

©1994

КВАЗИУПРУГОЕ РАССЕЙЯНИЕ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ КВАРЦА С ДЕФЕКТАМИ

А.А.Аникьев, М.У.Умаров

Проведен численный расчет формы и размеров оптических неоднородностей в синтетических и природных кристаллах кварца различной степени несовершенства. Показано, что правильные результаты могут быть получены только при использовании комплекса экспериментальных данных, включающих в себя угловые, поляризационные, температурные характеристики рассеяния света, а также поглощение ультразвуковых волн в исследуемых образцах.

В работе [1] было показано, что аномальное рассеяние света в точке $\alpha \rightarrow \beta$ фазового перехода кристаллов кварца, описанное в классической работе [2], имеет статическое происхождение. Тем не менее до настоящего времени остается открытым вопрос, являются ли статические образования собственными микронеоднородностями структуры кварца или же они возникают только в окрестности фазового перехода.

Надо отметить, что рассеяние света на несовершенствах структуры кристаллов кварца изучалось в работах [3-6] по зависимостям интенсивности рассеяния от длины волны падающего света и температуры вдали от точки фазового перехода. При этом считалось, что наблюдаемое в эксперименте отклонение зависимости $I(\lambda)$ от рэлеевского закона λ^{-4} указывает на рассеяние света несовершенствами структуры.

В работе [3] было показано также, что, как и молекулярное рассеяние света, рассеяние на микронеоднородностях может иметь линейную зависимость от температуры. В одной из последних работ [7] было показано, что молекулярное рассеяние света в кристалле с дефектами превышает рассеяние в чистом кристалле при низких температурах и уменьшается с возрастанием температуры до комнатной. Однако все известные работы по рассеянию света на несовершенных кристаллах имеют тот недостаток, что в них анализируются не все параметры рассеянного света и никак не связываются особенности рассеяния света в точке фазового перехода и вдали от него.

В настоящей работе на основе результатов исследования спектральных параметров квазиупругого рассеяния света в точке фазового перехода и при комнатной температуре на образцах кварца с различными величинами акустических потерь делается вывод о происхождении статических неоднородностей, вызывающих аномальное рассеяние при фазовом переходе. По индикатрисе рассеяния, угловым зависимостям коэффициента поляризации в рамках строгой теории Ми рассчитаны размеры микронеоднородностей в образцах кварца.

1. Образцы

Измерения проводились на 12 образцах кристаллов кварца природного (4 шт.) и синтетического (8 шт.) происхождения высокого оптического качества, вырезанных в форме параллелепипедов размерами $12 \times 10 \times 10$ мм с известными значениями акустических потерь Q^{-1} . Индикатрисы рассеяния снимались на двух образцах природного и двух образцах синтетического кварца, вырезанных в форме цилиндров вдоль оптической оси из числа участвующих в температурных измерениях. Методом дифракции Брэгга света на ультразвуке получены коэффициенты поглощения звука $\alpha(\nu)$ на частоте 490 МГц для каждого исследуемого образца. Найденные значения акустических потерь Q^{-1} из данных по поглощению коррелируют с паспортными данными (см. таблицу).

Характеристики образцов

Номер образца	Добротность $Q \cdot 10^{-6}$	Коэффициент поглощения $\alpha(\nu)$, dB/ μ s
1	6.5	0.45
2	6.0	0.47
3	5.6	0.67
4	5.0	0.75
5	4.7	0.80
6	3.8	0.86
7	3.0	1.32
8	2.0	1.36
9	1.39	1.49
10	0.8	1.52

