A_1(\text{TO})$ и угла θ раскрытия спекл-структуры ФИРС в зависимости от концентрации бора в шихте. Линия с частотой 630 см^{-1} , соответствующая $A_1(\text{TO})$ колебаниям атомов кислорода кислородных октаэдров O_6 , является наиболее удобной аналитической линией для оценки величины эффекта фоторефракции [21, 388]. При этом используют относительную интенсивность ($I_{\text{отн}}$), определяемую по формуле $I_{\text{отн}} = I_{630}/I_{580} \cdot 100 \%$, поскольку интенсивность линии с частотой 580 см^{-1} ($E(\text{TO})$), по крайней мере, для кристаллов с низким эффектом фоторефракции, не изменяется при изменении эффекта фоторефракции [97, 275, 388].

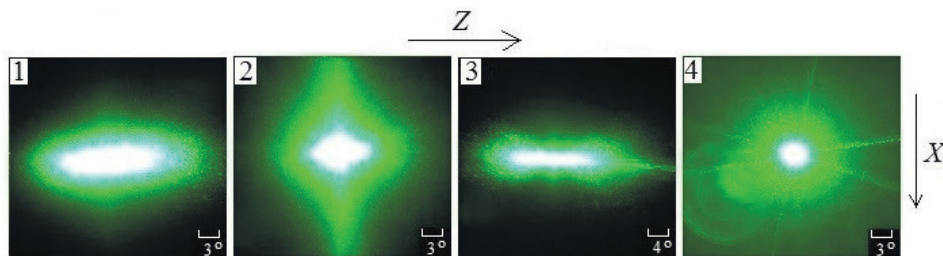


Рисунок 9.19 – Спекл-структура индикатрисы ФИРС ($P = 160$ мВт) кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,55 (1), 0,69 (2), 0,83 (3), 1,24 (4) мол.% B_2O_3 в шихте). Время полного раскрытия спекл-структуры индикатрисы ФИРС для перечисленных кристаллов – 60 секунд.

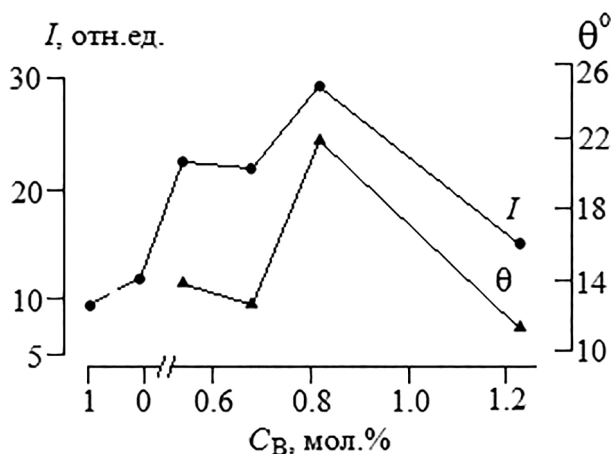


Рисунок 9.20 – Концентрационные зависимости интенсивности (I) линии с частотой 630 см^{-1} $\text{A1}(\text{TO})$ в спектре КРС и угла θ раскрытия спекл-структуры ФИРС кристаллов LiNbO_3 (конг., стех.), $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,55÷1,24 мол.% B_2O_3 в шихте)

Из рис. 9.20 видно, что наименьшее значение относительная интенсивность линии с частотой 630 см^{-1} имеет в спектре кристаллов LiNbO_3 (конг.) и LiNbO_3 (стех.), а наибольшее – $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,55÷0,83 мол. % B_2O_3 в шихте). При этом интенсивность этой линии в спектре кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ сначала возрастает с увеличением концентрации бора в шихте, а затем уменьшается, что очень хорошо коррелирует с поведением угла θ раскрытия спекл-структуры картины ФИРС, рис. 9.20.

В работах [389, 390] исследованы спектры КРС кристаллов LiNbO_3 (конг., стех.), $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,55÷1,24 мол. % в шихте), соответствующие фундаментальным колебаниям кристаллической решетки, в геометриях рассеяния $X(\text{ZX})\bar{Y}$ и $X(\text{ZZ})\bar{Y}$. Было показано, что частоты линий спектра КРС в пределах ошибок эксперимента оставались постоянными, что свидетельствует о малости влияния эффектов изменения вторичной структуры, возникающих при изменении концентрации легирующей добавки, на квазиупругие постоян-

ные решетки кристалла LiNbO_3 . Однако в поведении ширин и интенсивностей спектральных линий при изменении состава шихты для выращивания кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ изменения наблюдались во всем спектре: в области двухчастичных состояний акустических фононов ($100\text{--}150\text{ см}^{-1}$), в области колебаний катионов, находящихся в кислородных октаэдрах BO_6 (B - Nb, Li, легирующий катион) ($200\text{--}300\text{ см}^{-1}$), в области колебаний атомов кислорода кислородных октаэдров ($500\text{--}900\text{ см}^{-1}$). Полученные данные свидетельствуют о том, что даже при очень незначительном изменении концентрации бора в шихте и, соответственно, в расплаве происходит изменение порядка чередования основных, легирующих катионов и вакансий вдоль полярной оси кристалла, «возмущение» октаэдров BO_6 и изменение резонансного взаимодействия фундаментальных колебаний с двухчастичными состояниями акустических фононов.

Легирование конгруэнтного кристалла LiNbO_3 бором имеет свои необычные особенности, на которых следует остановиться подробнее. Полученные нами данные масс-спектрометрии свидетельствуют о том, что катионы B^{3+} практически не входят в структуру кристалла $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$, но, по-видимому, определенным образом структурируют расплав. При этом монокристалл, выращенный из такого структурированного расплава (по крайней мере, при сравнительно малых концентрациях бора в расплаве), согласно нашим предварительным данным, обладает более высокой оптической и структурной однородностью по сравнению номинально чистым кристаллом конгруэнтного состава [386]. Природа этого интересного и практически значимого факта находится в стадии исследования, но, по-видимому, она связана с изменением вязкости и структуры расплава ниобата лития, содержащего примесь бора, а соответственно, и механизма кристаллизации. Высокую оптическую однородность исследованных в данной работе кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($0,55\text{--}1,24\text{ мол. \% B}_2\text{O}_3$ в шихте) подтверждают коноскопические картины, полученные как при малой, так и при большой мощности лазерного излучения [389, 390]. Только для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($0,83\text{ мол. \% B}_2\text{O}_3$ в шихте) при 90 мВт на коноскопической картине наблюдаются незначительные признаки аномальной оптической двуосности, связанные, очевидно, с увеличением эффекта фоторефракции, рис. 9.19.

9.6.1 Особенности проявления двулучепреломления в кристалле ниобата лития $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($0,83\text{ мол. \% B}_2\text{O}_3$ в шихте) при фотоиндуцированном рассеянии света

Необходимо отметить и то, что для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ($0,83\text{ мол. \% B}_2\text{O}_3$ в шихте) наблюдается явно выраженное деление центрального пятна дна две половины, рис. 9.21, 9.22, что обусловлено, на наш взгляд, двулучепреломлением. В данном случае лазерное излучение, возбуждающее ФИРС, распространяется перпендикулярно полярной оси кристалла, а вектор электрического поля E луча направлен вдоль нее.

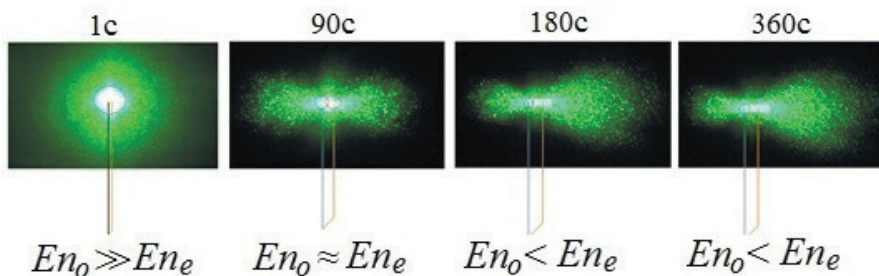


Рисунок 9.21 – Спекл структура ФИРС кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:B}$ (0,83 мол. % B_2O_3 в шихте) при различных значениях времени

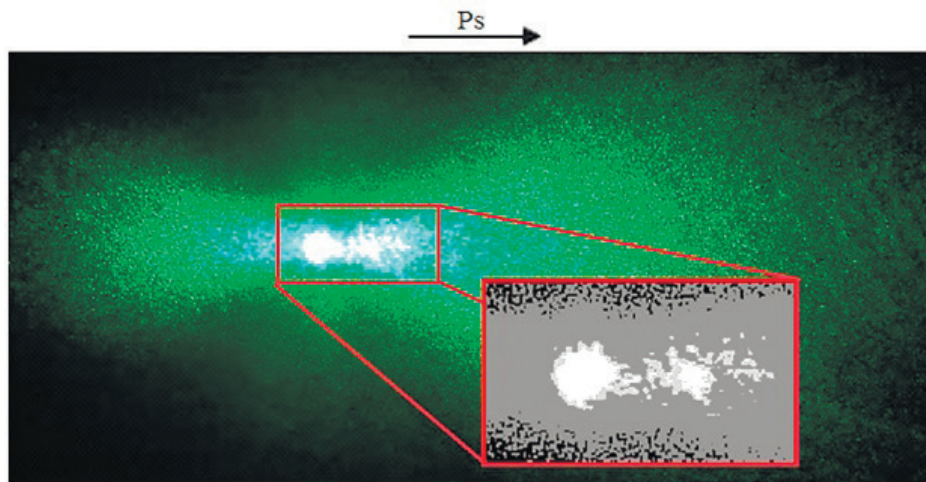


Рисунок 9.22 – Картина ФИРС кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:B}$ (0,83 мол. % B_2O_3 в шихте) после облучения кристалла в течение 360 с. Центральный слой выделен красным и переведен в черно-белую гамму для повышения контрастности. На выходной грани кристалла отчетливо видны два луча в виде двух белых пятен круглой формы

Кристалл LiNbO_3 является отрицательным одноосным кристаллом ($n_o > n_e$; n_o и n_e – соответственно показатели преломления обыкновенного и необыкновенного лучей), то есть имеет единственное направление (полярная ось Z), вдоль которого не происходит двулучепреломления. При этом оптическая и полярная оси кристаллов совпадают. Вдоль полярной оси кристалла лазерный луч распространяется с постоянной скоростью, но со временем (вследствие эффекта фоторефракции) происходит размытие его сечения в кристалле. Однако форма сечения луча и картина ФИРС при этом не изменяются и всегда представляют собой круглое пятно. Если лазерный луч направлен перпендикулярно полярной оси, то его сечение (соответственно

картина ФИРС), имеющие в начальный момент форму круга (независимо от состава кристалла), со временем приобретают форму асимметричной лемнискаты (или восьмерки), большая полуось которой направлена в положительном направлении полярной оси кристалла. Можно предположить, что такая картина ФИРС – следствие двулучепреломления и перекачки энергии из обыкновенного в необыкновенный луч. Такие процессы можно обнаружить и исследовать в кристаллах с низким эффектом фоторефракции, поскольку в них эффекты, связанные с прохождением лазерного излучения через кристалл, не «замазаны» вследствие фоторефракции и сильного ФИРС. Наиболее ярко двулучепреломление можно наблюдать, направив луч лазера так, чтобы вектор электрического поля \mathbf{E} луча лежал в плоскости полярной оси кристалла, т. е. перпендикулярно оптической оси Z , рис. 9.23.

Вследствие наличия в кристаллах LiNbO_3 собственных оптических неоднородностей: дислокаций, точечных дефектов, а также дефектов кристаллической структуры, наведенных лазерным излучением, происходит сильное рассеяние обыкновенного и необыкновенного лучей [99, 100].

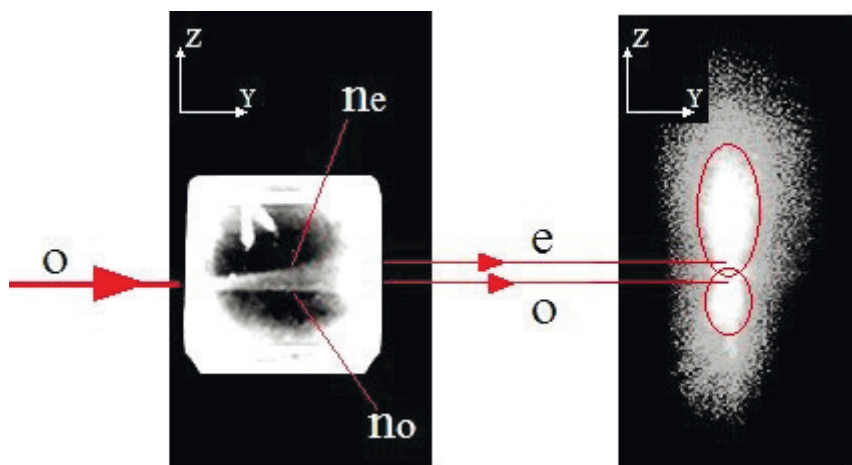


Рисунок 9.23 – Распространение лазерного луча в кристалле ниобата лития и его проекция на экран: о – обыкновенный луч, е – необыкновенный луч

Компоненты когерентного шума с волновыми векторами распространяются из таких центров рассеяния под разными углами. Именно эти шумовые волны инициируют фотоиндуцированное рассеяние. Под действием электрических полей фотовозбужденные электроны начинают двигаться вдоль оптической оси. После достижения границы освещенной области они захватываются глубокими ловушками кислородных вакансий, точечными дефектами различного рода и остаются неподвижными. Дефицит электронов на противоположной стороне освещенной области вызывает появление в этом регионе квазистационарного электрического поля \mathbf{E} , направленного вдоль оптической оси кристалла. По электрооптическому эффекту это поле изменяет показа-

тель преломления кристалла, т. е. реализуется фоторефракция [266, 384, 391]. В итоге образуется спекл-картина рассеяния, состоящая из рассеянных волн, распространяющихся под разными углами. Таким образом, параллельный ход обыкновенного и необыкновенного лучей оказывается «замазан» рассеянным излучением на фотоиндуцированных дефектах, рис. 9.24.

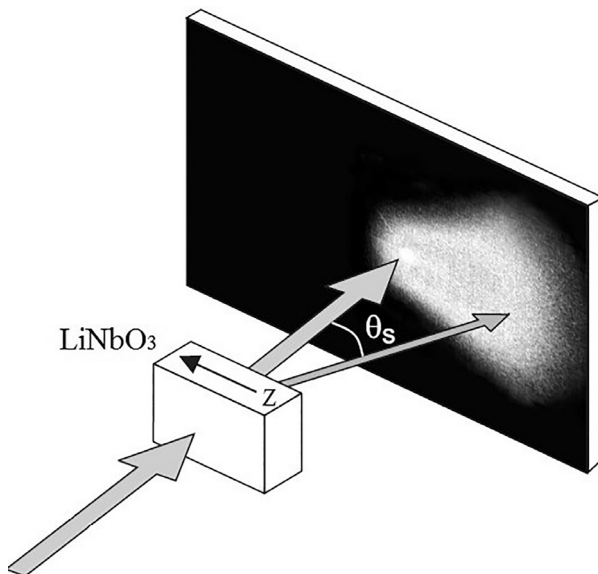


Рисунок 9.24 – Проекция рассеянного излучения на экран, после прохождения через кристалл LiNbO_3 стехиометрического состава

Судить о принципиальном наличии двулучепреломления в фоторефрактивном кристалле можно, если рассмотреть динамику «раскрытия» его спекл-структуры во времени. На рис. 9.21 такая динамика показана для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ (0,83 мол. % B_2O_3 в шихте), отличающегося высоким оптическим качеством. В первую секунду спекл-структура ФИРС представляет собой единое круглое яркое пятно, рисунок 9.21. Но спустя несколько секунд оно начинает распадаться на две половинки. Со временем картина ФИРС приобретает асимметричность и сохраняет ее в течение всего времени эксперимента. При этом спекл-структура картины ФИРС является трехслойной [269, 392]. Аналогичное поведение спекл-структуры картины ФИРС наблюдается для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ с изменением концентрации Zn [393]. Ранее в основном исследовались временные изменения второго и третьего слоев картины ФИРС при разных мощностях возбуждающего излучения. Временные изменения в центральном (первом) слое картины ФИРС, т. е. непосредственно в области прохождения лазерного луча, исследованы менее всего и только для сильно фоторефрактивных кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$. Однако для большинства исследованных нами кристаллов наблюдается сильное размытие первого слоя картины ФИРС, происходящее в первоначальный момент времени, что свидетельствует о деструкции лазерного луча в кристалле. Структура первого

слоя, очевидно, определяет основные особенности второго и третьего слоев картины ФИРС, а также особенности спектра КРС.

Причина асимметрии индикатрисы спекл-структуры ФИРС в кристалле ниобата лития долгое время оставалась невыясненной. ФИРС, в виде кругового рассеяния, можно наблюдать, если направить луч лазера вдоль полярной оси. В этом случае двулучепреломление наблюдаться не будет, а картина будет оставаться стационарной во времени. Таким образом, можно предположить, что в первые секунды картина ФИРС остается симметричной по причине того, что в кристалле практически не наблюдается двулучепреломления. Тогда как затем оно появляется и проявляет себя в явном виде.

Логичным кажется предположение, что механизм раскрытия спекл-структуры картины ФИРС определяется неравномерным распределением энергии падающего излучения между обычным и необычным лучами. Оба луча появляются сразу же после действия лазерного излучения, но из-за своей низкой интенсивности необычный луч остается невиден на фоне гораздо более яркого обычного луча. Между световыми волнами происходит интерференционное взаимодействие и со временем, по мере увеличения в фоторефрактивном кристалле количества фотоиндуцированных дефектов, падающая на кристалл энергия начинает все больше перекачиваться в необычный луч [394], что проявляется в виде асимметрии спекл-структуры. В работе [395] отмечалась принципиальная возможность световых волн формировать фоторефрактивную решетку, на которой они могли бы дифрагировать и обмениваться энергией. Решетка в данном случае образуется в результате сложения большого числа различных решеток, записываемых с участием различных пар рассеянных волн.

Таким образом, качественное раскрытие спекл-структуры вдоль полярной оси и деструкцию лазерного луча в сегнетоэлектрическом кристалле можно объяснить следующим образом. Каждый микроструктурный дефект (в том числе примесный катион в легированных кристаллах) в кристалле поляризован своим окружением, поскольку находится в микроскопическом поле спонтанной поляризации, влияющей на локальный дипольный момент дефекта. О существовании собственных электрических полей, способных изменять показатель преломления в кристаллах ниобата лития, свидетельствуют экспериментальные факты. Аномально высокие значения энергий эмитируемых электронов (более 300 эВ) [396] позволяют думать, что они освобождаются с достаточно больших расстояний от поверхности, ускоряясь в собственном электрическом поле кристалла. Структурная неоднородность кристаллов, например, «блочность», неравномерное распределение дефектов (примесей, дислокаций, кластеров и микроструктур), приводит к разориентации кристаллической решетки в отдельных кристаллических блоках, т. е. в общем случае может быть описана как разориентация кристаллографических осей отдельных микроструктур друг относительно друга. В этом случае при изменении температуры кристаллов при прохождении лазерного луча пирозэффект может создавать систему пирозарядов, суммарное поле которых в отдельных частях кристалла имеет компоненты E_x^c и E_y^c . Направление поле собственного электрического поля противоположно направлению спонтанной поляризации. Собственные электрические поля в кристаллах ниобата лития зависят от условий термообработки, легирующей примеси и составляют 180 и 85 кВ/см для чистых и легированных железом кристаллов соответственно.

Отжиг кристаллов ниобата лития в вакууме приводит к значительному (до 8 кВ/см) уменьшению собственных электрических полей [378].

При изменении спонтанной поляризации под действием лазерного излучения, пирополей, возникающих вследствие влияния внутреннего поля, созданного градиентом концентрации дрейфующих фотоэлектронов, и других факторов изменяется и дипольный момент микроструктурного дефекта. При этом происходит изменение диэлектрической проницаемости и показателя преломления локальной области кристалла. Очевидно, что чем выше концентрация заряженных микроструктурных дефектов в кристалле, чем больше разность $\Delta n = n_o - n_e$ при распространении излучения перпендикулярно полярной оси, тем сильнее энергия должна перекачиваться из обыкновенного в необыкновенный луч – тем более вытянутую форму вдоль полярной оси будут приобретать картина ФИРС. Со временем между энергиями обыкновенного и необыкновенного лучей устанавливается равновесие и в таком виде картина ФИРС может сохраняться сколь угодно долго.