2. Методика эксперимента

Интенсивность квазиупругого рассеяния $I_s(\lambda, \theta, T)$ как функция длины волны λ , угла рассеяния θ и температуры T , нормированная на интенсивность линейно-поляризованного падающего света I_0 , регистрировалась с использованием модернизированного двойного монохроматора ДФС-24 с решетками, фиксированными на длине волны падающего света в целях максимального подавления вклада комбинационного рассеяния. В эксперименте по регистрации зависимостей $I_s(\lambda, T)$ использовалась стандартная 90° схема с плоскостью рассеяния, перпендикулярной оптической оси. В качестве источников света выделялись пять линий аргонового (ИЛА-120) и линия гелий-неонового (ЛГ-38) лазеров с длинами волн 476.5, 487.9, 496.5, 514.5, 528.7, 632.8 nm соответственно. Возможные колебания мощности лазеров устранились введением обратной связи по интенсивности разделением пучка на два и программным вычитанием сигналов в процессе сбора спектральной информации на микро-ЭВМ. Оптическая схема сбора рассеянного света представляет собой телескопическую систему с тепловыми фильтрами, диафрагмами и поляризаторами. Регистрация проводилась на фотоумножителе ФЭУ-79 с синхронизацией по постоянному току.

Температурные измерения выполнялись в двойном термостате с оптическими окнами, оборудованном оригинальной системой ступенчатой подачи мощности с программным управлением скоростью нагрева, контроля относительной и абсолютной температур. Абсолютное значение температуры измерялось калиброванным платиновым термометром сопротивления; контроль градиента температуры проводился восемью хромель-алюмелевыми термопарами.

Проблема стабилизации температуры в точке фазового перехода устранялась путем использования методики регистрации интенсивности при непрерывном нагреве и охлаждении образца со скоростью 0.1–1 K/h. Погрешность в измерении температуры составляла ± 0.02 K. Вся спектральная информация формировалась в виде массивов параметров по 12 каналам в микро-ЭВМ ДЗ-28 и обрабатывалась на ДВК-3.

Индикатрисы рассеяния были измерены на нефелометре, собранном на базе гониометра ГС-5.

Настоящий вариант предусматривал перемещение падающего лазерного луча и неподвижную систему регистрации в интервале углов $5\text{--}165^\circ$ [8].

3. Экспериментальные результаты

Согласно закону Рэлея, интенсивность рассеяния света частицами, малыми в сравнении с длиной волны, должна быть пропорциональна λ^{-4} в случае слабой зависимости показателя преломления частицы от длины волны. Отклонение от рэлеевской зависимости может быть вызвано, во-первых, вкладом в рассеяние от несовершенств и неоднородностей, сравнимых с длиной волны, т.е. немолекулярным происхождением рассеяния; во-вторых, рассеянием на аморфных областях. Однако при нормальных условиях отделить рассеяние на частицах с размерами $d \ll \lambda$ от молекулярного рассеяния нельзя. В точке фазового перехода интенсивность молекулярного рассеяния по крайней мере на два порядка меньше интенсивности рассеяния на флуктуациях параметра порядка [8]. Кроме того, согласно результатам работы [2], в точке фазового перехода нормальное рассеяние вызвано именно статическими неоднородностями.

Следовательно, зависимость $I(\lambda, T_c)$ позволяет сделать предварительную оценку размеров микронеоднородностей в кварце по отношению к длине волны света. На рис. 1 показаны типичные результаты

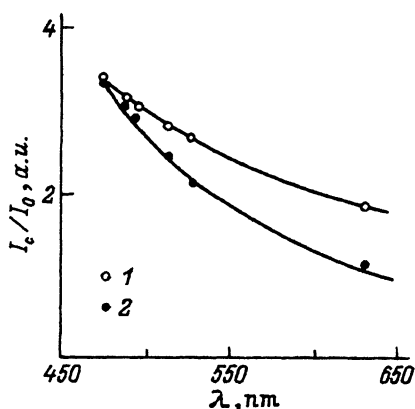


Рис. 1. Зависимость интенсивности квазиупругого рассеяния света в точке фазового перехода от длины волны падающего излучения для образцов природного (1) и синтетического (2) кварца.

Сплошные линии — подгонка к эксперименту функциями I/λ^2 (1) и I/λ^4 (2), совмещенными в точке $\lambda_0 = 476.5$ нм.