С этой точки зрения можно объяснить характер развития асимметрии словес картины ФИРС (рис. 9.21), как изменение величины $\Delta n = n_o - n_e$ и отношения энергий (E) обыкновенного (n_o) и необыкновенного (n_e) лучей. Подробные исследования значений Δn в ниобате лития проводились в [21, 273, 397], в том числе и для кристаллов, исследованных в данной работе. Чтобы получить картину ФИРС в виде кометы или восьмерки необходимо, чтобы в кристалле была достаточно высокая концентрация заряженных собственных и примесных дефектов, способных изменить отношение энергий обыкновенного и необыкновенного лучей (E_n / E_e). Если $E_n \gg E_e$, то картина ФИРС представляет собой круглое пятно, рис. 9.21. Если $E_n \approx E_e$, то картина имеет вид симметричной восьмерки, рис. 9.21. При $E_n < E_e$ восьмерка является асимметричной. При этом ее больший лепесток направлен в положительном направлении полярной оси кристалла. Форма картины ФИРС в виде асимметричной восьмерки является, очевидно, конечной стадией развития спекл-структуры для фоторефрактивных кристаллов ниобата лития. Однако для реализации такой картины необходима достаточно высокая концентрация заряженных микроструктурных дефектов.

9.7 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,002-0,05 вес. %)

Временные зависимости картин ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,002-0,05 вес. %), полученные при мощности возбуждающего лазерного излучения ($\lambda_o = 532$ нм) в 160 мВт, представлены на рис. 9.25.

Из рис. 9.25 видно, что для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,002 вес. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,05) даже после облучения в течение 10 минут лазерным излучением мощностью 160 мВт, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах, рис. 9.25 а, г. Такое временное поведение картин ФИРС свидетельствует о низком значении эффекта фоторефракции в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,002 вес. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,05 вес. %).

В то же время для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,003 вес. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,005) наблюдалась трехслойная спекл-структура картины ФИРС, существенно изменяющаяся с течением времени, рис. 9.25 б, в. При этом индикатриса ФИРС из округлой формы (первые секунды возбуждения ФИРС) со временем трансформируется сначала в овальную («кометообразную») форму, а затем приобретает вид асимметричной «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла. Со временем в положительном направлении полярной оси развивается больший «лепесток» восьмерки, а в отрицательном – меньший. Для этих кристаллов со временем характерно также постепенное «перетекание» интенсивности разных слоев картины ФИРС в направлении полярной оси кристалла.

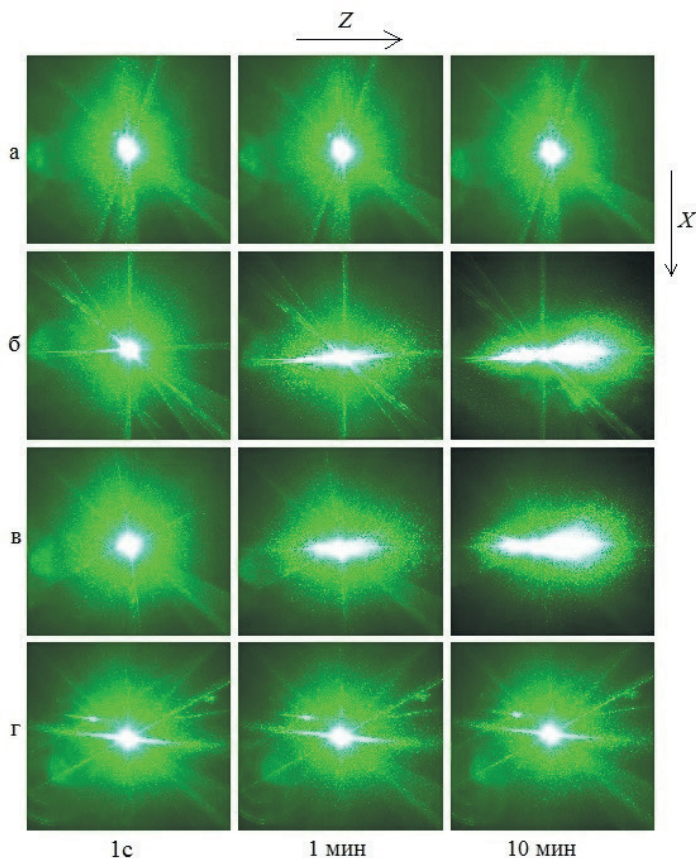


Рисунок 9.25 – Картины ФИРС кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$: а) 0,002; б) 0,003; в) 0,005; г) 0,05 вес. %. $\lambda = 532$ нм. $P = 160$ мВт

Подобное немонотонное поведение эффекта фоторефракции в зависимости от концентрации легирующего катиона наблюдалось нами ранее для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,03÷4,5 мол. %). При этом в области концентраций $\text{Zn}^{2+} \sim 0,05 \div 0,94$ мол. % по спектрам КРС обнаружена область повышенного упорядочения структуры, когда в катионной подрешетке повышен порядок

чередования основных, примесных катионов и вакансий вдоль полярной оси [358]. Данные КРС подтверждались результатами лазерной коноскопии, исследованием спектров оптического пропускания [358], а также данными рентгеноструктурного анализа [21, 90].

Очевидно для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$ (0,002-0,05 вес. %) так же, как и для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$ (0,03÷4,5 мол. %), можно ожидать, что в при концентрациях Gd (0,003-0,005 **вес. %**) существует область повышенного упорядочения структуры, когда в катионной подрешетке повышен порядок чередования основных (Li, Nb), примесных (Gd) катионов и вакансий вдоль полярной оси, а кислородные октаэдры близки к идеальным. При этом ширины линий в спектре КРС кристаллов Gd (0,003-0,005 **вес. %**) должны быть меньше, чем в спектре кристалла LiNbO_3 и приближаются к ширинам линий в спектре кристалла LiNbO_3 . Это свидетельствует о высокой степени упорядочения структурных единиц катионной подрешетки в кристалле Gd (0,003-0,005 **вес. %**) и приближении ее к степени упорядочения в кристалле стехиометрического состава. Представляют интерес дальнейшие исследования разными методами упорядочения структурных единиц в кристаллах $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}$, особенно в областях пороговых концентраций легирующего катиона. В частности, информативны комплексные исследования методами КРС и полнопрофильного рентгеноструктурного анализа в сочетании с расчетами упорядочения структурных единиц с использованием вакансионных сплит-моделей [89, 377], позволяющие определить в структуре кристалла коэффициенты заселенности катионов Li^+ , Nb^{5+} и Gd^{3+} в кислородных октаэдрах (распределение катионов по октаэдрам).

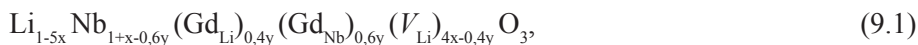
Относительно позиций примесных трехвалентных катионов редкоземельных элементов, в том числе катионов Gd^{3+} , в кислородных октаэдрах структуры ниобата лития и особенностей их упорядочения вдоль полярной оси кристалла в литературе нет однозначного мнения [21, 271]. Легирование трехвалентными катионами, по данным многих авторов, должно приводить к замещению и в литиевой и в ниобиевой подрешетках так, что образуются соседние зарядосбалансированные пары в смежных Li- и Nb-положениях [5, 21, 38, 271]. Например, в работах [398-401] показано, что 64% катионов Eu^{3+} замещают ионы Nb^{5+} , а 36% – ионы Li^+ . Логично предположить, что похожая ситуация реализуется и для редкоземельного иона – Gd^{3+} . В то же время в работе [399] отмечается, что для монокристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ конгруэнтного состава, дополнительно легированных Eu^{3+} , подавляющее большинство катионов Eu^{3+} находится в позициях катионов Li^+ .

Информацию о позиции парамагнитного иона в кристалле можно получить методом спектроскопии электронного парамагнитного резонанса (ЭПР). Согласно [402], ионы Gd^{3+} занимают в решетке ниобата лития два физически неэквивалентных положения, магниторезонансные параметры которых различаются не слишком значительно. При этом один из дефектов имеет орторомбическую симметрию, в то время как другой более низкую. Позиционная симметрия ионов Gd^{3+} должна быть тригональной, т. е. ионы Gd^{3+} лежат на оси третьего порядка, замещают ионы Li^+ и Nb^{5+} . Необходимо отметить, что положение, занимаемое Nb^{5+} , имеет более симметричное кислородное окружение по сравнению с таковым для иона Li^+ . Поэтому, физически непроти-

воречиво заключение, что ионы Gd^{3+} замещают как ионы ниобия, так и ионы Li^+ . По-видимому, размещение ионов Gd^{3+} по позициям базовых катионов количественно и качественно подобно размещению ионов Eu^{3+} [399, 401].

Для кристаллов конгруэнтного состава, отличающихся избытком ионов Nb^{5+} характерно такое разупорядочение структуры вдоль полярной оси кристалла, когда образуются два рядом стоящих иона Nb^{5+} , причем избыточный ион Nb^{5+} может находиться либо в вакантном кислородном октаэдре, либо занимать позицию иона Li^+ [21, 403]. Одновременно (для сохранения электронейтральности) на каждый избыточный ион Nb^{5+} образуются четыре вакансии Li^+ . Внедрение в структуру примесных ионов Gd^{3+} приводит к обеднению ее ионами Nb^{5+} . Малые количества ионов Gd^{3+} , занимая литиевые кислородные октаэдры, упорядочивают чередование катионов вдоль полярной оси и уменьшают дефектность кристалла по отношению к вакансиям Li^+ . Попадание иона Gd^{3+} в вакантный кислородный октаэдр, наряду с уменьшением вакансий Li^+ приводит к дополнительному увеличению дефектности структуры вследствие нарушения существующего порядка чередования катионов и пустот вдоль полярной оси кристалла.

Таким образом, исходя из необходимости соблюдения зарядовой компенсации дефектную структуру $LiNbO_3:Gd$ в рамках модели литиевых вакансий с учетом факта внедрения гадолиния в литиевые и ниобиевые положения можно описать формулой:



где (Gd_{Li}) – Gd^{3+} , занимающий положения Li^+ . (Gd_{Nb}) – Gd^{3+} , занимающий положения Nb_{Li} (избыточные катионы Nb^{5+} , занимающие положения Li^+).

Аналогично, очевидно, ведут себя примеси с ионными радиусами, близким к радиусам Nb^{5+} и зарядом, меньшим заряда иона Nb^{5+} , например, Mg^{2+} , Zn^{2+} , B^{3+} , Y^{3+} и др. [60, 61, 89, 404, 405]. В то же время, внедрение в структуру ниобата лития малых количеств примесных катионов Ta^{5+} , практически эквивалентных ионам Nb^{5+} , согласно приведенным рассуждениям, приводит всё же только к разупорядочению структурных единиц катионной подрешетки ввиду неэквивалентности связей $Nb-O$, $Ta-O$.

Такое рассмотрение, конечно, является сильно упрощенным. Здесь не учитываются многие структурные дефекты. Например, появление вакансий, внедрение Gd^{3+} в вакантные кислородные октаэдры, кластеризация катионов [21, 406], выпадение примесных фаз других ниобатов лития [21, 58], градиенты концентраций легирующей добавки в объеме кристалла, приводящие к образованию микро- и наноструктур в монокристалле и влияющие на эффект фоторефракции [37]. С формальной точки зрения, в рамках модели (9.1) процесс упорядочения структуры заключается в уменьшении числа вакансий (V_{Li}) . Однако, судя по формуле (9.1), при этом может происходить разупорядочение в ниобиевой подрешетке. Возможно также, что влияние Gd^{3+} на процессы структурного упорядочения заключается в гомогенизации расплава легирующей примесью. При этом может замедляться скорость ро-

ста граней кристалла, что способствует его более высокому оптическому качеству [36, 37].

Таким образом, катионы Gd^{3+} так же, как и катионы Zn^{2+} , могут быть эффективными и тонкими регуляторами количества дефектов Nb_{Li} в структуре кристалла ниобата лития и его оптического качества, что важно для целенаправленного создания оптических материалов с заданными характеристиками. Полученные результаты интересны с экономической точки зрения и имеют значение для промышленного выращивания оптически высокосовершенных кристаллов ниобата лития путем легирования конгруэнтного кристалла малыми концентрациями примесных катионов, поскольку технологические режимы выращивания кристаллов в данном случае практически не отличаются от режимов выращивания номинально чистых конгруэнтных кристаллов, которые в промышленности хорошо отработаны.

9.8 Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах $LiNbO_3:Y(0,46 \text{ вес. } \%), LiNbO_3:Y(0,24):Mg(0,63 \text{ вес. } \%)$

В этом разделе представлены результаты исследований кристаллов: $LiNbO_3:Y(0,46 \text{ вес. } \%)$ и $LiNbO_3:Y(0,24):Mg(0,63 \text{ вес. } \%)$, рис. 9.26-9.28. Раскрытие их индикатрисы ФИРС вдоль полярной оси происходит очень быстро, в течение первой секунды облучения кристалла лазерным излучением. Необходимо отметить, что для кристалла $LiNbO_3:Y(0,46 \text{ вес. } \%)$ на протяжении более чем 60 секунд облучения в картине ФИРС отсутствует центральный слой (пятно лазерного трека), характерный для всех остальных образцов, рис. 9.26.

Центральный (очень слабый) слой появляется только после 60 секунд облучения, уже после того, как сформировались второй и третий слои индикатрисы ФИРС. При этом первую минуту центральный слой спекл-структуры ФИРС кристалла $LiNbO_3:Y(0,46 \text{ вес. } \%)$ представлен в виде отдельных точек (рис. 9.26), в то время как для других кристаллов он существует в виде единого яркого пятна. Можно предположить, что данное явление является следствием особенностей взаимодействия лазерного излучения с заряженными дефектами структуры фоторефрактивного кристалла $LiNbO_3:Y(0,46 \text{ вес. } \%)$. Лазерный луч не создает трек, поскольку значительная часть энергии луча диссипирует в объем кристалла, накачивая второй и третий слои. Однако спустя 60 секунд центральный слой начинает проявляться в виде отдельных близко расположенных ярких точек. Спустя 360 секунд лазерный луч уже можно наблюдать как целое яркое пятно. Такое поведение свидетельствует о том, что, кристалл по прошествии более 360 секунд облучения оказывается неспособным далее диссипировать весь лазерный поток в объем кристалла.

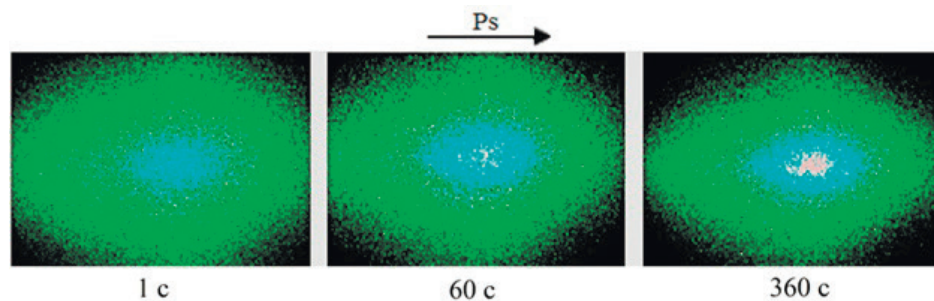


Рисунок 9.26 – Картины ФИРС кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,46 \text{ вес. \%})$ $\lambda = 532 \text{ нм}$. $P = 160 \text{ мВт}$

На картине ФИРС кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,24):\text{Mg}(0,63 \text{ вес. \%})$ в первые же секунды появляется сильно вытянутый центральный слой, а на периферии имеется меньшее пятно, которое постепенно диссипирует, рис. 9.27. При этом центральное пятно остается цельным, хотя и вытянутым, но деления его на две половины не происходит. Таким образом, для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,24):\text{Mg}(0,63 \text{ вес. \%})$ также наблюдается сложная динамика развития картины ФИРС со временем, обусловленная сложным перераспределением энергии между обыкновенным и необыкновенным лучами.

Кинетика раскрытия угла индикатрисы ФИРС для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,46 \text{ вес. \%})$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,24):\text{Mg}(0,63 \text{ вес. \%})$ показана на рис. 9.28. Из рис. 9.28 отчетливо видно, что индикатриса ФИРС в исследованных кристаллах, раскрывается практически мгновенно (в течение первой секунды), но со временем происходит уменьшение угла рассеяния.

Легирующие кристаллов ниобата лития двойными примесями вызывает интерес в целях создания оптически прочных кристаллов с очень малым фоторефрактивным эффектом. Такие кристаллы были бы эффективными для работы в мощных лазерах в области нелинейной оптики для обращения волнового фронта, преобразования излучения генерации гармоник и т.п. Сочетание катионов Y^{3+} и Mg^{2+} в структуре ниобата лития дают понижение эффекта фоторефракции в процессе облучения. В этой связи интересен вопрос подбора соответствующих концентраций для полного гашения фоторефрактивного эффекта. Но так как данный вопрос невозможно теоретически просчитать и многое здесь определяется подбором концентраций легирующих примесей, а также технологическими факторами выращивания монокристалла, то мы остановились только на демонстрации того, что такое решение тоже может быть реализовано.

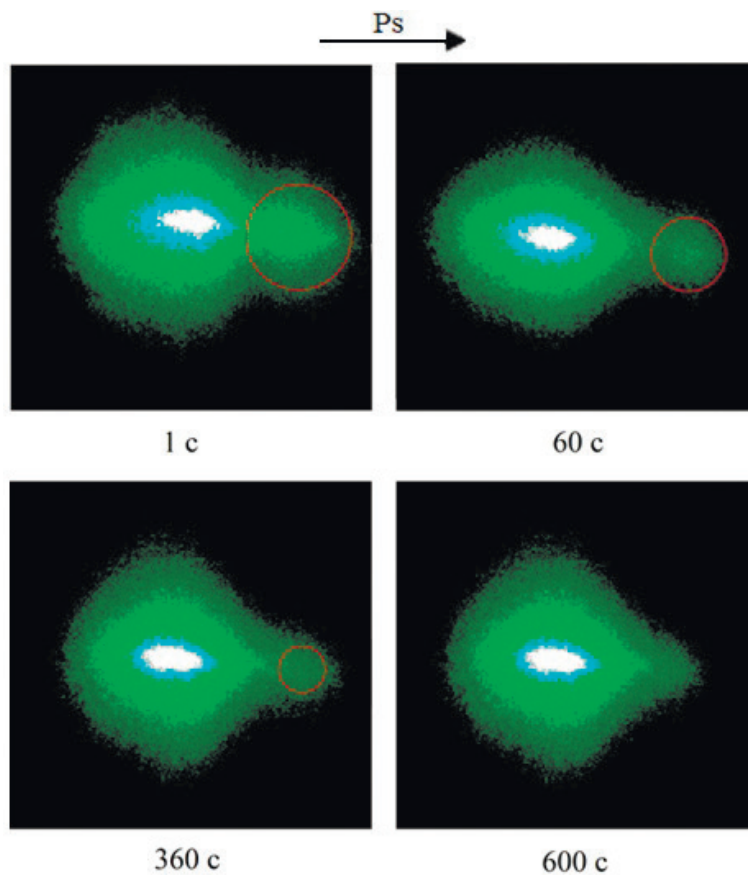


Рисунок 9.27 – Спекл-картина ФИРС кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,24):\text{Mg}(0,63 \text{ вес. \%})$. Повышена контрастность и выделена асимметричная часть

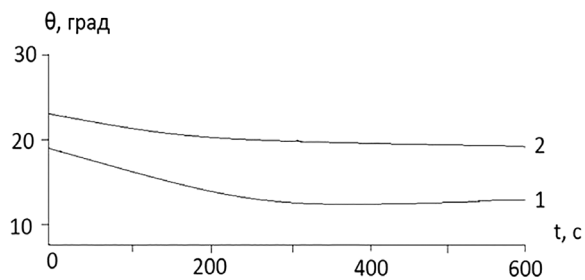


Рисунок 9.28 – Зависимости от времени угла индикатрисы ФИРС в кристаллах: (1) $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,24):\text{Mg}(0,63 \text{ вес. \%})$; (2) $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,46 \text{ вес. \%})$. $P = 160 \text{ мВт}$. $\lambda_0 = 532 \text{ нм}$

9.9 Сравнительные исследования фотоиндуцированного рассеяния света в легированных кристаллах LiNbO_3

Временные зависимости картин ФИРС кристаллов $\text{iNbO}_3\text{:Gd}(0,23)\text{:Mg}(0,75 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}(0,015)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Er}(3,1)$ представлены на рис. 9.29. Для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,23)\text{:Mg}(0,75 \text{ вес. \%})$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Er}(3,1)$ картина ФИРС практически не изменяется во времени. Для этих кристаллов при $P = 160 \text{ мВт}$ фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Картина рассеяния сохраняет форму близкую к кругу на протяжении всего эксперимента, рис. 9.29 а, г. Для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011 \text{ вес. \%})$ со временем наблюдается небольшое «размытие» центрального слоя картины рассеяния (лазерного пятна) в направлении полярной оси, рис. 9.29 б.

Для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$ наблюдалась трехслойная спекл-структура картины ФИРС, которая существенно видоизменялась с течением времени (рис. 9.29 в). При этом картина ФИРС раскрывается в течение $\approx 60 \text{ с}$, и из округлой формы (первые секунды возбуждения) со временем трансформируется сначала в овальную («кометообразную») форму, а затем приобретает вид асимметричной «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла. Необходимо отметить и то, что для кристалла $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$ наблюдается явно выраженное деление центрального пятна на две половины, рис. 9.29 в, так же, как это наблюдалось ранее для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:B}(0,83 \text{ мол. \% B}_2\text{O}_3 \text{ в шихте})$.

Монокристаллы ниобата лития, легированные Cu, могут быть перспективным материалом для голографической записи информации [21, 278]. Однако в литературе совершенно отсутствует информация о ФИРС в монокристаллах $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}$. Важно отметить то, что катионы Cu, даже в малых количествах, очень неравномерно распределяются в структуре кристалла ниобата лития [37]. Принято считать, что Cu (заряд +1 и +2) является «фоторефрактивным» катионом, способными под действием света изменять свое зарядовое состояние. О том, что медь в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$ находится в двухвалентном состоянии, свидетельствует розовая окраска выращенных монокристаллов. Концентрация меди в кристалле экспериментально определялась химическим анализом. Однако фоторефракция, видимо, проявляется только при сравнительно высокой плотности мощности возбуждающего лазерного излучения. Так, при возбуждении спектров КРС лазерной линией 514,5 нм аргонового лазера мощностью 200 мВт (диаметр пучка 1,8 мм) в спектре в геометрии рассеяния $X(ZX)\bar{Y}$ всегда присутствуют линии с частотами $631 \text{ A}_1(\text{TO})$ и $876 \text{ A}_1(\text{LO}) \text{ см}^{-1}$, запрещенные правилами отбора для данной геометрии рассеяния. Однако при малых мощностях возбуждающего излучения ($< 10 \text{ мВт}$) в спектре КРС кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}[0,015 \text{ вес. \%}]$ отсутствует линия с частотой 631 см^{-1} , запрещенная правилами отбора для геометрии рассеяния $X(ZX)\bar{Y}$. Фоторефрактивный эффект при такой мощности возбуждения также отсутствует, поскольку медь ведет себя, как «нефоторефрактивная примесь». т. е, эффект фоторефракции в кристаллах

$\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ носит пороговый характер. Видимо, это обусловлено высокой работой выхода электронов для меди. Работа выхода для меди составляет 4,4 эВ, что значительно превышает величину работы выхода для таких «нефоторефрактивных» примесей как Mg^{2+} , Gd^{3+} и др. (табл. 9.2).

Таблица 9.2 – Работа выхода электронов для некоторых элементов

Элемент	Fe	Cu	Zn	Mg	Gd	Ta	Y
Работа выхода, эВ	4,31	4,4	4,24	3,4	2,05	4,12	3,3

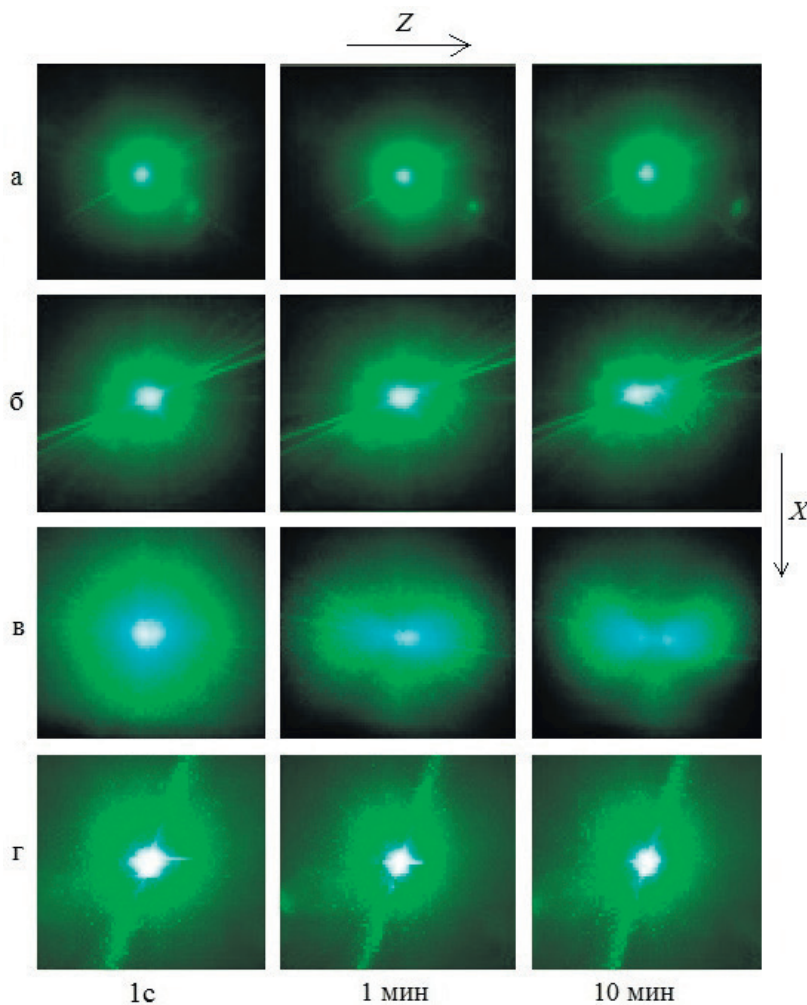


Рисунок 9.29 – Картины ФИРС и их изменение во времени кристаллов: а) $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}(0,23):\text{Mg}(0,75 \text{ вес. \%})$; б) $\text{LiNbO}_3:\text{Ta}(1,13):\text{Mg}(0,011 \text{ вес. \%})$; в) $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}(0,015 \text{ вес. \%})$; д) $\text{LiNbO}_3:\text{Er}(3,1 \text{ вес. \%})$. $P = 160 \text{ мВт}$. $\lambda_0 = 532 \text{ нм}$

9.10 Фотоэлектрические параметры ФИРС

Впервые ФИРС для определения напряженности фотополей и других характеристик фоторефрактивных материалов было использовано в работах [347, 407]. Разработка методов экспериментальной оценки фотоэлектрических полей в кристалле является важной задачей для создания новых сегнетоэлектрических материалов на основе монокристалла ниобата лития с заданными структурными и фоторефрактивными характеристиками для генерации и преобразования лазерного излучения, записи и хранения информации, а также для отработки промышленных технологий выращивания монокристаллов. Как было показано ранее, при прохождении лазерного излучения через фоторефрактивный кристалл происходит фотоиндуцированное рассеяние света (ФИРС) на статических и динамических (флуктуирующих) дефектах, наведенных лазерным излучением, с измененным показателем преломления [408]. При этом значение электрооптического эффекта определяет значение угла раскрытия индикатрисы ФИРС, которое в ниобате лития происходит преимущественно вдоль полярной оси кристалла. Значение и скорость угла раскрытия индикатрисы ФИРС определяют чувствительность и быстродействие фоторефрактивной голографической записи информации, электрооптических модуляторов и затворов. В данном разделе по параметрам ФИРС выполнена сравнительная оценка напряженности фотоэлектрических полей в серии кристаллов ниобата лития разного состава (номинально чистых и легированных), выращенных методом Чохральского разными способами. Также определены фотоиндуцированные изменения показателя преломления кристаллов разного состава.

В зависимости от состава величина эффекта фоторефракции, фото- и электропроводимость в кристалле LiNbO_3 изменяются в широких пределах [21, 278, 319, 409-415]. При этом должно происходить изменение ширины запрещенной зоны, которая для номинально чистого конгруэнтного кристалла составляет 3.72 эВ, что близко к значению, характерному для широкозонных полупроводников [283, 409, 416]. Уменьшая ширину запрещенной зоны, можно приблизить свойства кристалла LiNbO_3 к полупроводниковым, что позволяет в принципе разрабатывать материалы с кросс-эффектами. По изменению края собственного поглощения могут быть установлены аномалии ширины запрещенной зоны, возникающие при изменении состава кристалла.

Определение края поглощения производилось с помощью монохроматора МДР-41. Для определения ширины запрещенной зоны регистрировался спектр пропускания кристалла. По полученной зависимости интенсивности излучения, прошедшего через кристалл, строился инвертный спектр – спектр поглощения. В качестве источника излучения использовалась дейтериевая лампа. Полученный спектр поглощения в убывающей линейной части графика аппроксимировался прямой до пересечения с осью абсцисс. Точка пересечения этой прямой и оси абсцисс является длиной волны, соответствующей краю поглощения кристалла. Ширина запрещенной зоны определялась по формуле $E = \frac{hc}{\lambda}$, где λ – длина волны, соответствующая краю поглощения, h – постоянная Планка, c – скорость света в вакууме. Точность определения границы края поглощения составляет $\pm 1,0$ нм. ФИРС

возбуждалось лазером Nd:YAG (MLL-100), $\lambda_0 = 532$ нм, $I \sim 6,29$ Вт/см². В экспериментах по ФИРС лазерный луч направлен вдоль оси Y , а вектор напряженности E электрического поля лазерного излучения параллелен полярной оси Z кристалла. По параметрам индикатрисы ФИРС в исследованных кристаллах были определены значения напряженностей фотовольтаического и диффузионного электрических полей, а также наведенное двулучепреломление с учетом формул Селмейера. Величина двулучепреломления кристалла вычислена по формуле $\Delta n = 0,5(n_e^3 \cdot r_{33} - n_o^3 \cdot r_{13}) \cdot E_{pv}$, где: Δn – величина двулучепреломления кристалла, n_e – показатель преломления необыкновенного луча, n_o – показатель преломления обыкновенного луча, r_{13} и r_{33} – электрооптические коэффициенты для LiNbO_3 . Установка и методика для определения фотоэлектрических полей подробно описана в работах [397, 417]. Погрешность вычислений фотоэлектрических полей в условиях эксперимента составляет 1,5–2%.

В табл. 9.3 приведены результаты расчета ширины запрещенной зоны по спектрам поглощения кристаллов LiNbO_3 разного состава, значения фотоэлектрических полей (фотовольтаического E_{pv} и диффузионного E_D) и угла раскрытия ФИРС. Характерным является то, что в ряду исследованных кристаллов фотоэлектрические поля и эффект фоторефракции (наведенное двулучепреломление) минимальны для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Er}(3,1 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}(0,23):\text{Mg}(0,75)$, $\text{LiNbO}_3:\text{Y}(0,46)$, кристалла ниобата лития стехиометрического состава ($\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$) и максимальны для кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}(0,35)$ табл. 9.3. Следует отметить, что фотоэлектрические поля и величина наведенного двулучепреломления определялись с учетом геометрических размеров кристаллов, их ориентации в оптической схеме и при одинаковом значении угла рассеянного излучения $\sim 6^\circ$ в виду того, что большинство исследуемых кристаллов обладают явно пониженным эффектом фоторефракции и наибольший угол отклонения ФИРС едва ли достигает 15° . Только в кристалле $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ угол ФИРС достигает 56° , при этом максимальное фотовольтаическое поле $\sim 7,5$ кВ/см.

Из полученных данных видно, что ширина запрещенной зоны для исследованных кристаллов находится в диапазоне $3,25 \div 3,84$ эВ. Наименьшую ширину запрещенной зоны имеют кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{B}(0,12 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}(0,26)$, а также кристаллы с двойным легированием $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}(0,0036):\text{Mg}(0,86)$, $\text{LiNbO}_3:\text{Ta}(1,13):\text{Mg}(0,011)$, табл. 9.3. Наибольшую ширину – кристаллы $\text{LiNbO}_3:\text{Gd}(0,23 \text{ вес. \%}):\text{Mg}(0,75)$ и $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}(2,05)$, табл. 9.3. В конгруэнтном кристалле ($\text{LiNbO}_{3\text{конгр}}$) ширина запрещенной зоны близка к максимальной (3,72 эВ). При этом электрическая проводимость конгруэнтного кристалла составляет $\approx 10^{-16} - 10^{-15}$ (Ом·см)⁻¹ [418, 419], причем проводимость в направлениях вдоль полярной оси Z существенно ниже проводимости перпендикулярно оси [418, 419]. Стехиометрический кристалл, согласно нашим данным, характеризуется средним значением ширины запрещенной зоны (3,48 эВ). Данных по электрической проводимости стехиометрического кристалла нами не обнаружено. Таким образом, состав кристалла ниобата лития, влияющий на особенности его вторичной структуры [21, 98], существенно влияет на ширину запрещенной зоны, значения электропроводности и фотоэлектрических полей. Необходимо отметить, что для слабо окрашенных кристаллов

$\text{LiNbO}_3\text{:Fe}(0,0036 \text{ вес. \%})\text{:Mg}(0,86)$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Er}(3,1)$ на край поглощения способны влиять полосы поглощения легирующего элемента [375, 420, 421]. И чем ближе соответствующие полосы поглощения к краю фундаментального поглощения, тем сильнее это влияние.

Таким образом, для исследованных кристаллов наблюдается корреляция в значениях ширины запрещенной зоны, величины фотоэлектрических полей, величин и временной зависимости параметров ФИРС, табл. 9.3. За эффект фоторефракции в кристалле LiNbO_3 ответственны дефекты с локализованными на них электронами. Основными такими дефектами в номинально чистом кристалле являются катионы Nb^{5+} , расположенные в позициях катионов Li^+ идеальной структуры (Nb_{Li}) и дефекты в виде мелких ловушек электронов [21, 98, 271, 283, 286]. Причем, чем больше величина $R = \text{Li}/\text{Nb}$, тем меньше в кристалле дефектов Nb_{Li} , но тем больше дефектов в виде мелких ловушек электронов [21, 98, 271]. Из полученных данных видно также, что чем большие фотоэлектрические поля создаются в кристалле, тем больше эффект фоторефракции, тем больше индикатриса ФИРС. При этом, соответственно, увеличивается наведенное двулучепреломление, уверенно проявляющееся в коноскопических картинах, см. главу 7. Коноскопический метод можно использовать как экспресс-метод для визуального определения наличия оптических неоднородностей в кристаллах и для расчета величины двулучепреломления по значению двуосности.

На коноскопических картинах кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,51 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,35)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,23)\text{:Mg}(0,75)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(2,05)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Er}(3,1)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}(0,0036)\text{:Mg}(0,86)$, для которых не наблюдалось раскрытия индикатрисы ФИРС, табл. 9.3, при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт, не наблюдалось появления дополнительных искажений, по сравнению с коноскопическими картинками, полученными при мощности излучения 1 мВт ($\lambda = 532 \text{ нм}$, $d = 1,8 \text{ мм}$), см. главу 7.

Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,51 \text{ вес. \%})$, а также $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,35 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Er}(3,1)$, см. главу 7, отвечают практически идеальным коноскопическим картинкам одноосного оптически неактивного кристалла. Именно такой вид картин свидетельствует об оптической однородности образцов и хорошем оптическом качестве.

Коноскопические картины кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,51 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,23)\text{:Mg}(0,75)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(2,05)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,24)\text{:Mg}(0,63)$, см. главу 7, содержат признаки, типичные для двуосных кристаллов, а именно – деформацию изохром и «мальтийского креста» с его просветлением и разрывом на две части в центре поля зрения. При этом изохромы имеют вид эллипсов. «Мальтийский крест» разделен на две части с их сдвигом в направлении от центра, соответствующем направлению деформации оптической индикатрисы кристалла. Необходимо отметить, что при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт признаки аномальной оптической двуосности на коноскопических картинках кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,51 \text{ вес. \%})$, $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(2,05)$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011)$, см. главу 7, уменьшаются. Коноскопические картины этих кристаллов становятся менее деформированными, что очевидно связано с «залечиванием» дефектов в кристаллах лазерным излучением.

На коноскопических картинах кристаллов LiNbO_3 _{3стех}, $\text{LiNbO}_3\text{:B}(0,12 \text{ вес. } \%)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,46)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,24)\text{:Mg}(0,63)$, для которых наблюдалось раскрытие индикатрисы ФИРС, табл. 9.3, при увеличении мощности лазерного излучения до 90 мВт наблюдается появление дополнительных аномалий, отсутствующих на коноскопических картинах при 1 мВт, что очевидно связано с появлением в структуре кристаллов дефектов, наведенных лазерным излучением. Особенно сильная деформация коноскопических картин при увеличении мощности лазерного излучения характерна для кристаллов LiNbO_3 _{3стех} и $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,24 \text{ вес. } \%)\text{:Mg}(0,63)$, см. главу 7, для которых характерно быстрое раскрытие индикатрисы ФИРС, табл. 9.3. Появление аномальной оптической двуосности при увеличении мощности лазерного излучения, вероятно, связано с существованием локальных областей в кристалле, обладающих двулучепреломлением.

Для кристаллов LiNbO_3 _{3контр}, $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,51 \text{ вес. } \%)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(0,35)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Gd}(0,23)\text{:Mg}(0,75)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(2,05)$ даже при сравнительно высокой интенсивности возбуждающего излучения ($I \sim 6,29 \text{ Вт/см}^2$) фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Картина рассеяния не изменяется во времени и сохраняет форму близкую к кругу на протяжении всего эксперимента. В то же время для кристаллов LiNbO_3 _{3стех}, $\text{LiNbO}_3\text{:B}(0,12 \text{ вес. } \%)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,46)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,24)\text{:Mg}(0,63)$ характерен фоторефрактивный отклик, табл. 9.3, и наблюдается раскрытие индикатрисы ФИРС с появлением ярко выраженной трехслойной спекл-структуры, которая существенно видоизменялась с течением времени. При этом происходит перекачка энергии из центральной области картины ФИРС (область падения лазерного луча) в рассеянное излучение. Причем, для кристаллов LiNbO_3 _{3стех}, $\text{LiNbO}_3\text{:B}(0,12 \text{ вес. } \%)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011)$ картины ФИРС раскрываются в течение $\sim 60 \text{ с}$, и они из округлой формы (первые секунды возбуждения) со временем трансформируется сначала в овальную («кометообразную») форму, а затем приобретают вид асимметричной «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла. В положительном направлении полярной оси, совпадающем с направлением вектора спонтанной поляризации, развивается больший «лепесток» восьмерки, а в отрицательном – меньший. Для этой группы кристаллов со временем характерно также постепенная перекачка энергии разных слоев картины ФИРС в направлении полярной оси кристалла. Для кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,46 \text{ вес. } \%)$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,24)\text{:Mg}(0,63)$ раскрытие индикатрисы ФИРС происходит существенно быстрее по сравнению с остальными кристаллами – в течение первой секунды облучения кристалла лазерным излучением. Обращает на себя внимание то, что для кристаллов LiNbO_3 _{3стех}, $\text{LiNbO}_3\text{:B}(0,12 \text{ вес. } \%)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Ta}(1,13)\text{:Mg}(0,011)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,46)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Y}(0,24)\text{:Mg}(0,63)$, отличающихся меньшей по сравнению с другими кристаллами шириной запрещенной зоны, наблюдается наиболее сильный фоторефрактивный отклик и происходит наибольшее раскрытие индикатрисы ФИРС, табл. 9.3.