для образцов природного (1) и синтетического (2) кварца. Во всех без исключения образцах синтетического кварца закон Рэлея $I \sim \lambda^{-4}$ выполняется во всей области температур. В то же время интенсивность рассеяния в природных образцах имеет зависимость $\sim \lambda^{-2}$ с погрешностью 10%. Слабая зависимость показателей преломления кварца от длины волны в исследованном интервале заставляет предположить, что в образцах синтетического кварца свет рассеивается на неоднородностях в форме шаров или эллипсоидов с близкими значениями полуосей и размерами $d \ll \lambda$, а в образцах природного кварца, согласно приближению Рэлея-Ганса, свет рассеивается на неоднородностях в форме эллипсоидов с отношением полуосей $c/(a, b) \ll 1$ или цилиндров с размерами основания $d \gg \lambda$ либо на аморфных областях.

Проверка данных предположений и расчет размеров и формы неоднородностей возможны только после анализа угловых зависимостей интенсивности рассеяния в комплексе с данными по угловой зависимости коэффициента поляризации и деполяризации

$$P(\theta) = [1 - \rho(\theta)]/[1 + \rho(\theta)],$$

$$\rho(\theta) = I_{\perp}(\theta)/I_{\parallel}(\theta). \quad (1)$$

Согласно строгой теории Ми, интенсивность рассеяния света на шаре может быть записана в виде [9]

$$I_s(\lambda, \theta) = \frac{2\pi}{q^2} \sum_n (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2), \quad (2)$$

где коэффициенты ряда рассеяния a_n и b_n являются сложными комбинациями функций Бесселя и выражаются через параметр дифракции $x = qd = 2\pi N_c d/\lambda$, отношение показателей преломления частицы и среды $m = N/N_c$ и угол рассеяния θ .

Разложение функций Бесселя в степенные ряды позволяет выписать коэффициенты ряда рассеяния в (2) в явном виде. Так, например, для случая $d/\lambda \ll 1$, оставляя в коэффициентах a_n и b_n члены, обеспечивающие точность до x^6 , имеем

$$|b_1| \ll |a_1|,$$

$$a_1 = -\frac{2x^6 m^2 - 1}{3 m^2 + 2}; \quad S_1 = \frac{3}{2} a_1, \quad S_2 = \frac{3}{2} a_1 \cos \theta. \quad (3)$$

Тогда интенсивность рассеяния, согласно (2),

$$I_s = (|S_1|^2 + |S_2|^2) I_0,$$

где S — амплитудные матрицы рассеяния, запишется в виде

$$I_s(\lambda, \theta) = \frac{8\pi N_c d^6}{\lambda^4 r^2} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right| (1 + \cos^2 \theta). \quad (4)$$