Таблица 9.3 – Фотоэлектрические параметры ФИРС и ширина запрещенной зоны кристаллов ниобата лития при $t = 25^\circ\text{C}$

№ п/п	Кристалл	λ_c , нм	ΔE_g , эВ	$\lambda = 532 \text{ нм}, I \sim 6,29 \text{ Вт/см}^2$		
				$E_{\mu\sigma}$, В/см	$E_{\rho\sigma}$, В/см	$\Delta n \cdot 10^{-5}$
1	*LiNbO ₃ :Gd(0,23 вес. %):Mg (0,75)	323,8	3,84±0,012	3800	745	5,3
2	*LiNbO ₃ :Zn(2,05 вес. %)	323,0	3,83±0,012	4770	75	5,6
3	*LiNbO ₃ :Zn ₃₀₀₀	334,2	3,72±0,011	5620	104	6,7
4	*LiNbO ₃ :Er(3,1 вес. %)	335,2	3,71±0,011	4400	81	5,2
5	*LiNbO ₃ :Mg(0,35 вес. %)	341,0	3,65±0,011	7405	295	9,0
6	LiNbO ₃ :Y(0,24 вес. %):Mg(0,63)	342,2	3,63±0,011	5440	98	6,5
7	LiNbO ₃ :Y(0,46 вес. %)	346,4	3,59±0,01	4340	237	5,3
8	LiNbO ₃ :Zn ₃₀₀₀	360,0	3,48±0,01	3178	1360	5,3
9	LiNbO ₃ :B(0,12 вес. %)	380,0	3,27±0,009	5374	99	6,4
10	*LiNbO ₃ :Gd(0,26 вес. %)	380,0	3,27±0,009	-	-	-
11	*LiNbO ₃ :Fe(0,0036 вес. %):Mg(0,86)	382,4	3,25±0,009	4655	127	5,6
12	LiNbO ₃ :Ta(1,13 вес. %):Mg(0,01)	380,0	3,27±0,009	6052	115	7,1

*Для указанных кристаллов индикатриса ФИРС не развивается при $I \sim 6.29 \text{ Вт/см}^2$.

Таким образом, рассеяние монохроматического когерентного лазерного излучения на фотоиндуцированных мелкомасштабных неоднородностях показателя преломления среды (ФИРС) является эффективным методом исследования оптической однородности, фоторефрактивных свойств, фотовольтаического и диффузионного полей нелинейно-оптического монокристалла ниобата лития. Исследования ФИРС в монокристалле LiNbO₃ изначально шли по двум направлениям: первое – нахождение условий подавления эффекта фоторефракции. Второе — использование экспериментальных результатов исследований ФИРС для изучения свойств фоторефрактивных кристаллов. Результаты исследований, представленные в данной главе, позволяют уверенно разделить исследованные кристаллы LiNbO₃ на три группы в зависимости от вида и изменения во времени картины рассеяния. К первой, самой многочисленной группе, относятся кристаллы, картина ФИРС которых практически не изменяется во времени. Для этих кристаллов даже при $P = 160 \text{ мВт}$ (плотность мощности лазерного излучения $p = 6,29 \text{ Вт/см}^2$) фоторефрактивный отклик отсутствует, индикатриса ФИРС не раскрывается, а наблюдается только круговое рассеяние на статических структурных дефектах. Подобная картина рассеяния наблюдалась для кристаллов LiNbO₃ конгруэнтного состава (Li/Nb = 0,946), LiNbO₃(4,5 вес. % K₂O), а также конгруэнтных кристаллов, легированных катионами Mg²⁺(0,19-3,01, 5,21 мол. %), Zn²⁺(0,05, 4,46-4,69 мол. %), B³⁺(0,69, 1,24 мол. %), LiNbO₃:Mg²⁺(5,04): Fe³⁺(0,009 мол. %), LiNbO₃:Zn²⁺(4,34):Fe³⁺(0,02 мол. %), Gd³⁺(0,23):Mg²⁺(0,75 вес. %), Ta⁵⁺(1,13):Mg²⁺(0,011 вес. %), Gd³⁺(0,002, 0,05 вес. %), Er³⁺(3,1 вес. %). Данные кристаллы обладают сравнительно низким эффектом фоторефракции и перспективны в качестве материалов для преобразователей частоты, формирования микронных, субмикронных и нанометровых периодических структур, электрооптических модуляторов и затворов. Двойное легирование может быть перспективно для получения кристаллов повышенной оптической прочности.

Вторую и третью группы составляют кристаллы, для которых характерен фоторефрактивный отклик и наблюдается раскрытие индикатрисы ФИРС с появлением спекл-структуры. Это кристаллы LiNbO_3 стехиометрического состава ($\text{Li/Nb} = 1$), $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ (6 вес. % K_2O), а также конгруэнтные кристаллы, легированные катионами: Zn^{2+} (0,03, 0,94, 1,12, 1,59 мол. %), B^{3+} (0,55, 0,83 мол. %), Cu^{2+} (0,015 вес. %), Gd^{3+} (0,003, 0,005 вес. %), Y^{3+} (0,46 вес. %), Y^{3+} (0,24): Mg^{2+} (0,63 вес. %). Для всех исследованных кристаллов наблюдалась трехслойная спекл-структура картины ФИРС, которая существенно видоизменялась с течением времени. При этом картина ФИРС кристаллов второй группы раскрывается в течение ≈ 60 с и из округлой формы (первые секунды возбуждения) со временем постепенно трансформируется сначала в овальную («кометообразную») форму, а затем приобретает вид асимметричной «восьмерки», ориентированной вдоль полярной оси кристалла. Причем, в положительном направлении полярной оси, совпадающем с направлением вектора спонтанной поляризации, развивается больший «лепесток» восьмерки, а в отрицательном – меньший. Для этой группы кристаллов со временем характерно также постепенное «перетекание» интенсивности разных слоев картины ФИРС в направлении полярной оси кристалла. Необходимо отметить и то, что для кристаллов $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$, $\text{LiNbO}_3:\text{B}^{3+}$ (0,83 мол. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}$ (0,015 вес. %) наблюдается явно выраженное деление центрального пятна (соответствующего лазерному лучу на выходе из кристалла) на две половины.

К третьей группе относятся только два кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}$ (0,46 вес. %) и $\text{LiNbO}_3:\text{Y}$ (0,24): Mg (0,63 вес. %). Раскрытие их индикатрисы ФИРС в направлении полярной оси происходит очень быстро, практически в течение первой секунды облучения кристалла лазерным излучением. Причем, для кристалла $\text{LiNbO}_3:\text{Y}$ (0,46 вес. %) на протяжении более чем 60 с облучения в картине ФИРС отсутствует центральный слой (лазерное пятно), характерный для всех остальных образцов. Наличие быстрого раскрытия индикатрисы ФИРС потенциально ставит кристаллы третьей группы в ряд перспективных материалов для голографии, электрооптических модуляторов и затворов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бирюкова И. В. Высокотемпературный синтез и модификация свойств сегнетоэлектрических монокристаллов и шихты ниобата и танталата лития: дис. ... канд. техн. наук: 02.00.01: Апатиты, 2005. 132 с.
2. Палатников М. Н., Сидоров Н. В., Бирюкова И. В., Щербина О. Б., Калинин В. Т. Гранулированная шихта для выращивания монокристаллов ниобата лития // Персп. матер., 2011. № 2. С. 93–97.
3. Палатников М. Н., Сидоров Н. В., Калинин В. Т., Салак А. Н. Механизмы твердофазного взаимодействия при синтезе шихты для получения высокочистого ниобата лития // Неорган. матер. 2011. Т. 47, № 6. С. 854–859.
4. Palatnikov M. N., Biryukova I. V., Masloboeva S. M., Makarova O. V., Manukovskaya D. V., Sidorov N. V. The search of homogeneity of LiNbO₃ crystals grown of charge with different genesis // J. Cryst. Growth. 2014. V. 386. P. 113–118.
5. Кузьминов Ю. С. Электрооптический и нелинейнооптический кристалл ниобата лития. М.: Наука, 1987. 264 с.
6. Born E., Willibald E., Hofmann K., et al. Detection of Non-Congruent Lithium Niobate Crystals Using the Nondestructive Derivative Spectrophotometry // IEEE Ultrasonics Symposium. 1988. P. 119–122.
7. Arizmendi L. Simple Holographic Method for Determination of Li/Nb Ratio and Homogeneity of LiNbO₃ Crystals // J. Appl. Phys. 1988. V. 64. P. 4654–4656.
8. Carruthers J. R., Peterson G. E., Grasso M. Nonstoichiometry and Crystal Growth of Lithium Niobate // J. of Appl. Phys. 1971. V. 42, № 5. P. 1846–1851.
9. Nash F. R., Boyd G. D., Sargent M., Bridenbaugh P. M. Effect of optical inhomogeneities on phase matching in nonlinear crystals // J. Appl. Phys. 1970. V. 41, № 6. P. 2564–2570.
10. Scott B. A., Byrns G. Determination of stoichiometry variations in LiNbO₃ and LiTaO₃ by Roman Power spectroscopy // J. Amer. Ceram. Soc. 1972. V. 55, № 5. P. 225–230.
11. Sangeeta D., Rajpurkar M. K., Kothiyal G. P. Growth of Single Crystals of LiNbO₃ and Measurement of its Curie temperature // Indian J. Phys. 1987. V. 61, № 4. P. 373–376.
12. Баласанян Р. Н., Полгар К., Эрден Ш. Контроль оптической однородности кристаллов ниобата лития и конгруэнтного состава расплава методами генерации второй гармоники // Кристаллография. 1987. Т. 32, № 2. С. 482–485.
13. Grabmaier B. C., Wersing W., Koestler W. Properties of Undoped and MgO-Doped LiNbO₃; Correlation to the Defect Structure // J. of Cryst. Growth. 1991. V. 110. P. 339–347.
14. Krol D. M., Blasse G. The Influence of the Li/Nb Ratio on the Luminescence Properties of LiNbO₃ // J. Chem. Phys. 1980. V. 73. P. 163–166.
15. Foldvari I., Polgar K., Voszka K. A. Simple method to determine the real composition of LiNbO₃ crystals // Cryst. res. and technol. 1984. V. 19, № 12. P. 1659–1661.
16. Srivastava K. N., Gangarh J. R., Rishi M. V. et al. Effect of Melt Composition on Growth and Properties of LiNbO₃ Crystals // Indian J. of Pure and Appl. Phys. 1984. V. 22, № 3. P. 154–160.

17. *Габриелян В. Т.* Исследование условий выращивания и некоторых физических свойств электрооптических и акустических монокристаллов – ниобата лития, молибдата свинца, германата свинца: Автореф. к.ф.-м.н.: 05.17.01. М., 1978. 19 с.
18. *O'Bryan H. M., Gallagher P. K., Brandle C. D.* Congruent composition and Li-Rich Phase Boundary of LiNbO_3 // *J. Amer. Ceram. Soc.* 1985. V. 68, № 9. P. 493-496.
19. *Palatnikov M. N., Sidorov N. V.* Some fundamental points of technology of lithium niobate and lithium tantalate single crystals. *Oxide Electronics and Functional Properties of Transition Metal Oxides: Chapter II.* USA: NOVA Science Publishers, 2014. 256 p. P. 31-168.
20. *Палатников М. Н., Сидоров Н. В., Калинин В. Т.* Сегнетоэлектрические твердые растворы на основе оксидных соединений ниобия и тантала: синтез, исследование структурного упорядочения и физических характеристик. СПб.: Наука, 2001, 2002 (переиздание). 302 с.
21. *Сидоров Н. В., Волк Т. Р., Маврин Б. Н., Калинин В. Т.* Ниобат лития: дефекты, фоторефракция, колебательный спектр, поляритоны. М.: Наука, 2003. 255 с.
22. *Палатников М. Н., Сидоров Н. В., Бирюкова И. В., Чуфырев П. Г., Калинин В. Т.* Упорядочение структуры и оптические характеристики легированных монокристаллов ниобата лития // *Персп. матер.* 2003. № 4. С. 48-54.
23. *Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Маслобоева С. М., Макарова О. В., Кравченко О. Э., Яничев А. А., Сидоров Н. В.* Сравнение структуры и оптической однородности кристаллов $\text{LiNbO}_3\langle\text{Mg}\rangle$, выращенных из шихты различного генезиса // *Неорган. матер.* 2013. Т. 49, № 7. С. 765-770.
24. *Палатников М. Н., Маслобоева С. М., Бирюкова И. В., Сидоров Н. В., Макарова О. В.* Влияние способа приготовления твердых прекурсоров $\text{Nb}_2\text{O}_5\text{:Mg}$ на характеристики полученных на их основе кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ // *Журн. неорган. химии.* 2014. Т. 59, № 3. С. 318-332.
25. *Палатников М. Н., Сидоров Н. В., Калинин В. Т.* Технология управляемого синтеза монокристаллических и керамических материалов на основе ниобатов-танталатов щелочных металлов // *Цветн. Металлы.* 2010. № 10. С. 54-59.
26. *Волк Т. Р., Рубинина Н. М.* Нефоторефрактивные примеси в ниобата лития: магний и цинк // *Физика тверд. тела.* 1991. Т. 33, № 4. С. 1192-1201.
27. *Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Ефремов И. Н., Маслобоева С. М.* Сравнение оптических характеристик монокристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$, выращенных из шихты различного генезиса // *Сб. материалов V Всерос. науч. конф. с междунар. участием «Проблемы рационального использования природного и техногенного сырья Баренц-региона в технологии строительных и технических материалов»*, г. Апатиты, 12-15 ноября 2013. С. 152-154.
28. *Маслобоева С. М., Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Арутюнян Л. Г., Чуфырев П. Г.* Синтез и исследование строения оксида ниобия(V), легированного катионами Mg^{2+} и Gd^{3+} // *Журн. неорган. химии.* 2011. Т. 56, № 8. С. 1264-1268.
29. *Маслобоева С. М., Калинин В. Т., Залкинд О. А., Кадырова Г. И., Кузнецов В. Я.* Получение пентаоксида ниобия с примесью ионов Zn^{2+} для выращивания монокристаллов ниобата лития // *Цветн. металлы.* 2012. № 5. С. 89-92.
30. *Маслобоева С. М., Кадырова Г. И., Кузнецов В. Я., Залкинд О. А., Арутюнян Л. Г.* Синтез и исследование фазового состава лигатур $\text{Nb}_2\text{O}_5\text{:Fe}^{3+}$ и $\text{Ta}_2\text{O}_5\text{:Fe}^{3+}$ // *Журн. прикл. химии.* 2012. Т. 85, № 12. С. 1938-1943.

31. Маслобоева С. М., Арутюнян Л. Г. Получение гомогенно легированной эрбием шихты ниобата лития для выращивания монокристаллов высокого оптического качества / Химические реактивы, реагенты и процессы малотоннажной химии: Сб. науч. тр. / Нац. акад. наук Беларуси, Ин-т химии новых материалов; науч. ред. В. Е. Агабеков, Е. В. Королева, К. Н. Гусак. Минск: Беларус. Навука, 2013. С. 239–250.
32. Маслобоева С. М., Елизарова И. Р., Кадырова Г. И., Арутюнян Л. Г. Синтез и свойства гомогенно легированных $\text{Nb}_2\text{O}_5\langle\text{Dy}\rangle$ и шихты состава $\text{LiNbO}_3\langle\text{Dy}\rangle$ // Неорган. матер. 2014. Т. 50, № 8. С. 867–873.
33. Маслобоева С. М., Кадырова Г. И., Арутюнян Л. Г. Синтез и исследование фазового состава твердых прекурсоров $\text{Nb}_2\text{O}_5\langle\text{B}\rangle$ и шихты $\text{LiNbO}_3\langle\text{B}\rangle$ // Журн. неорган. химии. 2016. № 4. С. 433–440.
34. Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Макарова О. В., Ефремов В. В., Кравченко О. Э., Скиба В. И., Сидоров Н. В., Ефремов И. Н. Выращивание сильно легированных кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ // Неорган. матер. 2015. Т. 51, № 4. С. 428 – 432.
35. Палатников М. Н., Маслобоева С. М., Бирюкова И. В., Арутюнян Л. Г., Кравченко О. Э., Калинин В. Т. Технологические подходы к получению гомогенно легированных гадолинием кристаллов ниобата лития // Тр. Кольского научного центра РАН. Спецвыпуск «Химия и материаловедение». Материалы II Всероссийской научной конференции с международным участием, посвященной памяти академика В.Т. Калинникова «Исследования и разработки в области химии и технологии функциональных материалов». Апатиты, 2015. С. 443–448.
36. Калинин В. Т., Палатников М. Н., Сидоров Н. В. Фундаментальные основы технологии высокосовершенных монокристаллов ниобата лития: аналитический обзор. Апатиты: КНЦ РАН, 2005.
37. Палатников М. Н. Дис. «Материалы электронной техники на основе сегнетоэлектрических монокристаллов и керамических твердых растворов ниобатов-танталатов щелочных металлов с микро- и наноструктурами» д-ра техн. наук. Апатиты, 2010.
38. Abrahams S. C. Properties of lithium niobate. N.Y.: Pergamon., 1989. 234 p.
39. Сидоров Н. В., Антонычева Е. А., Сюй А. В., Палатников М. Н. Фоторефрактивные свойства номинально чистых и легированных нелинейнооптических монокристаллов ниобата лития // Новые технологии. 2010. № 1 (28). С. 32–40.
40. Палатников М. Н., Сидоров Н. В., Стефанович С. Ю. и др. Дефектная структура и особенности фазовой диаграммы ниобата лития. Кристаллы, рост, свойства, реальная структура, применение: Сб. науч. тр. Александров: ВНИИ-СИМС. 1997. С. 349–374.
41. Kratzig E., Schirmer O. Photorefractive centers in electro-optic crystals. Topics in Appl. Phys. V. 62. Photorefractive materials and their applic. Berlin: Springer – Verlag, 1989. P. 131–166.
42. Сидоров Н. В., Чуфырев П. Г., Палатников М. Н. и др. Дефекты, фоторефрактивные свойства и колебательный спектр кристаллов ниобата лития разного состава // Нано и микросистемная техника. 2006. № 3. С. 12–17.
43. Кузьминов Ю. С. Ниобат и танталат лития. М.: Наука, 1975. 223 с.
44. Смоленский Г. А., Боков В. А., Исупов В. А., Крайник П. Н., Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. Л.: Наука, 1971. 476 с.

45. *Abrahams S. C., Reddy J. M., Bernstein J. L.* Ferroelectric Lithium Niobate. Single Crystal X-Ray Diffraction study at 24 °C // *J. Phys. Chem. Sol.* 1966. V. 27, № 6/7. P. 997-1012.
46. *Shiozaki Y., Mitsui T.* Powder neutron diffraction study of LiNbO_3 // *J. Phys. Chem. Solids*. 1963. № 24. P. 1057-1061.
47. Сандлер В. А., Сидоров Н. В., Палатников Н. М. Диэлектрические кристаллы: симметрия и физические свойства. Учеб. Пособие. Часть 2. Апатиты: Изд-во Кольского научного центра РАН, 2010. 175 с.
48. Воскресенский В. М., Стародуб О. Р., Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Маврин Б. Н. Моделирование кластерообразования в нелинейнооптическом кристалле ниобата лития // *Кристаллогр.* 2011. Т. 56, № 1. С. 26-32.
49. *Svaasand L. O., Erikrund M., Nakken G., Grand A. P.* Solid-Solution Range of LiNbO_3 // *J. Cryst. Growth*. 1974. V. 22, № 3. P. 230-232.
50. *Lerner P., Legras G., Dumas J. P.* Stoechiométrie des monocristaux de métaniobate de lithium // *J. Cryst. Growth*. 1968. V. 3, № 4. P. 231-236.
51. *Bordui P. F., Norwood R. G., Jundt D. H., Fejer M. M.* Preparation and characterization of off-congruent lithium niobate crystals // *J. Appl. Phys.* 1992. V. 71. P. 875-879.
52. *Baumann I., Rudolph P., Krabe D., Schalge R.* Orthoscopic investigation of the axial optical and compositional homogeneity of Czochralski grown LiNbO_3 // *J. Crystal Growth*. 1993. № 128. P. 903-909.
53. *Bernabé A., Prieto C., Andrés A.* Effect of stoichiometry on the dynamic mechanical properties of LiNbO_3 // *J. Appl. Phys.* 1996. № 79. P. 143-149.
54. *Schirmer O. F., Thiemann O., Wohlecke M.* Defects in LiNbO_3 // *J. Phys. Chem Solids*. 1991. № 52. P. 185-189.
55. Кузьминов Ю. С., Осико В. В. Нарушение стехиометрии в кристаллах ниобата лития // *Кристаллогр.* 1994. Т. 39, № 3. С. 530-533.
56. Кузьминов Ю. С. Нарушение стехиометрии при выращивании кристаллов ниобата лития // *Матер. квант. электроники*. 1997. № 5. С. 55-59.
57. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Калинин В. Т. Спектры комбинационного рассеяния света и особенности строения кристаллов ниобата лития // *Опт. и спектр.* 1997. Т. 82, № 1. С. 38-45.
58. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Серебряков Ю. А., Лебедева Е. Л., Калинин В. Т. Особенности структуры, свойства и спектры комбинационного рассеяния света кристаллов ниобата лития различного химического состава // *Неорган. матер.* 1997. Т. 33, № 4. С. 496-506.
59. *Wilkinson A. P., Cheetham A. K., Jarman R. H.* The defect structure of congruently melting lithium niobate // *J. Appl. Phys.* 1993. V. 74. P. 3080.
60. *Donnerberg H., Tomlinson S. M., Catlow C. R. A., Schirmer O. F.* Computer-simulation studies of intrinsic defects in LiNbO_3 // *Phys. Rev.* 1989. V. 40, № 17. P. 11909-11916.
61. *Abrahams S. C., Marsh P.* Defect structure dependence on composition in lithium niobate // *Acta Cryst. B*. 1986. V. 42, № 1. P. 61-68.
62. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Калинин В. Т. Микро- и наноразмерные неоднородности структуры в кристаллах ниобата лития разного состава и их влияние на эффект фоторефракции // *Материалы Междунар. науч. конф. "Оптика кристаллов и наноструктур"*. Хабаровск, 2008. С. 62.

63. Nassau K., Levinstein H. G. Ferroelectric behavior of lithium niobate // Appl. Phys. Lett. 1965. V. 6, № 11. P. 228-229.
64. Евланова Н. Ф. Доменная структура монокристаллов метаниобата лития, выращенных методом Чохральского: дис. канд. физ.– мат. наук: 01.04.18. М., МГУ, 1978. 160 с.
65. Кузьминов Ю. С., Сегнетоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением. М.: Наука, 1975. 224 с.
66. Rauber A. Chemistry and Physics of Lithium Niobate. Current Topic in Materials Science // Ed. Kaldis E. Amsterdam: North-Holland. 1978. V. 1. P. 481-501.
67. Abdi F., Fontana M. D., Aillerie M., Bourson P. Coexistence of Li and Nb vacancies in the defect structure of pure LiNbO_3 and its relationship to optical properties // J. Appl. Phys. A. 2006. V. 83, № 3. P. 427-434
68. Воробьев Ю. П., Карбань О. В. Дефекты оксидных кристаллов // Журн. неорганической химии. 2002. Т. 47, № 5. С. 738-747.
69. Riley J. E. The effects of lithium isotopic anomalies on lithium niobate // Ferroelectrics. 1987. V. 75. P. 59-62.
70. Nassau K., Lines M. E. Stacking fault model for stoichiometry deviation in LiNbO_3 and LiTaO_3 and the effect on the Curie temperature // J. Appl. Phys. 1970. V. 41. P. 533-537.
71. Бурачас С. Ф., Васильев А. А., Инполитов М. С. Влияние кластерных дефектов переменного состава на оптические и радиационные характеристики оксидных кристаллов // Кристаллогр. 2007. Т. 52, № 6. С. 11-15.
72. Zotov N., Boysen H., Frey F. Cation Substitution Models of congruent LiNbO_3 Investigated by X-Ray and Neutron Powder Diffraction // J. Phys. Chem. Solids. 1994. V. 55, № 2. P. 145-152.
73. Fay H., Alford N. D., Dess H. M. Dependences of second harmonic phase matching temperature in LiNbO_3 crystals on melt composition // Appl. Phys. Lett. 1968. V. 12, № 3. P. 89-92.
74. Kovacs L., Polgar K., Density Measurements on LiNbO_3 Crystals Confirming Nb Substitution for Li // Cryst. Res. Technol. 1986. V. 21, № 6. P. 101-106.
75. Feng S., Jin Q., Li B., Guo Z. Empirical calculations of the formation of intrinsic defects in lithium niobate // J. Cond. Mat. 2000. V. 12. P. 11-16.
76. Holmes R. J., Minford W. J. The effect of boule compositional variations on the properties of LiNbO_3 electro-optic devices – an interpretation from defect chemistry studies // Ferroelectrics. 1987. V. 75. P. 63-70.
77. Iyi N., Kitamura K., Izumi F. and & Comparative study of defect structures in lithium niobate // J. Sol. St. Chem. 1992. V. 101. P. 340.
78. Нашельский А. Я. Производство полупроводниковых материалов. М.: Металлургия, 1989. 270 с.
79. Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Кравченко О. Э., Маслобоева С. М., Макарова О. В., Ефремов В. В. Синтез однородно легированной Mg шихты ниобата лития и исследование влияния неметаллических примесей на свойства кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ // Ж. неорг. химии. 2016. Т. 61, № 1. С. 20-25.
80. Палатников М. Н., Маслобоева С. М., Бирюкова И. В., Макарова О. В., Сидоров Н. В., Ефремов В. В. Влияние способа приготовления твердых прекурсоров $\text{Nb}_2\text{O}_5\text{:Mg}$ на характеристики полученных на их основе кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ // Журн. неорганической химии. 2014. Т. 59, № 3. С. 318-322.

81. Смирнов А. Б., Педько Б. Б. Связь локальной оптической неоднородности и микродоменной структуры ниобата лития // Кристаллогр. 2005. Т. 50, № 1 С. 132–134.
82. Shur V. Ya. Kinetics of ferroelectric domains: Application of general approach to LiNbO_3 and LiTaO_3 // J. Mater. Science. 2006. V. 41, № 1. P. 199–210.
83. Сангвал К. Травление кристаллов: Теория, эксперимент, применение. Пер. с англ. М.: Мир, 1990. 492 с.
84. Иванова В. М., Баланкин А. С., Бунин И. Ж., Оксогоев А. А. Синергетика и фракталы в материаловедении. М.: Наука, 1994. 383 с.
85. Bardsley W., Hurle D. T. J., Hart M., Lang A. R. Structural and chemical inhomogeneities in germanium single crystals grown under conditions of constitutional supercooling // J. Cryst. Growth. 1980. V. 49, № 4. P. 612–630.
86. Кожитов Л. В., Косушкин В. Г., Крапухин В. В., Пархоменко Ю. Н. Технология материалов микро- и нанoeлектроники. М.: МИСИС, 2007. 544 с.
87. Николис Г., Пригожин И. Самоорганизация в неравновесных системах. М.: Мир, 1979. 512 с.
88. Шустер Г. Детерминированный хаос. М.: Мир, 1988. 210 с.
89. Черная Т. С., Волк Т. Р., Верин И. А. и др. Пороговые концентрации в допированных цинком кристаллах ниобата лития и их структурная обусловленность // Кристаллогр. 2008. Т. 53, № 4. С. 612.
90. Abdi F., Aillerie M., Fontana M., Bourson P., Volk T., Maximov B., Sulyanov S., Rubinina N., Wöhlecke M. Influence of Zn doping on electrooptical properties and structure parameters of lithiumniobate crystals // Appl. Phys. B. 1999. № 68. P. 795–799.
91. Aillerie M., Bourson P., Mostefa M., Abdi F., & Fontana M. Photorefractive Damage in congruent LiNbO_3 . Part I. Zinc doped Lithium Niobate Crystals // J. Phys.: Conference Series. 2013. V. 416. P. 012001.
92. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Теплякова Н. А., Габаин А. А., Ефремов И. Н. Фоторефрактивные свойства конгруэнтных кристаллов ниобата лития, легированных цинком // Персп. матер. 2015. № 7. С. 5-14.
93. Schlarb U., Woehlecke M., Gather B., Reichert A., Betzler K., Volk T., Rubinina N.. Refractive indices of Zn-doped lithium niobate // Opt. Mater. 1995. V. 4. P. 791-795.
94. Zhang Y., Xu Y. H., Li M. H., Zhao Y. Q. Growth and properties of Zn doped lithium niobate crystal // J. Crys. Growth. 2001. V. 233. P. 537-540.
95. Zhao L., Wang X., Wang B., Wen W., Zhang T.-Y. ZnO-doped LiNbO_3 single crystals studied by X-ray and density measurements // Appl. Phys. B. 2004. V. 78, № 6. P. 769-774.
96. Palatnikov M. N., Biryukova I. V., Makarova O. V., Sidorov N. V., Efremov V. V., Efremov I. N., Teplyakova N. A., Manukovskaya D. V. Research of Concentration Conditions for Growth of Strongly Doped $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ Single Crystals. Advanced Materials – Manufacturing, Physics, Mechanics and Applications, Ivan A. Parinov, Shun-Hsyung, Vitaly Yu. Topolov (Eds.). Heidelberg, New York, Dordrecht, London: Springer Proceedings in Physics, 2016. V. 175. 707 p. DOI: 10.1007/978-3-319-26324-3. P. 87-99.
97. Сидоров Н. В., Яничев А. А., Палатников М. Н., Габаин А. А., Пикуль О.Ю. Оптическая однородность, дефекты и фоторефрактивные свойства стехиометрического, конгруэнтного и легированных цинком кристаллов ниобата лития // Опт. и спектр. 2014. Т. 117, № 1. С. 76–85.

98. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Калинин В. Т. Влияние вторичной структуры на оптические свойства сегнетоэлектрических кристаллов ниобата лития с низким эффектом фоторефракции // Тр. Кольского научного центра РАН. Химия и материаловедение. Апатиты, 2015. С. 464-468.
99. Сидоров Н. В., Палатников М. Н. и др. Собственный, примесный и индуцированный лазерным излучением структурный беспорядок в фоторефрактивных кристаллах ниобата лития и его проявление в спектре КРС. КРС 85 лет исследований / ред. Втюрин А.Н. Красноярск, 2013. С. 51-86.
100. Сидоров Н. В., Серебряков Ю. А. Структурное упорядочение и фоторефракция в кристаллах ниобата лития // Тр. второй международной конференции "Реальная структура и свойства ацентричных кристаллов". Александров: ВНИИСИМС, 1995. С. 327-337.
101. Metzger T. Diploma Thesis. TU Munchen, 1993.
102. Борн М., Кунь Х. Динамическая теория кристаллических решеток. М.: Издательство, 1958. 488 с.
103. Динамическая теория и физические свойства кристаллов. Под ред. А. Н. Лазарева. С-Пб.: Наука, 1992. 200 с.
104. Simon M., Jermann F., Volk N., Kratzig E. Influence of zinc doping on the photorefractive properties of lithium niobate // Phys. Stat. Sol. A. 1995. V. 149. P. 723-728.
105. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М.: Наука, 1970. 855 с.
106. Меланхолин Н. М. Методы исследования оптических свойств кристаллов. М.: Наука, 1970. 155 с.
107. Константинова А. Ф., Гречушников Б. Н., Бокуть Б. В., Валяшко Е. Г. Оптические свойства кристаллов. Минск: Наука и техника, 1995. 302 с.
108. Veiras F. E., Garea M. T., Perez L. I. Wide angle conoscopic interference patterns in uniaxial crystals // Appl. Opt. 2012. V. 51, № 15. P. 3081-3090.
109. Gao Ch. Y., Xia H. R., Xu J. Q., Si Sh. Ch., Zhang H. J., Wang J. Y., Song H. L. Theoretical and experimental study on the conoscopic interference in uniaxial crystal (Ca_{0.28}Ba_{0.72})x(Sr_{0.60}Ba_{0.40})1-xNb₂O₆ // Cryst. Research and Technology. 2007. V. 42, № 11. P. 1126-1131.
110. Veiras F. E., Pérez G., Garea M. T., Perez L. I. Characterization of uniaxial crystals through the study of fringe patterns // J. Phys.: Conf. Ser. 2011. V. 274. P. 012030.
111. Lee P., Pors J., van Exter M., Woerdman J. Simple method for accurate characterization of birefringent crystals // Appl. Opt. 2005. V. 44. P. 866-870.
112. Clarke D. Interference effects in single wave plates // J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 2004. V. 6. P. 1036-1040.
113. Li W., Shen W., Wang Y. Measurement of optic axis direction based on interference fringe method // Semiconduct. Photon. Technol. 2006. V. 12, № 3. P. 188-193.
114. Su D., Hsu C. Method for determining the optical axis and (ne, no) of a birefringent crystal // Appl. Opt. 2002. V. 41. P. 3936-3940.
115. Stoiber R., Morse S., Microscopic Identification of Crystals, the Ronald Press Company, New York, 1972.
116. Kolesnikov A. I. et al. Isochrome shapes in the conoscopic patterns of uniaxial crystals // Ferroelectrics. 2012. T. 441, № 1. C. 75-83.
117. Van Horn B., Winter H. Analysis of the conoscopic measurement for uniaxial liquid-crystal tilt angles // Appl. Opt. 2001. V. 40. P. 2089-2094.

118. *Pikoul O. Y.* Determination of optical sign of a crystal by conoscopic method // *J. Appl. Cryst.* 2010. V. 43. P. 949-954.
119. *Dumitrascu L., Dumitrascu I., Dorohoi D. O., Subbarao E. C., Shirane G., Jona F.* Conoscopic method for determination of main refractive indices and thickness of a uniaxial crystal cut out parallel to its optical axis // *J. Appl. Cryst.* 2009. V. 42. P. 878-884.
120. *Romanyuk M. O., Andriyevsky B., Kostetsky O., Romanyuk M. M., Stadnyk V.* Crystal optical method for temperature measuring // *Cond. Matter Phys.* 2002. V. 5, № 3(31). P. 579-586.
121. *Wang A., Gao Ch. Y., Xu J. Q., Zhang H. J., Sun Sh. Q.* Conoscopic interferometry for probing electro-optic coefficient of strontium calcium barium niobate crystal // *Optics and Lasers in Engineering.* 2011. V. 49, № 7. P. 870-873.
122. *Лопатина П. С., Кривитон В. В.* Распределение индуцированного двулучепреломления в кристалле ниобата лития в неоднородном внешнем электрическом поле // *Опт. журнал.* 2010. Т. 77, № 6. С. 61-63.
123. *Штукенберг А. Г., Пунин Ю. О.* Оптические аномалии в кристаллах. СПб.: Наука, 2004. 263 с.
124. *Пикуль О. Ю., Сидоров Н. В.* Лазерная коноскопия кристаллов: учеб. пособие для вузов. Под ред. М. Н. Палатникова. Апатиты: КНЦ РАН, 2014. 160 с.
125. *Пикуль О. Ю., Строганов В. И.* Интерференция оптических волн в кварцевых линзах // *Принципы и процессы создания неорганических материалов: материалы международного симпозиума (Третьи Самсоновские чтения).* Хабаровск: ДВО РАН, 2006. С. 331-332.
126. *Tentory D., Camacho J.* Conoscopic evalution of the birefringence of gradient-index lenses: infidelity sources // *Appl. Opt.* 2002. V. 41, № 34. P. 7218-7228.
127. *Шубников А. В.* Основы оптической кристаллографии. М.: Изд-во АН СССР, 1958. 207 с.
128. *Татарский В. Б.* Кристаллооптика и иммерсионный метод исследования минералов. Изд-во Недрa, 1965.
129. *Рудой К. А., Строганов В. И., Алексеева Л. В., Пикуль О. Ю., Кидяров Б. И., Пасько П. Г.* Волны гирации в оптических кристаллах // *ИВУЗ. Физика.* 2005. Т. 48, № 1. С. 6-10.
130. *Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Строганов В. И.* Необыкновенная волна в оптически активных кристаллах // *ИВУЗ. Приборостроение.* 2005. № 12. С. 43-45.
131. *Константинова А. Ф., Рудой К. А., Набатов Б. В., Евдищенко Е. А., Строганов В. И., Пикуль О. Ю.* Влияние оптической активности на интенсивность и параметры поляризации прошедшего света в кристаллах // *Кристаллогр.* 2003. Т. 48, № 5. С. 884-892.
132. *Рудой К. А., Набатов Б. В., Строганов В. И., Константинова А. Ф., Алексеева Л. В., Евдищенко Е. А., Кидяров Б. И.* Коноскопические картины в оптически активных одноосных кристаллах // *Кристаллогр.* 2003. Т. 48, № 2. С. 334-339.
133. *Пикуль О. Ю., Строганов В. И., Карпец Ю. М.* Коноскопические картины в оптически активных кристаллических пластинках // *ИВУЗ. Приборостроение.* 2008. № 5. С. 61-64.
134. *Константинова А. Ф., Головина Т. Г., Константинов К. К.* Проявление оптической активности в различных веществах // *Кристаллогр.* 2014. Т. 59, №. 4. С. 509-509.

135. *Geday M. A., Glazer A. M.* A new view of conoscopic illumination of optically active crystals // *J. Appl. Cryst.* 2002. V. 35. P. 185-190.
136. *Рудой К. А.* Коноскопические картины оптически активных кристаллов парателлурита и иодата лития: автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. Хабаровск, 2003. 16 с.
137. *Компанейцев В. П.* Уравнение изогирь для одноосных и двуосных кристаллов // *Кристаллогр.* 2006. Т. 51, № 4. С. 680-685.
138. *Shim Y., Uneme N., Abdullayeva S., Mamedov N., Yamamoto N.* Light figure studies of optical anisotropy induced by nanoscale spatial modulation in TlInS₂ // *J. Phys. Chem. Sol.* 2005. V. 66, № 11. P. 2116-2121.
139. *Egorov R. I., Kiselev A. D.* Conoscopic patterns in photonic band gap of cholesteric liquid crystal cells with twist defects // *Jpn. J. Appl. Phys.* 2009. V. 29. P. 131-137.
140. *Wu Y. H., Lee J. H., Lin Y. H., Ren H., Wu S. T.* Simultaneous measurement of phase retardation and optic axis of a phase compensation film using an axially-symmetric sheared polymer network liquid crystal // *Opt. Express.* 2005. V. 13(18). P. 7045-7051.
141. *Yamamoto N., Mamedov N., Shim Y., Hidaka C., Takizawa T., Niwa E., Masumodo K. J.* Light figure spectroscopy of optically active anisotropic materials // *J. Phys. Chem. Sol.* 2003. V. 64, № 9-10. P. 1959-1962.
142. *Пикуль О. Ю., Строганов В. И.* Способ визуального определения форм поляризации оптического излучения. Пат. 2401446 Российская Федерация, МПК G02B 26/06, G01J 4/00 (2006.01). заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2009107935/28; заявл. 05.03.2009; опубл. 10.10.2010, Бюл. № 28.
143. *Piquero G., Vargas-Balbuena J.* Non-uniformly polarized beams across their transverse profiles: an introductory study for undergraduate optics courses // *Eur. J. Phys.* 2004. V. 25. P. 793-800.
144. *Egorov Y. A., Fadeeva T. A., Volyar A. V.* The fine structure of singular beams in crystals: colours and polarization // *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* 2004. V. 6. P. 217-228.
145. *Volyar A., Shvedov V., Fadeeva T., Desyatnikov A., Neshev D., Krokowski W., Kivshar Y.* Generation of single-charge optical vortices with an uniaxial crystal // *Opt. Exp.* 2006. V. 14, № 9. P. 3724-3729.
146. *Flossmann F., Schwarz U., Maier M., Dennis M.* Polarization singularities from unfolding an optical vortex through a birefringent crystal // *Phys. Rev. Lett.* 2005. V. 95. P. 253901.
147. *Berry M., Dennis M.* The optical singularities of birefringent dichroic chiral crystals // *Proc. R. Soc. Lond. A.* 2003. V. 459. P. 1261.
148. *Воляр А. В., Шведов В. Г., Фадеева Т. А.* Структура непараксиального гауссова пучка вблизи фокуса. 2. Оптические вихри // *Опт. и спектр.* 2001. Т. 90, № 1. С. 104-112.
149. *Воляр А. В., Фадеева Т. А., Егоров Ю. А.* Векторные сингулярности гауссовых пучков в одноосных кристаллах: генерация оптических вихрей // *Письма в Журн. Техн. Физ.* 2002. Т. 28, № 22. С. 70-77.
150. *Воляр А. В., Фадеева Т. А.* Генерация сингулярных пучков в одноосных кристаллах // *Опт. и спектр.* 2001. Т. 94, № 2. С. 264-274.
151. *Ciattoni A., Cicotti G., Palma C.* Circularly polarized beams and vortex generation in uniaxial media // *J. Opt. Soc. Am. A.* 2003. V. 20, № 1. P. 163-171.