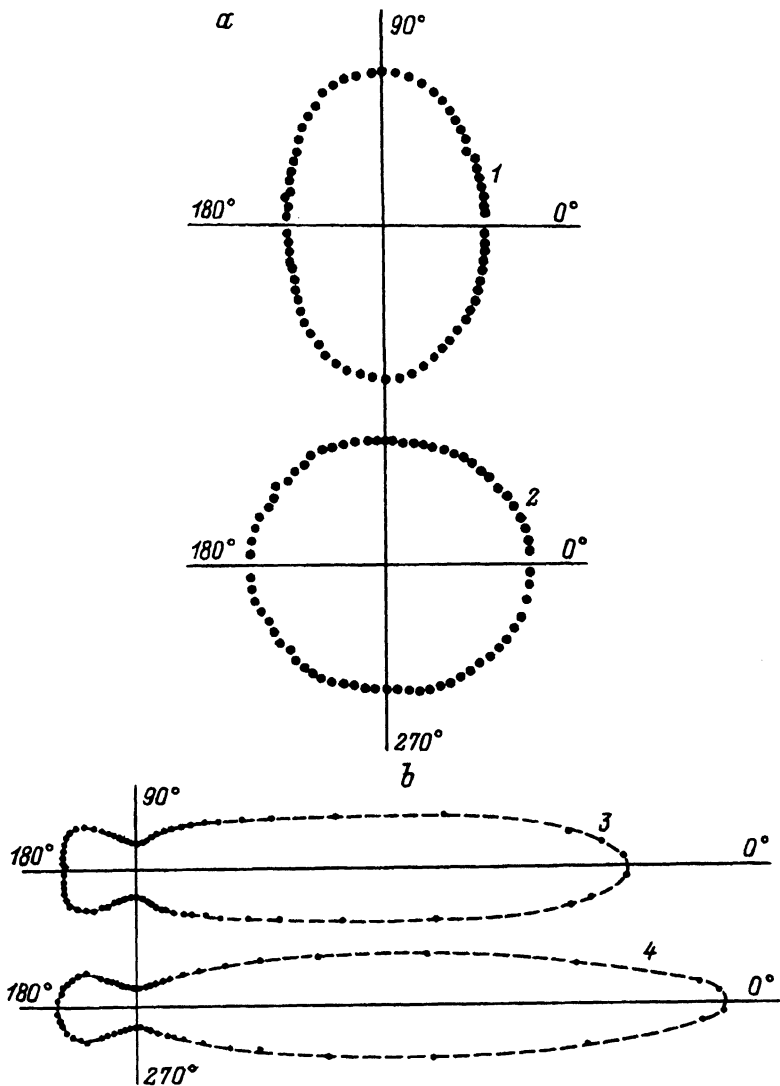


Рис. 2. Индикатрисы рассеяния в двух образцах синтетического (а) и природного (б) кварца с добротностями $Q = 6.5 \cdot 10^6$ (1), $5.0 \cdot 10^6$ (2), $3.0 \cdot 10^6$ (3), $1.39 \cdot 10^6$ (4). Точки — эксперимент, штрихи — численный расчет.

Таким образом, выражение (2) в частном случае $d/\lambda \ll 1$ сводится к закону Рэлея (4). В противоположном случае необходимо суммировать все члены ряда в (2) с параметрами, обеспечивающими его сходимость.

Угловые зависимости и интенсивности рассеяния при освещении образцов светом гелий-неонового лазера с длиной волны $\lambda_0 = 632.8$ нм приведены на рис. 2. Измерения выполнены на тех же образцах синтетического (а) и природного (б) кварца, для которых были измерены зависимости $I_s(\lambda, T_c)$ (рис. 1). Экспериментальные значения $I_s(\lambda_0, \theta)$ нормировались на коэффициент $(1 + \cos^2 \theta) / \sin \theta$, учитывающий рэлеев-

скую зависимость от угла рассеяния и поправку на конечные размеры рассеивающего объема. Все измерения проводились в плоскости рассеяния, перпендикулярной оптической оси кварца, с целью устранения влияния оптической активности на поляризационные характеристики. Кроме того, в такой геометрии минимальный вклад дает угловая зависимость интенсивности мандельштам-бриллюэновского рассеяния, так как комбинации упругих модулей кварца $c_{xx} = c_{yy} \neq c_{xy}$ симметричны в плоскости рассеяния, а левый и правый кварц неразличимы. Повороты кристаллов вокруг оси цилиндров также не меняли форму индикатрис рассеяния.

Как видно из рис. 2, интенсивность рассеяния практически не зависит от угла для образцов синтетического кварца, а коэффициент поляризации $P(\theta)$ (не показан на рисунке) имеет единственный максимум вблизи $\theta = 90^\circ$. На образцах природного кварца наблюдается значительная асимметрия интенсивности рассеяния — индикатриса вытянута в направлении «вперед». Этот результат весьма характерен для рассеяния на больших неоднородностях [9], причем отношение $I(0^\circ)/I(180^\circ)$ тем больше, чем больше размеры рассеивающих свет неоднородностей. Однако сама форма индикатрисы рассеяния, особенно вид функций $P(\theta)$ и $\rho(\theta)$, весьма чувствительна к параметру m .

Нами проведены численные расчеты индикатрисы рассеяния $I_s(\lambda, \theta)$, коэффициента поляризации $P(\theta)$ и деполяризации $\rho(\theta)$ по методике, изложенной в работе [9]. Программы расчета адаптированы на систему пользователя ЭВМ БЭСМ-6. Параметры эксперимента: $\lambda_0 = 632.8 \text{ nm}$, $N_c(\lambda_0) = 1.550$.

Предполагалось, что свет рассеивается на неоднородностях, падая из среды с показателем преломления $N_c(\lambda_0) = 1.550$ на область, находящуюся в поле упругой деформации решетки, искаженной дефектом, с показателем преломления, измененным за счет упругооптического эффекта. Это изменение составляет 5–10% от значения N_c в случае дефектов типа гидроксильных групп в кварце [10].

Искомой величиной был параметр дифракции x , значение которого варьировалось в процессе расчета до момента наилучшего совпадения формы экспериментальных и теоретических зависимостей I_s и $P(\theta)$. При использовании методики расчета рассеяния света на шаре для кристаллов синтетического кварца оказалось, что интенсивность рассеяния не зависела от угла, согласно экспериментальным данным (рис. 2, а), начиная со значений $x \leq 0.8$. Следовательно, размеры неоднородностей в образцах, индикатрисы рассеяния которых приведены на рис. 2, а, оценивались по максимальному значению x и составляли $d = 1300 \text{ \AA}$. В образцах природного кварца, индикатрисы рассеяния которых показаны на рис. 2, б, одновременное совпадение рассчитанных зависимостей $I_s(\theta)$ и $P(\theta)$ с измеренными достигалось только для случая рассеяния света на бесконечных цилиндрах с диаметрами оснований $d = 6.2 \text{ (3)}$ и 7.0 мк (4) . Результаты расчетов для образцов природного кварца согласуются с выводами работы [11], где наблюдалась характерная для рассеяния на цилиндрах дифракция света, падающего перпендикулярно оптической оси кристаллов. Однако такое рассеяние наблюдалось в [11] на кристаллах синтетического кварца в окрестности фазового перехода, причем размеры оснований цилиндров оценивались в 30 мк . В наших исследованиях цилиндрические неоднородности

родности также вытянуты вдоль оптической оси, но только на образцах природного кварца и при комнатной температуре, при которой и регистрировались все угловые характеристики рассеяния.

Наблюдаемый на эксперименте плавный ход кривой $I_s(\theta)$ связан, по-видимому, с усреднением по размерам и форме неоднородностей в освещенном объеме образца.

Совокупность экспериментальных данных позволяет высказать предположение, что аномальное рассеяние в точке фазового перехода кварца вызвано собственными несовершенствами структуры.

Список литературы

- [1] Shapiro S.M., Cummins H.Z. // Phys. Rev. Lett. 1969. V. 21. N 23. P. 1578-1583.
- [2] Яковлев И.А., Величкина Т.С., Михеева Д.Ф. // Кристаллография. 1956. Т. 1. № 1. С. 123-134.
- [3] Fürth R. // Proc. Phys. Soc. 1956. V. B69. N 2. P. 255-258.
- [4] Humphreus-Owen S.P.F. // Proc. Phys. Soc. 1956. V. B69. N 2. P. 350-355.
- [5] Tourel L., Humphreus-Owen S.P.F. // Proc. Phys. Soc. 1960. V. 75. N 4. P. 473-489.
- [6] Theimer O. // Annals. Phys. 1958. V. 3. N 2. P. 408-422.
- [7] Любчанский И.Л., Овандер Л.И., Сукстанский А.Л. // ФТТ. 1976. Т. 18. № 8. С. 2232-2238.
- [8] Фабелинский И.Л. Молекулярное рассеяние света. М.: Мир, 1965. С. 503.
- [9] Борен К., Хафмен Д. Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986. С. 660.
- [10] Фразер Д. // Физическая акустика. Т. 5. / Под ред. У.Мэзона. М.: ИЛ, 1960.
- [11] Шустин О.А., Черневич Т.Г., Иванов С.А., Яковлев И.А. // Письма в ЖЭТФ. Т. 26. № 6. С. 349-352.

Плодоовощной институт им. И.В.Мичурина
Мичуринск

Поступило в Редакцию
23 июня 1992 г.
В окончательной редакции
15 декабря 1993 г.