152. *Brasselet E., Murazawa N., Misawa H., Juodkazis S.* Optical vortices from liquid crystal droplets // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 103. 103903.
153. *Buinyi I. O., Denisenko V. G., Soskin M. S.* Topological structure in polarization resolved conoscopic patterns for nematic liquid crystal cells // *Opt. Comm.* 2009. V. 282. P. 143-155.
154. *Pekka H. A., Friberg A. T., Kailova M. A., Salomaa M. M.* Conoscopic interferometry of surface-acoustic-wave substrate crystals // *Appl. Opt.* 1999. V. 38. P. 5399-5407.
155. *Angelsky O. V., Mokhun I. I., Mokhun A. I., Soskin M. S.* Interferometric methods in diagnostics of polarization singularities // *Phys. Rev. E.* 2002. V. 65, № 3. 5 p.
156. *Chatterjee S., Pavan Kumar Y.* Simple technique for the generation of plane surface normal to optic axis direction of uniaxial crystal // *Appl. Opt.* 2007. V. 46. P. 1435-1445.
157. *Rudoy K. A., Stroganov V. I., Pikoul O. Y., Kulikova G. V., Alekseeva L. V.* Two crystal plates variable phase retarder system [Electronic resource] // *Optik - Int. J. Light Electron Opt.* 2012. Access mode: <http://www.dx.doi.org/10.1016/j.ijleo.2012.07.034>
158. *Влох О. Г.* Явления пространственной дисперсии в параметрической кристаллооптике. Львов: Высшая шк.; Изд-во при Львов. ун-те, 1984. 156 с.
159. *Zhou Y., Liu L., Zhang J., Liu D., Luan Z.* Nearly-off-axis transmissivity of Solc birefringent filters // *J. Opt. Soc. Amer. A.* 2003. V. 20, № 4. P. 733-740.
160. *Москалев В. А., Нагибина И. М., Полушкина Н. А., Рудин В. Л.* Прикладная физическая оптика. СПб.: Политехника, 1995. 528 с.
161. *Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Строганов В. И., Кидяров Б. И., Пасько П. Г.* Поляризационная неустойчивость и сверхчувствительность коноскопических фигур оптических кристаллов // *ИВУЗ. Приборостроение.* 2005. № 9. С. 37-41.
162. *Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Ливашвили А. И., Доронин В. И., Строганов В. И.* Спиралевидная структура в коноскопических фигурах оптически активных кристаллов // *Опт. журнал.* 2005. Т. 72, № 2. С. 69-70.
163. *Пикуль О. Ю.* Устройство для определения оптического знака оптически активного кристалла. Патент на полезную модель № 164814 МПК G01N 21/21, МПК G01M 11/00. Заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2016117642/28. заявл. 04.05.2016. опубли. 20.09.2016. Бюл. № 26. 24 с.
164. *Пикуль О. Ю.* Способ определения положения оптической оси фазовой анизотропной кристаллической пластинки $\lambda/4$. Пат. 2442972 Российская Федерация, МПК G01N 21/21 (2006.01). Заявитель и патентообладатель ФГБОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2010123768/28; заявл. 10.06.2010; опубли. 20.02.2012, Бюл. № 5.
165. *Пикуль О. Ю.* Устройство для определения оптического знака кристалла. Пат. 2319942 Российская Федерация, МПК G01M 11/02, G02B 26/06.(2006.01). Заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2006114978/28; заявл.02.05.2006; опубли. 20.03.2008, Бюл. № 8.
166. *Осипов Ю. В.* Интерференционно-поляризационные свойства кристалло-оптической бифокальной линзы // *Опт. журнал.* 1998. Т. 65, № 3. С. 25-29.
167. *Mamedov N., Yamamoto N., Shim Y., Yuichiro N., Takizawa T.* Extended application of light figures to optically active materials with transversally isotropic dielectric function // *Jap. J. Appl. Phys. Pt. 1.* 2003. V. 42, № 8. P. 5145-5152.

168. *Vasyukiv Yu., Nastishin Yu., Vlokh R.* Conoscopic patterns for optically uniaxial gyrotropic crystals in the vicinity of isotropic point // *Ukr. J. Phys. Opt.* 2006. V. 7, № 3. P. 89-99.
169. *Syuy A. V., Stroganov V. I.* Interference of conoscopic pictures of optical crystals // *Opt. Commun.* 2008. V. 281. P. 5935-5938.
170. *Пикуль О. Ю., Алексеева Л. В., Повх И. В., Строганов В. И., Рудой К. А., Толстов Е. В., Криштон В. В.* Особенности оптической системы для наблюдения коноскопических фигур больших размеров // *ИВУЗ. Приборостроение.* 2004. Т. 47, № 12. С. 53-55.
171. *Шерклифф У.* Поляризованный свет. М.: Мир, 1965. 264 с.
172. *Ландсберг Г. С.* Оптика. М.: Наука, 1957. 760 с.
173. *Константинова А. Ф., Евдищенко Е. А., Имангазиева К. Б.* Проявление оптической активности в кристаллах различных классов симметрии // *Кристаллогр.* 2006. Т. 51, № 6. С. 1063-1074.
174. *Най Дж.* Физические свойства кристаллов М.: Мир, 1967. 385 с.
175. *Pikoul O. Y., Kulikova G. V., Stroganov V. I.* The peculiarities of conoscopic patterns of optical crystals // *Pacific Science Review (Proceedings of the 10th Asia-Pacific Conference on Fundamental Problems of Opto- and Microelectronics, July 12-15, 2010 at Kangnam University).* V. 12, № 1. P. 129-132.
176. *Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Строганов В. И.* Нетрадиционные свойства «мальтийского креста» в коноскопических фигурах оптических кристаллов // *Оптика: тр. IV Междунар. конф. молодых ученых и специалистов.* СПб.: СПбГУ ИТМО, 2005. С. 44-45.
177. *Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Строганов В. И.* Особенности формирования «мальтийского креста» в коноскопических картинах // *Оптический журнал.* 2008. Т. 75, № 7. С. 84-87.
178. *Pikoul O. Y., Kovalenko L. L.* Effect of angular intensity distribution of radiation on a conoscopic pattern of crystal // *J. Phys.: Conference Series.* 2016. V. 735. P. 012061.
179. *Калитеевский Н. И.* Волновая оптика: учеб. пособие для вузов. 3-е изд., перераб. и доп. М.: Высш. шк., 1995. 463 с.
180. *Пикуль О. Ю., Строганов В. И.* Одновременное наблюдение двух дополнительных друг к другу коноскопических картин (за счет отражения от анализатора) // *Бюлл. научн. сообщений № 10: сб. науч. тр. Хабаровск: Изд-во ДВГУПС,* 2005. С. 44-46.
181. *Ярив А., Юх П.* Оптические волны в кристаллах М.: Мир, 1987. 616 с.
182. *Pikoul O. Yu.* Determination of optical sign of a crystal by conoscopic method // *Proc. of SPIE.* V. 7822 P. 78220M-1 doi: 10.1117/12.885653.
183. *Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Строганов В. И.* Влияние поляризации излучения на структуру коноскопических фигур кристаллов // *Прикл. оптика: сб. тр. VI Междунар. конф. – СПб.: СПбГУ ИТМО,* 2004. Т. 2. С. 77.
184. *Ахманов С. А., Никитин С. Ю.* Физическая оптика М.: Изд-во Московского ун-та, 1998. 656 с.
185. *Желудев И. С.* Электрические кристаллы М.: Наука, 1979. 200 с.
186. *Блистанов А. А., Бондаренко В. С., Чкалова В. В.* Акустические кристаллы: справочник под ред. М. П. Шаскольской. М.: Наука, 1982. 632 с.

187. Рудой К. А., Строганов В. И., Пасько П. Г., Кидяров Б. И., Дударь Ж. Е. Коноскопические фигуры в системе двух кристаллических пластинок из оптически активных кристаллов // ИВУЗ. Приборостроение. 2003. Т. 46, № 3. С. 57-60.
188. Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Строганов В. И. Способ определения оптического знака кристалла. Пат. 2366916 Российская Федерация, МПК G01M 11/02, G02B 26/06 (2006.01). заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2007147749/28; заявл. 20.12.2007; опубл. 10.09.2009, Бюл. № 25.
189. Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981. 638 с.
190. Снопко В. Н. Поляризационные характеристики оптического излучения и методы их измерения. Мн.: Наука и техника, 1992. 336 с.
191. Панков Э. Д., Коротаев В. В. Поляризационные угломеры. М.: Недра, 1991. 240 с.
192. Волкова Е. А. Поляризационные измерения М.: Изд-во стандартов, 1974. 156 с.
193. Джерард А., Берч Дж. М. Введение в матричную оптику. М.: Наука, 1978. 336 с.
194. Сюй А. В., Кравцова Н. А., Строганов В. И., Криштон В. В. Параметрический метод построения эллипса поляризации излучения // ИВУЗ. Приборостроение. 2008. Т. 1, № 10. С. 65-69.
195. Мустель Е. Р., Парыгин В. Н. Методы модуляции и сканирования света. М.: Наука, 1970. 179 с.
196. Гончарова П. С., Криштон В. В., Сюй А. В., Толстов Е. В., Пикуль О. Ю. Электрооптическое управление немонахроматическим светом в системе из двух анизотропных кристаллов // Вестник СПбГПУ. 2012. Т. 141, № 1. С. 82-85.
197. Шишловский А. А. Прикладная физическая оптика. М.: Физматгиз, 1961. 822 с.
198. Симоненко З. Г., Скобелин А. А. Расчет линейной двулучепреломляющей пластинки // Диагностика и функциональный контроль качества оптических материалов: науч. сб. СПб.: СПбГУ ИТМО, 2004. С. 205-211.
199. Veiras F. E., Perez L. I., Garea M. T. Phase shift formulas in uniaxial media: an application to waveplates // Appl. Opt. 2010. V. 49. P. 2769-2777.
200. Guo H., Weng X., Sui G., Dong X., Gao X., Zhuang S. Propagation of an arbitrary incident light in a uniaxially planar slab // Opt. Commun. 2011. V. 284. P. 5509-5512.
201. Avendaño-Alejo M., Rosete-Aguilar M. Optical path difference in a plane-parallel uniaxial plate // J. Opt. Soc. Am. A. 2006. V. 23. P. 926-932.
202. Bodnar I. T., Anatska M. P. Polarization state transformation of laser beam passing through quartz crystals // Proceedings "Bianisotropics 2000" (VIII Intern. Conf. on Electromagnetics of Complex Media, Lisbon, 27-29 September, 2000). 2000. P. 83-86.
203. Pikoul O. Yu. Use of $\lambda/4$ phase plate in laser conoscopic method // Optik. 2018. V. 161. P. 146-150.
204. Пикуль О. Ю. Поляризационные свойства излучения, прошедшего через кристаллическую пластинку // ИВУЗ. Приборостроение: тематический выпуск. 2007. Т. 50, № 9. С. 55-61.

205. Андреев П. С., Строганов В. И., Алексеева Л. В., Пикуль О. Ю., Кидяров Б. И., Пасько П. Г. Управление эллиптичностью излучения при повороте плоскопараллельной кристаллической пластинки // ИВУЗ. Физика. 2008. № 11. С. 108-110.
206. Пикуль О. Ю. Устройство для преобразования форм поляризации излучения. Пат. 48080 Российская Федерация, МПК7 G 02 B 26/00; заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2005108832; заявл. 28.03.2005; опубл. 10.09.2005, Бюл. № 25.
207. Vogel W., Berroth M. Tuneable liquid crystals Fabry – Perot filters // Proceedings SPIE. 2002. V. 4944. P. 293.
208. Гольцер И. В., Даршн М. Я., Зельдович Б. Я., Кундикова Н. Д. Оптически активный аналог четвертьволновой пластинки // Квант. электроника. 1993. Т. 20, № 9. С. 916-918.
209. Чудаков В. С. Составные фазовые пластинки с разнотолщинными элементами // Кристаллогр. 2003. Т. 48, № 5 С. 893-896.
210. Бибикова Э. А., Кундикова Н. Д., Розачева Л. Ф. Преобразование поляризации когерентного света составной фазосдвигающей системой // Изв. Челябинского научн. центра. 2004. Вып. 3. С. 22–26.
211. Уткин Г. И., Евдищенко Е. А., Константинова А. Ф. Полуволновое устройство из гиротропных кристаллов // Кристаллогр. 1999. Т. 44, № 5. С. 897-900.
212. Евдищенко Е. А., Константинова А. Ф., Уткин Г. И. Фазовые пластинки с наклонной оптической осью из негиротропных и гиротропных кристаллов // Кристаллогр. 1998. Т. 43, № 2. С. 327-331.
213. Витязев А. В., Демченко В. А., Коротаев В. В. Влияние поворотов линейных фазовых пластинок на состояние поляризации излучения // Опт. журн. 1998. Т. 65, № 1. С. 34-37.
214. Витязев А. В., Демченко В. А., Коротаев В. В. Влияние поворотов пленочных поляроидов на состояние поляризации излучения // Опт. журн. 1998. Т. 65, № 1. С. 38-40.
215. Запасский В. С., Александров Е. Б. Полярный свет и симметрия электрооптических эффектов // Опт. и спектр. 2003. Т. 95, № 2. С. 253-278.
216. Куликова Г. В., Пикуль О. Ю., Строганов В. И. Управление степенью поляриности света // Опт. и спектр. 2011. Т. 111, № 2. С. 345-348.
217. Kulikova G. V., Andreev P. S., Pikoul O. J., Stroganov V. I. Characteristics of the radiation received at addition of beams with not orthogonal polarization // Proc. of SPIE. V. 7822. P. 78220L-1. doi: 10.1117/12.886030.
218. Zhan Q. Cylindrical vector beams: from mathematical concepts to applications // Adv. Opt. Phot. 2009. V. 1. P. 51-57.
219. Kozawa Y., Sato S. Sharper focal spot formed by higher-order radially polarized laser beams // J. Opt. Soc. Am. A. 2007. V. 24. P. 1793.
220. Rao L., Pu J., Chen Z., Yei P. Focus shaping of cylindrically polarized vortex beams by a high numerical-aperture lens // Opt. Las. Techn. 2009. V. 41. P. 241-246.
221. Котляр В. В., Стафеев С. С. Моделирование острой фокусировки радиально-поляризованной лазерной моды с помощью конического и бинарного микроаксиконов // Комп. оптика. 2009. Т. 33, № 1. С. 52-60.
222. Zhan Q., Leger J. R. Focus shaping using cylindrical vector beams // Opt. Express. 2002. V. 10, № 7. P. 324-331.

223. *Kawauchi H., Yonezawa K., Kozawa Y., Sato S.* Calculation of optical trapping forces on a dielectric sphere in the ray optics regime produced by a radially polarized laser beam // *Opt. Lett.* 2007. V. 32. P. 1839.
224. *Gupta D. N., Kant N., Kim D. E., Suk H.* Electron acceleration to GeV energy by a radially polarized laser // *Phys. Lett. A.* 2007. V. 368. P. 402-407.
225. *Карпеев С. В., Хонина С. Н.* Оптическая схема для универсальной генерации и конверсии поляризационно-неоднородного лазерного излучения // *Комп. оптика.* 2009. Т. 33, № 3. С. 261-267.
226. *Nye J. F.* Natural focusing and fine structure of light: Caustics and wave dislocations. Bristol: Institute of Physics Publishing, 1999. 328 p.
227. *Воляр А. В., Фадеева Т. А.* Оптика сингулярностей поля маломодового волокна. II. Оптические вихри // *Опт. и спектр.* 1998. Т. 85, № 2. С. 295-303.
228. *Pikoul O. Yu.* Visualization of light polarization forms in the laser conoscopic method // *Optik.* 2018. V. 158. P. 349-354.
229. *Пикуль О. Ю., Куликова Г. В.* Визуализатор поляризации оптического излучения // *Бюллетень научн. сообщений № 14: сб. науч. тр. ДВГУПС; под ред. В. И. Строганова.* Хабаровск: Изд-во ДВГУПС, 2010. С. 23-26.
230. *Пикуль О. Ю.* Устройство для визуального определения интервала фазового сдвига эллиптически поляризованного излучения. Патент на полезную модель № 176600 МПК G01N 21/21, заявитель и патентообладатель ДВГУПС (RU) №2017118143 Заявл. 24.05.2017. Опубл. 24.01.2018. Бюл. № 3.
231. *Пикуль О. Ю., Куликова Г. В., Строганов В. И.* Влияние азимута поляризационного эллипса на коноскопические картины оптических кристаллов // *Научн. сессия НИЯУ МИФИ-2011. Научно-техн. Конф.-семинар по фотонике и информационной оптике: сб. науч. тр. М., 2011. С. 161-162.*
232. *Пикуль О. Ю., Строганов В. И.* Особенности коноскопических картин оптических кристаллов с эллиптически поляризованным излучением // *Тез. Докл. II Межд. научно-техн. Конф. «Поляризационная оптика». М.: Изд. МЭИ, 2010. С. 39-41.*
233. *Pikoul O. Y., Stroganov V. I.* Control the azimuth of polarization ellipse // *Asia-Pacific Conference on Fundamental Problems of Opto- and Microelectronics.* Самара-Москва, 2011.
234. *Пикуль О. Ю., Коваленко Л.Л., Строганов В. И.* Способ определения оптической оси четвертьволновой пластинки // *Тез. докл. VI Межд. конф. «ФПО – 2010».* СПб., 2010. С. 331-333.
235. *Федоров Ф. И., Филиппов В. В.* Отражение и преломление света прозрачными кристаллами. Мн.: Наука и техника, 1976. 224 с.
236. *Абен Х. К.* Об одном подходе к измерению разности фаз при помощи фазовых пластинок // *Опт. и спектр.* 1963. Т. 14, № 2. С. 240-246.
237. *Emam-Ismail M.* Retardation calculation for achromatic and apochromatic quarter and half wave plates of gypsum based birefringent crystal // *Opt. Comm.* 2010. V. 283, № 22. P. 4536-4540.
238. *Emam-Ismail M.* Spectral variation of the birefringence, group birefringence and retardance of a gypsum plate measured using the interference of polarized light // *Opt. Laser Technol.* 2009. V. 41(5). P. 615-621.
239. *Liu J., Cai Y., Chen H., Zeng X., Zou D., Xu Sh.* Design for the optical retardation in broadband zero-order half-wave plates // *Opt. Expr.* 2011. V. 19, № 9. P. 8557-8564.

240. *Hariharan P.* Broad-band superachromatic retarders // *Meas. Sci. Technol.* 1998. V. 9(10). P. 1678-1681.
241. *Koesrter C. J.* Achromatic combinations of half-wave plates // *J. Opt. Soc. Am.* 1959. V. 49(4). P. 405-409.
242. *Beckers J. M.* Achromatic linear retarders // *Appl. Opt.* 1971. V. 10(4). P. 973-975.
243. *Hariharan P.* Broad-band apochromatic retarders: choice of materials // *Opt. Laser Technol.* 2002. V. 34(7). P. 509-511.
244. *Hariharan P.* Achromatic and apochromatic halfwave and quarterwave retarders // *Opt. Eng.* 1996. V. 35(11). P. 3335-3337.
245. *Montarou C. C., Gaylord T. K.* Two-wave-plate compensator method for single-point retardation measurements // *Appl. Opt.* 2004. V. 43, № 36. P. 6580-6595.
246. *Samoïlov A. V., Samoïlov V. S., Klimov A. S., Oberemok E. A.* Properties of multicomponent achromatic and superachromatic zero-order wave plates // *J. Opt. Techn.* 2009. V. 76, № 5. P. 312-315.
247. *Seung K. J., Keun C. J.* Achromatic polarization rotator and circular polarizer consisting of two wave plates of the same material // *J. Korean Phys. Soc.* 2006. V. 48, № 1. P. 51-55.
248. *Пикуль О. Ю., Куликова Г. В., Строганов В. И.* Трансформация коноскопических картин кристалла при изменении оптической системы наблюдения // *ИВУЗ. Приборостроение.* 2013. № 1. С. 55-58.
249. *Syuy A. V., Stroganov V. I.* Interference of conosopic pictures of optical crystals // *Opt. Commun.* 2008. V. 281. P. 5935-5938.
250. *Тихонов Е. А., Киселев О. В.* Интерферометрический метод измерения угловой расходимости лазерных пучков // *Опт. журн.* 2007. Т. 74, № 4. С. 42-46.
251. *Пикуль О. Ю., Рудой К. А., Строганов В. И.* Пат. 2271531 Российская Федерация, МПК G01N 21/21 (2006.01). Способ определения угловой апертурной характеристики оптической активности кристалла; заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2004123315/28; заявл. 28.07.2004; опубл. 10.03.2006, Бюл. № 7.
252. *Боднарь И. Т., Трухан В. М., Маренкин С. Ф.* Термооптические и поляризационные характеристики монокристалла CdP2 // *Инж. физика.* 2006. № 1. С. 32-38.
253. *Пикуль О. Ю.* Определение поляризационных свойств волны гирации интерференционным способом // *Бюлл. Научн. сообщ.* № 13: сб. науч. тр. Хабаровск: Изд-во ДВГУПС, 2008. С. 28-32.
254. *Пикуль О. Ю., Строганов В. И.* Способ определения знака вращения плоскости поляризации излучения в оптически активном кристалле. Пат. 2288460 Российская Федерация, МПК G01N 21/21 (2006.01); заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2005100126/28; заявл. 11.01.2005; опубл. 27.11.2006, Бюл. № 33.
255. *Пикуль О. Ю., Куликова Г. В., Коваленко Л. Л.* Интерференция оптических волн в кристаллических кварцевых линзах // *Тез. VII Межд. Конф. «Фундаментальные проблемы оптики. ФПО – 2012»* (С-Пб, 15–19 октября 2012 г.) СПб., 2012. С. 62.
256. *Пикуль О. Ю.* Способ определения дефектов кристаллической кварцевой линзы. Пат. 2379656 Российская Федерация, МПК G01N 21/958, 21/23, G01B 11/30

(2006.01); заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО «Дальневосточный гос. ун-т путей сообщения». № 2007114854/28; заявл. 19.04.2007; опубл. 20.01.2010, Бюл. № 2.

257. *Kolesnikov A. I., Tretiakov S. A., Grechishkin R. M., Morozova K. A., Yushka K. B., Molchanov V. Ya. Linde B. B. I. A Study of Optical Uniformity of Lithium Niobate and Paratellurite Crystals by the Method of Conoscopy // Acta Phys. Pol. A. 2015. № 1. V. 127. P. 84-86.*

258. *Колесников А. И., Третьяков С. А., Каплунов И. А., Гречишкин Р. М., Воронцова Е. Ю., Иванова П. В. Исследования оптических аномалий в одноосных кристаллах методом лазерной коноскопии // VII Межд. Конф. по фотонике и информационной оптике НИЯУ МИФИ 24-26 января 2018 г. Сб. научн. тр. М.: НИЯУ МИФИ, 2018. 608 с., С. 42-43.*

259. *Kolesnikov A. I., Grechishkin R. M., Tretiakov S. A., Molchanov V. Ya., Ivanova A. I., Kaplunova E. I., Vorontsova E. Yu. Laser Conoscopy of Large-Sized Optical Crystals // IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering. 2013. V. 49. P. 012037. doi:10.1088/1757-899X/49/1/012037.*

260. *Сиротин Ю. И., Шаскольская М. П. Основы кристаллофизики. М.: Наука, 1979.*

261. *Pikoul O. Y., Sidorov N. V., Palatnikov M. N., Makarova O. V. Laser conoscopic research technique for single crystals $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$. J. Modern physics, 2013, № 4, p. 12 – 17.*

262. *Пикуль О. Ю., Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Макарова О. В. Лазерная коноскопия монокристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$. Перспективные материалы, 2013, № 12, с. 1 – 9.*

263. *Блистанов А. А. Кристаллы квантовой и нелинейной оптики. М.: МИСИС, 2000. 430 с.*

264. *Педько Б. Б., Франко Н. Ю., Сорокина И. И., Хохонина И. Я. //Тез. докл. ВКФС-XV, г. Ростов-на-Дону, г. Азов, 1999. С. 37.*

265. *Криштон В. В., Строганов В. И., Литвинова М. Н., Ефременко В. Г. Термоиндуцированное аномальное двулучепреломление в кристаллах ниобата лития // Тр. IV межд. Конф. молодых ученых и специалистов “Оптика-2005”. С-Пб, 17-21 октября 2005. / Под ред. проф. В. Г. Беспалова, проф. С. А. Козлова. СПб: СПбГУ ИТМО, 2005. С. 26.*

266. *Gunter P., Huidnard J.-P. Photorefractive Materials and Their Applications 1. Springer, 2007. 365 p.*

267. *Антонычева Е. А., Сюй А. В., Сидоров Н. В., Чуфырев П. Г., Яничев А. А. Рассеяние света в нелинейно-оптических фоторефрактивных монокристаллах $\text{LiNbO}_3\text{:Cu}$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ // Журн. прикл. спектр. 2010. Т. 77, № 1. С. 89-94.*

268. *Толстов Е. В., Криштон В. В., Строганов В. И., Доронин В. И., Литвинова М. Н., Ющенко Н. Л. Температурные характеристики преобразователя излучения на основе нелинейно-оптического кристалла // ИВУЗ. Приборостроение. 2004. № 10. С. 74–77.*

269. *Сидоров Н. В., Антонычева Е. А., Сюй А. В., Палатников М. Н. Фоторефрактивные свойства монокристаллов ниобата лития стехиометрического состава // Кристаллогр. 2010. Т. 55, № 6. С. 1079–1084.*

270. *Jermann F., Simon M., and Krätzig E.* Photorefractive properties of congruent and stoichiometric lithium niobate at high light intensities // *J. Opt. Soc. Am.* 1995. V. 12. P. 2066-2070.

271. *Volk T., Wöhlecke M.* Lithium niobate. Defects, photorefraction and ferroelectric switching // Berlin. Springer, 2008. 250 p.

272. *Черная Т. С., Максимов Б. А., Волк Т. Р., Рубинина Н. М., Симонов В. И.* Атомы Zn в ниобате лития и механизмы их вхождения в кристалл / Письма в ЖЭТФ. Т. 73, № 2. С. 110-113.

273. *Волк Т. Р.* Фотоэлектрические явления в фоторефрактивных сегнетоэлектриках: Дис. ...док. физ.-мат. наук. М.: ИК РАН, 1995. 270 с.

274. *Строганов В. И., Троилин В. И.* Преобразование немонахроматического широкополосного ИК изображения в нелинейных кристаллах иодата и формиата лития // Журн. прикл. спектр. 1989. Т. 50, № 2. С. 297-301.

275. *Сидоров Н. В., Пикуль О. Ю., Крук А. А., Теплякова Н. А., Яничев А. А., Палатников М. Н.* Комплексные исследования структурной и оптической однородности кристаллов ниобата лития с низким эффектом фоторефракции методами коноскопии, фотоиндуцированного светорассеяния и комбинационного рассеяния // Опт. и спектр. 2015. Т. 118, № 2. С. 70-79.

276. *Коханчик Л. С., Палатников М. Н., Щербина О. Б.* // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2010. № 9. С. 42.

277. *Палатников М. Н., Серебряков Ю. А., Калинин В. Т.* // Исследования в области химии и технологии минерального сырья Кольского полуострова: Сб. научн. тр. Л.: Наука, 1986. 110 с.

278. *Максименко В. А., Сюй А. В., Карпец Ю. М.* Фотоиндуцированные процессы в кристаллах ниобата лития. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2008. 96 с.

279. *Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Яничев А. А., Габаин А. А., Крук А. А., Калинин В. Т.* Упорядочение структурных единиц катионной подрешетки в кристаллах ниобата лития, легированных цинком // Докл. академии наук. 2013. Т. 452, № 5. С. 529-533.

280. *Антонычева Е. А., Сидоров Н. В., Сюй А. В., Сюй Н. А., Чуфырев П. Г., Яничев А. А.* Кинетика фоторефрактивного рассеяния света в кристаллах ниобата лития стехиометрического состава // Персп. матер. 2010. № 5. С. 36-40.

281. *Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Крук А. А., Теплякова Н. А., Макарова О. В.* Структура кристаллов ниобата лития с низким эффектом фоторефракции // Журн. прикл. спектр. 2014. Т. 81, №4. С. 578-584.

282. *Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Яничев А. А., Габаин А. А., Пикуль О. Ю., Смирнов А. Н.* Исследование однородности и фоторефрактивных свойств монокристаллов ниобата лития методами спектроскопии комбинационного рассеяния света и лазерной коноскопии // Опт. и спектр. 2013. Т. 115, № 4. С. 65-71.

283. *Лайнс М., Гласс А.* Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. М.: Мир, 1981. 736 с.

284. *Леванюк А. П., Осипов В. В.* Механизмы фоторефрактивного эффекта // Изв. АН СССР, Сер физ. 1977. Т. 41, № 4. С. 752-770.

285. *Стурман Б. И., Фридкин В. М.* Фотогальванический эффект в средах без центра симметрии и родственные явления. М.: Наука, 1992. 208 с.

286. *Блистанов А. А., Любченко В. М., Горюнова А. Н.* Рекомбинационные процессы в кристаллах LiNbO_3 // Кристаллогр. 1998. Т. 43, № 1. С. 86.

287. Баласанян Р. Н., Габриелян В. Т., Казарян Л. М. Исследование кристаллов ниобата лития, выращенных из расплава с примесью K_2O // Докл. НАН РА, Физика. 2000. Т. 100, № 2. Р. 1-7.
288. Стурман Б. И., Шалагин А. М. // Институт автоматики и электрометрии СО РАН, Новосибирск: Наука из первых рук, 2010. Т. 32, № 2. С. 11.
289. Feldman A. Bistable optical system based a Pockels cells // Opt. Lett. 1979. № 4. Р. 115.
290. Furukawa Y., Sato M., Kitamura K., Yajima Y., and Minakata M. Optical-damage resistance and crystal quality of $LiNbO_3$ singlecrystals with various $[Li]/[Nb]$ ratios // J. Appl. Phys. 1992. V. 72. Р. 3250.
291. Сидоров Н. В., Яничев А. А., Чуфырев П. Г., Маврин Б. Н., Палатников М. Н., Калинин В. Т. Наведенная лазерным излучением подрешетка микро- и наноструктур в фоторефрактивном монокристалле ниобата лития // Докл. Академии наук. 2009. Т. 428, № 4. С. 492-495.
292. Севостьянов О. Г. А/реф. «Фоторефрактивный эффект в нестехиометричных кристаллах ниобата лития и оптических волноводах на их основе» канд. физ.-мат. наук. Кемерово, 2006. 23 с.
293. Петров М. П., Степанов С. И., Хоменко А. В. Фоточувствительные электрооптические среды в голографии и обработке информации. Л.: Наука, 1983. 270 с.
294. Amodei J. J. Electron diffusion effects during hologram recording in crystals // Appl. Phys. Lett. 1971. V. 18, № 1. Р. 22-24.
295. Amodei J. J. Analysis of transport processes during hologram recording in insulators // RCA Rev. 1971. V. 32, № 32. Р. 185-198.
296. Фридкин В. М. Фотосегнетоэлектрики // М.: Наука, 1979. 264 с.
297. Владимирцев Ю. В., Голенищев-Кутузов А. В., Голенищев-Кутузов В. А., Миронов С. П., Хасанова И. А., Шакурова Е. А. Микроскопическая модель фоторефрактивного эффекта в ниобате лития // Изв. РАН. Сер. Физ. 1993. Т. 57, № 6. С. 31-34.
298. Glass A. M., von der Linde D., Negran T. J. High voltage bulk photovoltaic effect and photorefractive process // Appl. Phys. 1974. V. 25, № 4. Р. 233-235.
299. Chen F. S., Geusic J. E., Kurts S. K., Skinner J. G., Wemple S. H. Light modulation and beam deflection with potassium tantalat-niobate crystals // J. Appl. Phys. 1966. V. 37, № 1. Р. 388-398.
300. Glass A. M., Peterson G. E., Negran T. J. Laser-induced damage in optical materials // NBS Spec. Publ. 1972. № 372. Р. 15-20.
301. Jonston W. D. Optical Index Damage in $LiNbO_3$ and other Pyroelectric insulators // J. Phys. Chem. Sol. 1970. V. 41. Р. 3279-3285.
302. Погосян А. Р., Уюкин Е. М., Леванюк А. П., Добржанский Г. Ф. Объемный фотовольтаический эффект и фотоиндуцированное изменение спонтанной поляризации в кристаллах иодата лития // Физ. Тверд. тела. 1981. Т. 23, № 11. С. 3280-3288.
303. Pogosyan A. K., Uyukin E. M., Levaniyk A. P., Dobrjansky G. F. Investigations of bulk photovoltaic and photorefractive effects α - $LiNbO_3$ // Ferroelectrics. 1928. V. 42. Р. 173-176
304. Jaskel J. L., Olson D. H., Glass A. M. Optical damage resistance of monovalent ion diffused $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$ waveguides // J. Appl. Phys. 1981. V. 52, № 7. Р. 4855-4856.

305. *Glass A. M.* Optical Spectra of Cr³⁺ impurity ions in ferroelectric LiNbO₃ and LiTaO₃ // J. Chem. Phys. 1969. V. 50, № 4. P. 1501-1510.
306. *Von der Linde D., Glass A. M.* Photorefractive effects for reversible holographic storage of information // Appl. Phys. 1975. P. 163-192
307. *Peterson G. E., Glass A. M.* Control of the susceptibility of lithium niobate to laser-induced refractive index changes // Appl. Phys. Lett. 1971. V. 19, № 5. P. 130-132.
308. *Kurz H.* Refractive index change during photorefractive process in doped LiNbO₃ // Ferroelectrics. 1974. V. 8, № 1-2.
309. *Volk T. R., Wohlecke M.* Optical Damage Resistance in LiNbO₃ crystals // J. Ferroelectric Rev. 1998. V. 1. P. 195-262.
310. *Schirmer O. F.* X-ray photovoltaic effect in undoped LiNbO₃ and its correlation with ESR // J. Appl. Phys. 1979. V. 50. P. 3404.
311. *Redfield D., Burke W. J.* Optical absorption edge of LiNbO₃ // J. Appl. Phys. 1974. V. 45, № 10. P. 4566-4571.
312. *Schlarb U., Betzler K.* Refractive indices of lithium niobate as a function of temperature, wavelength, and composition: A generalized fit // Phys. Rev. B. 1993. V. 48. P. 15613.
313. *Schmidt N., Betzler K., Grabmayer B.* Composition dependence of the second-harmonic phase-matching temperature in LiNbO₃ // Appl. Phys. Lett. 1991. V. 58, № 1. P. 34-35.
314. *Kostritskij S. M., Sevostyanov O. G.* Influence of intrinsic concentration on light induced changes of photorefractivity in LiNbO₃ // Proc. ECAPD-3. Bled (Slovenia). 1996. Мо-Ро II-18.
315. *Волк Т. Р., Красников В. В., Прялкин В. И., Рубинина Н. М.* Нелинейнооптические свойства кристаллов ниобата лития с примесями цинка // Квант. электр. 1990. Т. 17. С. 262-265.
316. *Sweeney K. L., Halliburton L. E., Bryan D. A., Rioe R., Gerson R., Tomasohke H. E.* Point defects in Mg-doped LiNbO₃ // J. Appl. Phys. 1985. V. 57, № 4. P. 1036.
317. *Сидоров Н. В., Палатников М. Н.* Спектры комбинационного рассеяния света сильно легированных магнием и цинком кристаллов ниобата лития // Опт. и спектр. 2016. Т. 121, № 6. С. 907-915.
318. *Китаева Г. Х., Кузнецов К. А., Наумова И. И., Пенин А. Н.* Влияние дефектов структуры на оптические свойства монокристаллов LiNbO₃:Mg // Квант. Электр. 2000. Т. 30, № 8. С. 726-732.
319. *Обуховский В. В.* Процессы фоторефрактивного рассеяния света в кристаллах // Автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук. Киев: Изд-во КГУ, 1989. 24 с.
320. *Лемешко В. В., Обуховский В. В.* Домены в фотовозбужденном LiNbO₃:Fe // Физ. тв. тела. 1988. Т. 30, № 6. С. 1614-1618.
321. *Magnumsson R., Gaylord T.* Lasre scattering induced holograms in LiNbO₃ // Appl. Opt. 1974. V.13, № 7. P. 1545-1548.
322. *Карпец Ю. М., Строганов В. И., Марченков Н. В., Емельяненко А. В.* Спекл-структура излучения, рассеянного фоторефрактивным кристаллом // Опт. и спектр. 1989. Т. 67, № 4. С. 982-985.
323. *Сидоров Н. В., Сюй А. В., Палатников М. Н., Калинин В. Т.* Трехслойная спекл-структура в фоторефрактивном монокристалле ниобата лития // Докл. академии наук. 2011. Т. 437, № 3. С. 352-355.

324. Antonicheva E. A., Syuy A. V., Sidorov N. V., Palatnikov M. N., Bormanis K. Kinetics of Photorefractive Light Scattering in Stoichiometric LiNbO_3 Single Crystals Grown From Melt Containing 58.6 mole % of Li_2O // *Ferroelectrics*. 2011. V. 417, № 1. P. 53–57.
325. Дмитрик Г. Н., Коротков П. А., Обуховский В. В. Влияние фоторефракции на рэлееское рассеяние света в $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ // *Опт. и спектр*. 1983. Т. 55, № 2. С. 399–400.
326. Золотарева С. В., Крупский Р. Ф., Лихтин В. В., Сюй А. В. Интерференционные картины при фоторефрактивном рассеянии света в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ // *Тр. 3 Межд. Научн. конф. молодых ученых и специалистов «Оптика 2003»*. СПб., 2003.
327. Kanaev I. F., Malinovski V. K., Sturman B. I. Investigation on photoinduced scattering in LiNbO_3 crystals // *Opt. Comm.* 1980. V. 34, № 1. P. 95–100.
328. Авакян Э. М., Белабаев К. Г., Одулов С. Г. Поляризационно-анизотропное фотоиндуцированное рассеяние в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ // *Физ. тв. тела*. 1983. Т. 25, № 11. С. 3274–3281.
329. Zhang G., Li Q. X., Ho P. P., Alfano R. R. Degenerate simulated parametric scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ // *Opt. Soc. Am.* 1987. V. 3, № 6. P. 882–885.
330. Белабаев К. Г., Киселева И. Н., Обуховский В. В. и др. Новое параметрическое рассеяние света голографического типа в LiNbO_3 // *Физ. тв. тела*. 1986. Т. 28, № 2. С. 575–578.
331. Grousson R., Mallick S., Odulov S. Amplified backward scattering in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ // *Opt. Comm.* 1985. V. 51, № 5. P. 342–346.
332. Обуховский В. В., Стоянов А. В., Лемешко В. В. Фотоиндуцированное рассеяние света на флуктуациях фотоэлектрических параметров среды // *Квант. электр.* 1987. Т. 14, № 1. С. 113–121.
333. Обуховский В. В., Стоянов А. В. Фотоиндуцированное рэлееское рассеяние света в кристаллах // *Опт. и спектр*. 1985. Т. 58, № 2. С. 378–385.
334. Kogelnik H. Coupled wave theory for thick hologram grating // *Bell Syst. Techn. Journ.* 1969. V. 48, № 9. P. 2909–2947.
335. Staebler D. L., Amodei J. J. Coupled – wave analysis of holographic storage in LiNbO_3 // *J. Appl. Phys.* 1972. V. 43, № 3. P. 1042–1049.
336. Лемешко В. В. Особенности фотоиндуцированного рассеяния света в кристаллах ниобата лития. Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. Киев: Изд-во КГУ, 1989. 17 с.
337. Обуховский В. В. Природа фотоиндуцированного рассеяния света в сегнетоэлектрических кристаллах // *Укр. физ. журн.* 1989. Т. 34, № 3. С. 364–368.
338. Карпец Ю. М., Максименко В. А., Сетейкин А. Ю., Скоблещкая О. В., Строганов В. И., Сюй А. В. Особенности автоволнового фотоиндуцированного рассеяния света в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ // *Вестник Амурского гос. Ун-та. Благовещенск*, 2001. Вып. 15. С. 55–56.
339. Фридкин В. М., Попов Б. Н. Аномальный фотовольтаический эффект в сегнетоэлектриках // *Успехи Физ. Наук*. 1978. Т. 124, № 4. С. 657–671.
340. Стурман Б. И. Фотогальванический эффект – новый механизм нелинейного взаимодействия волн электрооптических кристаллах // *Квант. электр.* 1980. Т. 7, № 3. С. 483–488.

341. Сюй А. В., Строганов В. И., Лихтин В. В. Фоторефрактивное рассеяние излучения гелий-неонового лазера в кристаллах ниобата лития // Опт. журн. 2007. Т. 74, № 5. С. 79-81.
342. Лихтин В. В., Сюй А. В., Строганов В. И. Особенности фоторефрактивного рассеяния света в сегнетоэлектриках при маломощной лазерной накачке // Бюлл. Научн. сообщ. Хабаровск: Изд-во ДВГУПС, 2004. С. 25-28.
343. Stroganov V. I., Syuy A. V., Lihtin V. V. Manifestation of the thermal fatigue effect in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ crystal // Proc. SPIE. Fundamental Problems of Optoelectronics and Microelectronics II. Editor(s): Y. N. Kulchin, O. B. Vitrik, V. I. Stroganov. 2005. V. 5851. 470 p. P. 51-53.
344. Максименко В. А., Карпец Ю. М., Данилова Е. В., Сюй А. В. Особенности индикатрисы фоторефрактивного рассеяния света в кристаллах // Электр. Журн. «Исследовано в России». 2006. С. 624–628. <http://zhurnal.ape.relarn.ru/articles/2006/063.pdf>.
345. Сюй А. В., Сидоров Н. В., Антонычева Е. А. Фоторефрактивные свойства и особенности строения нелинейно-оптического кристалла ниобата лития. Хабаровск: ДВГУПС, 2011. 108 с.
346. Антонычева Е. А. Структурный беспорядок в монокристаллах ниобата лития и его проявление в фоторефрактивном и комбинационном рассеянии света: Дис. ... к. ф.-м. н. Хабаровск: ДВГУПС, 2012. 115 с.
347. Goultkov M., Imlau M., Woike Th. Photorefractive parameters of lithium niobate crystals from photoinduced light scattering // Phys. Rev. 2008. V. 77. P. 235110.
348. Коробков В. С., Сидоров Н. В., Хассанов Н. Я. Структура лазерного луча в кристалле гидрохинона. В кн.: Синтез, анализ и структура органических соединений. Тула: ТГПИ, 1974. Вып. 6. С. 89-90.
349. Кондиленко И. И., Коротков П. А., Клименко В. А. Особенности возбуждения комбинационного рассеяния в анизотропных средах // Журн. прикл. спектр. 1975. Т. 23, № 1. С. 174-176.
350. Морозовская А. Н., Обуховский В. В. Оптические автоволны в фоторефрактивных сегнетоэлектрических кристаллах // Опт. и спектр. 2005. Т. 98, № 2. С. 282–291.
351. Баласанян Р. Н., Габриелян В. Т., Коканян Э. П. Состав и однородность кристаллов LiNbO_3 в их взаимосвязи с условиями выращивания. Влияние электрического поля // Кристаллогр. 1990. Т. 35, № 6. С. 1540–1544.
352. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Габриелян В. Т., Чуфырев П. Г., Калинин В. Т. Спектры комбинационного рассеяния света и дефекты номинально чистых монокристаллов ниобата лития // Неорган. матер. 2007. Т. 42, № 1. С. 66-73.
353. Теплякова Н. А., Сидоров Н. В., Палатников М. Н. Структурная и оптическая однородность, фоторефрактивные свойства конгруэнтного и стехиометрического кристаллов ниобата лития // Персп. матер. 2016. № 4. С. 19-27.
354. Malovichko G., Grachev V., Kokanyan E., Schirmer O. Axial and low-symmetry centers of trivalent impurities in lithium niobate: Chromium in congruent and stoichiometric crystals // Phys. Rev. B. 1999. V. 59, № 14. P. 9113–9125.
355. Киселева И. Н., Одулов С. Г., Олейник О. И. [и др.] Фотоиндуцированная дисперсия света в кристаллах при бигармонической накачке // Укр. Физ. журн. 1986. Т. 31, № 11. С. 1682–1686.

356. Сидоров Н. В., Яничев А. А., Палатников М. Н., Габаин А. А. Эффекты упорядочения структурных единиц катионной подрешетки кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ и их проявление в спектре комбинационного рассеяния света // *Опт. и спектр.* 2014. Т. 116, № 1. С. 99.
357. Palatnikov M. N., Sidorov N. V., Biryukova I. V. et al. // *J. Adv. Mater.* 2003. № 4. С. 358.
358. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Теплякова Н. А., Габаин А. А., Ефремов И. Н. Структурная однородность фоторефрактивных кристаллов LiNbO_3 (0.03÷4.5 мол. % ZnO) // *Опт. и спектр.* 2016. Т. 120, №4. С. 137-143.
359. Kong Y., Zhang W., Xu J., Yan W., Liu H., Xie X., Li X., Shi L., Zhang G. The OH-absorption spectra of low doped lithiumniobate crystals // *Infr. Phys. Techn.* 2004. V. 45. P. 281–289.
360. Аникьев А. А., Сидоров Н. В., Серебряков Ю. А. Структурное упорядочение в кристаллах ниобата лития, легированных ионами Mg^{2+} , Gd^{3+} // *Журн. прикл. спектр.* 1992. Т. 56, № 4. С. 670-672.
361. Sidorov N. V., Serebryakov Yu. A. Investigation of structural peculiarities of lithium niobate impurity crystals by Raman spectroscopy // *Vibr. spectr.* 1994. V. 6. P. 215-223.
362. Lengyel K., Peter A., Kovacs L., Corradi G., Palfavi L., Hebling J., Unferdorben M., Dravecz G., Hajdara I., Szaller Zs., Polgar K. Grown, defect structure, and THz application of stoichiometric lithium niobate // *Appl. Phys. Rew.* 2015. № 2. P. 040601-040628.
363. Fontana M. D., Bourson P. Microstructure and defects probed by Raman spectroscopy in lithium niobate crystals and devices // *Appl. Phys. Rew.* 2015. № 2. P. 040602-1-040602-14.
364. Воскресенский В. М., Стародуб О. Р., Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Калинин В. Т. Моделирование энергетически равновесных кластеров в кристалле ниобата лития // *Докл. Академии наук.* 2014. Т. 454, № 5. С. 553-555.
365. Sidorov N. V., Kruk A. A., Pikoul O. Y., Palatnikov M. N., Teplyakova N. A., Yanichev A. A., Makarova O. V. Integrated research of structural and optical homogeneities of the lithium niobate crystal with low photorefractive effect // *Optik – International Journal for Light and Electron Optics.* 2015. V. 126, № 11–12. P. 1081-1089.
366. Cabrera J. M., Olivares J., Carrascosa M., Rams J., Müller R. and Diéguez E. Hydrogen in lithium niobate // *Adv. Phys.* 1996. V. 45, № 5. P. 349-392.
367. Gröne A., Kapphahn S. Sharp, temperature dependent OH/OD IR-absorption bands in nearly stoichiometric (VTE) LiNbO_3 // *J. Phys. Chem. Sol.* 1995. V. 56, № 5. P. 687-701.
368. Kong Y., Zhang W., Chen X., Xu J., Zhang G. OH– absorption spectra of pure lithium niobate crystals // *J. Phys.: Condens. Matter.* 1999. № 11. P. 2139–2143.
369. Polgar K., Peter A., Kovacs L., Corradi G. and Szaller Zs. Growth of stexiometric LiNbO_3 crystals by top seeded solution growth method // *J. Cryst Growth.* 1997. V. 177, № 3-4. P. 211-216.
370. Сидоров Н. В., Теплякова Н. А., Палатников М. Н., Бобрева Л. А. Исследование структурных перестроек водородных связей в кристаллах $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ вблизи пороговой концентрации магния // *Журн. прикл. спектр.* 2017. Т. 84, № 4. С. 521-526.

371. Сидоров Н. В., Бобрева Л. А., Палатников М. Н. Концентрационные зависимости спектров ИК поглощения в области валентных колебаний ОН-групп конгруэнтных кристаллов ниобата лития, легированных цинком и магнием // Опт. и спектр. 2017. Т. 123, № 8. С. 246-252.
372. Arizmendi L., Ambite E. J., Plaza J. L. Analysis of the OH- binding energy in lithium niobate crystals // Opt. Mater. 2013. V. 35. P. 2411–2413.
373. Feng X. Q., Tang T. B. Mg-doping threshold effect and H-containing defects in LiNbO_3 // J. Phys.: Condens. Matter. 1993. V. 5. P. 2423–2430.
374. Bryan D. A., Gerson R., and Tomaschke H. E. Increased optical damage resistance in lithium niobate // Appl. Phys. Lett. 1984. V. 44. P. 847. doi: 10.1063/1.94946
375. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Крук А. А., Яничев А. А., Макарова О. В., Теплякова Н. А., Пикуль О. Ю. Оптические свойства кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(5.21)$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}(0.009)\text{:Mg}(5.04)$ мол. % // Опт. и спектр. 2014. Т. 116, № 2. С. 298-305.
376. Раздобарин А. Г., Басун С. А., Бурсиан В. Э., Сочава Л. С., Evans D. R. Центр Fe [Nb] – Li в стехиометрических кристаллах LiNbO_3 : механизм возникновения // Физ. тв. тела. 2010. Т. 52, № 4. С. 656-661.
377. Федорова Е. П., Алешина Л. А., Сидоров Н. В., Чуфырев П. Г., Яничев А. А., Палатников М. Н., Воскресенский В. М., Калинин В. Т. Упорядочение катионов в кристаллах LiNbO_3 и твердых растворов на его основе // Неорган. матер. 2010. Т. 46, № 2. С. 247-252.
378. Фам М. А. Дис. «Исследование физических аномалий в монокристаллах LiNbO_3 » канд. ф.-м. наук. 01.04.04. Волгоград, 2014.
379. Feng H., Wen J., Wang H., Han Sh., Xu Yu. EPR studies of Fe^{3+} in Mg-doped LiNbO_3 crystals // J. Phys. Chem. Sol. 1990. V. 51, № 5. P. 397-400.
380. Boker A., Donnerberg H., Schirmer O. F., Xiqi Feng. Two sites of Fe^{3+} in highly Mg-doped LiNbO_3 // J. Phys.: Condens. Matter. 1990. V. 2, № 32. P. 6865-6868.
381. Malovichko G. I., Grachev V. G., Schirmer O. F., Faust B. New axial Fe^{3+} centres in stoichiometric lithium niobate crystals // J. Phys.: Condens. Matter. 1993. V. 5, № 23. P. 3971-3976.
382. Schirmer O. F., von der Linde D. Two-photon- and X-ray-induced Nb^{4+} and O⁻ small polarons in LiNbO_3 // Appl. Phys. Lett. 1978. V. 33, № 1. P. 35-38.
383. Deng J., Zhang W., Wen J., Zhang G., & Wang H. Pulsed-laser-induced dark traces in $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}$ and $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ // Opt. Lett. 1994. V. 19, № 13. P. 933-935.
384. Gabrielyan V. T., Lebedeva E. L., Pirozerski A. L., Normatov S. A. Influence of K, Mg and Fe Impurities on the Composition, Absorption Spectra and Photovoltaic Properties of LiNbO_3 Crystals // Ferroelectrics. 2002. V. 281, № 1. P. 151-161.
385. Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Макарова О. В., Сидоров Н. В., Теплякова Н. А., Маслбоева С. М., Ефремов В. В. Исследование влияния технологии приготовления сыхты на физико-химические и оптические свойства кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ // Персп. матер. 2016. № 1. С. 5-13.
386. Sidorov N. V., Serebryakov Yu. A. The structural ordering and photorefractive in lithium niobate admixed crystals // Ferroelectrics. 1994. V. 160. P. 101-105.
387. Сидоров Н. В., Крук А. А., Яничев А. А., Палатников М. Н., Калинин В. Т. Проявление двулучепреломления в кристалле ниобата лития в фоторефрактивном и комбинационном рассеянии света // Докл. академии наук. Физ. химия. 2014. Т. 459, № 1. С. 58-61.

388. Крук А. А., Сидоров Н. В., Яничев А. А., Палатников М. Н. Влияние длины волны возбуждения на спектры КР кристаллов ниобата лития, легированных медью // Журн. прикл. спектр. 2014. Т. 81, № 1. С. 5-10.
389. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Яничев А. А., Титов Р. А., Теплякова Н. А. Структурный беспорядок и оптические свойства конгруэнтных кристаллов ниобата лития, легированных цинком и бором // Опт. и спектр. 2016. Т. 121, № 1. С. 40-49.
390. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Яничев А. А., Титов Р. А., Теплякова Н. А. Структурный беспорядок кристаллов LiNbO_3 :В и его проявление в спектре комбинационного рассеяния света // Журн. прикл. спектр. 2016. Т. 83, № 5. С. 707-714.
391. Kratzig E., Kurz K. Photorefractive and photovoltaic effects in doped LiNbO_3 // Opt. Acta 24. 1977. V. 321. P. 475-482.
392. Антонычева Е. А., Сюй А. В., Сюй Н. А., Сидоров Н. В., Чуфырев П. Г., Яничев А. А. Кинетика фоторефрактивного рассеяния света в кристаллах LiNbO_3 :Cu и LiNbO_3 :Zn // Прикл. физика. 2010. № 5. С. 26-31.
393. Крук А. А. Дис. «Структурный беспорядок и оптические процессы в кристаллах ниобата лития с низким эффектом фоторефракции» канд. ф.-м. наук. 01.04.07. Апатиты, 2015.
394. Дмитрик Г. Н., Коротков П. А., Радченко П. С. Проявление эффекта перекачки энергии в спектре комбинационного рассеяния света кристалла LiNbO_3 :Fe // Опт. и спектр. 1985. Т. 58, № 6. С. 1355-1357.
395. Стурман Б. И., Одулов С. Г., Новиков А. Д., Жюльен П. Энергообмен на сдвиговых разностных решетках в BaTiO_3 // Квант. электрон. 1996. V. 23, № 10. С. 931-932.
396. Бабичева Н. Г., Сидоркин А. С. Кинетика эмиссии электронов из ниобата лития // Физ. тв. тела. 2009. Т. 51, № 7. С. 1385-1388.
397. Сюй А. В., Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Штарев Д. С., Антонычева Е. А., Гапонов А. Ю., Чехонин К. А. Фотоэлектрические поля в кристаллах ниобата лития // Опт. Журн. 2015. Т. 82, № 5. С. 71-75.
398. Birnir D. P., Jackson W.Y. Impurity incorporation mechanisms in LiNbO_3 // Proc. of the International Conf. "Chemistry of Electronic Ceramic materials". Aug. 17-22. 1990. NIST Spec. Publ. 1991. № 804. P. 269-274.
399. Minoz Santiniste J. E., Mocalik B., Garsia J. Sole Optical detection of Eu^{3+} sites in LiNbO_3 : Eu^{3+} and LiNbO_3 : Mg : Eu^{3+} // Phys. Rev. (B). 1993. V. 47, № 1. P. 88-94.
400. Redonta L., Da Silva M. F., Soares J. C., Sanz-Garcio J. A., Dieguez E., Agalla Lopez F. $7\text{Li}(p,2)\text{He}$, PIXE and RBS Channeling studies of the lattice site location of impurities in LiNbO_3 and LiNbO_3 Co-doped with magnesium // Ind. Instrum. Meth. Phys. Res. 1992. V. 64, № 1-4. P. 189-192.
401. Redonta L., Soares J. C., Da Silva M. F., Sanz-Garcio J. A., Dieguez E., Agalla Lopez F. Lattice site location of europium in LiNbO_3 by Rutherford backscattering channeling experiments // Appl. Phys. Lett. 1989. V. 55, № 2. P. 120-121.
402. Dishler B., Herington J. R., Rauber A., Schneider J. An EPR study of different Gd^{3+} centers in LiNbO_3 // Sol. St. Comm. 1973. V. 12. P. 737-740.
403. Сидоров Н. В. «Спектроскопия комбинационного рассеяния кристаллов с разупорядоченными фазами». Дис. д.ф.-м.н. Москва, 1999 г. 360 с.
404. Donnerberg H. J., Tomlinson S. M., Catlow C. R. A. Defects in LiNbO_3 . Computer simulation // J. Phys. Chem. Sol. 1991. V. 52, № 1. P. 201-210.

405. *Voskresenskiy V. M., Starodub O. R., Sidorov N. V., Palatnikov M. N., Bormanis K. Modelling of Cluster Formation in Optically Nonlinear Lithium Niobate Crystal // Integrated Ferroelectrics. 2011. V. 123. P. 66–74.*
406. *Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Мельник Н. Н., Калинин В. Т. Двухмодовый характер спектра комбинационного рассеяния кристалла ниобата лития // Опт. и спектр. 2002. Т. 92, № 5. С. 780–783.*
407. *Syuy A. V., Sidorov N. V., Gaponov A. Y., Palatnikov M. N., Efremenko V. G. Determination of photoelectric fields in a lithium niobate crystal by parameters of indicatrix of photoinduced scattered radiation // Optik – International Journal for Light and Electron Optics. 2013. V. 124. P. 5259–5261.*
408. *Обуховский В. В., Стоянов А. В. Фотоиндуцированное рассеяние света в кристаллах с локальным откликом // Физ. тв. тела. 1986. Т. 28, № 2. С. 405–411.*
409. *Одулов С. Г., Соскин М. С., Хижняк А. И. Лазеры на динамических решетках. М.: Наука, 1990. 272 с.*
410. *Прутуленко А. С., Яценко А. В., Евдокимов С. В. Анализ природы электрической проводимости номинально беспримесных кристаллов LiNbO_3 // Кристаллогр. 2015. Т. 60, № 2. С. 293.*
411. *Yatsenko A. V., Yevdokimov S. V., Pritulenko A. S., Sugak D. Yu., Solskii I. M. Electrical properties of LiNbO_3 crystals reduced in a hydrogen atmosphere // Phys. Sol. State. 2012. V. 54, № 11. P. 2231–2235.*
412. *Weidenfelder A., Shi J., Fielitz P., Borchardt G., Becker K. D., Fritze H. Electrical and electromechanical properties of stoichiometric lithium niobate at high-temperatures // Sol. state ionics. 2012. V. 225. P. 26–29.*
413. *Булычева А. А. «Электропроводность и электронно-дырочные процессы в сильно легированных окисью магния кристаллах ниобата лития». Автореф. дисс... к.ф.-м.н. Томск, 2005. 21 с.*
414. *Wong K. K. Properties of Lithium Niobate. INSPEC, The Institution of Engineers. London, 2002. 429 p.*
415. *Блистанов А. А., Гераськин В. В., Хренинина А. В. Механизм электропроводности ниобата лития // Изв. Вузов. Материалы электронной техники. 1998. № 1. С. 28–33.*
416. *Фридкин В. М. Сегнетоэлектрики-полупроводники. М.: Наука, 1976. 480 с.*
417. *Сюй А. В., Сидоров Н. В., Гапонов А. Ю., Панфилов В. И., Палатников М. Н. Использование фотоиндуцированного рассеяния света для оценки фотоэлектрических полей в кристаллах ниобата лития // Опт. и спектр. 2013. Т. 114, № 5. С. 845–848.*
418. *Ахмадуллин И. Ш. Голенищев-Кутузов В. А., Мигачев С. А., Миронов С. П. Низкотемпературная электропроводность кристаллов ниобата лития конгруэнтного состава // Физ. тв. тела. 1998. Т. 40, № 7. С. 1307–1309.*
419. *Канаев И. Ф., Малиновский В. К. Асимметрия проводимости вдоль оси поляризации В сегнетоэлектрических кристаллах // ДАН СССР. 1982. Т. 266, № 6. С. 137–145.*
420. *Сидоров Н. В., Габаин А. А., Яничев А. А., Ефремов И. Н., Бирюкова И. В., Палатников М. Н. Спектры комбинационного рассеяния света кристаллов $\text{LiNbO}_3\text{:Zn}(4,5)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Mg:Fe}(5,01; 0,005)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(5,1)$, $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}(5,3 \text{ мол.}\%)$ // Опт. и спектр. 2015. Т. 118, № 2. С. 283 – 291.*

421. Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Щербина О. Б., Сидоров Н. В., Макарова О. В., Теплякова Н. А. Выращивание и концентрационные зависимости свойств кристаллов $\text{LiNbO}_3:\text{Er}$ // Кристаллогр. 2016. Т. 61, № 6. С. 999–1008.

Н.В. Сидоров, О.Ю. Пикуль,
Н.А. Теплякова, М.Н. Палатников

**Лазерная коноскопия и фотоиндуцированное
рассеяние света в исследованиях свойств нелинейно-
оптического кристалла ниобата лития**

Монография

Формат 60x84 1/8
Гарнитура Times
Усл.-п. л. 20,13. Уч.-изд. л. 19,95
Тираж 300 экз.

Издатель – Российская академия наук

Публикуется в авторской редакции

Отпечатано в экспериментальной цифровой типографии РАН

Издается по решению Научно-издательского совета
Российской академии наук (НИСО РАН)
и распространяется бесплатно