УДК 535.36 : 548.0

МАНДЕЛЬШТАМ-БРИЛЛЮЭНОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ В АКУСТИЧЕСКИ АКТИВНЫХ КРИСТАЛЛАХ

В. Н. Белый, В. А. Пенязь и А. Н. Сердюков

Теоретическое изучение и экспериментальное исследование мандельштам-бриллюэновского рассеяния света в кристаллах является одним из способов определения некоторых параметров как самого вещества, например, упругих и фотоупругих постоянных [1-3], так и параметров распространяющегося в среде гиперзвука: скорости [4], полного амплитудного коэффициента поглощения звука [5] и т. д. Достаточно общее изложение теории молекулярного рассеяния света в кристаллах без учета акустической активности сделано, например, в [6, 7]. В настоящем сообщении в рамках феноменологического подхода рассмотрено мандельштам-бриллюэновское рассеяние в акустически активных кристаллах на примере классов кубической и тригональной сингоний.

Наличие тепловых, или так называемых упругих дебаевских, волн в кристалле приводит, как известно [6, 7], к молекулярному рассеянию света. Упругая волна вызывает изменение тензора диэлектрической проницаемости [6, 8]

$$\Delta\varepsilon_{ij} = -\varepsilon_{im}\pi_{mnrs}\sigma_{rs}\varepsilon_{nj}, \tag{1}$$

где σ_{rs} — тензор упругих напряжений, π_{mnrs} — тензор пьезооптических коэффициентов, ε_{ij} — невозмущенный тензор диэлектрической проницаемости. Для акустически активных сред тензоры напряжений σ_{rs} и деформаций u_{rs} связаны соотношением [9, 10]

$$\sigma_{rs} = c_{rspq}u_{pq} + d_{rspq,\,l}\nabla_l u_{pq}. \tag{2}$$

Здесь c_{rspq} — тензор упругих постоянных, $d_{rspq,\,l}$ — псевдотензор акустической активности кристалла, $u_{pq} = (\nabla_p u_q + \nabla_q u_p)/2$, $\mathbf{u}$ — вектор смещения частиц упругой среды. Совместное использование (1) и (2) позволяет выразить $\Delta\varepsilon_{ij}$ через тензор деформаций u_{pq}. Для кубических кристаллов и кварца (вдоль оси третьего порядка)

$$\Delta\varepsilon_{ij} = \varepsilon^2 (p_{ijmn}u_{mn} + \gamma_{ijmn,\,l}\nabla_l u_{mn}), \tag{3}$$

где $p_{ijmn} = \pi_{ijkl}c_{klmn}$ — тензор фотоупругости, параметр $\gamma_{ijmn,\,l}$ связан с тензором акустической активности соотношением

$$\gamma_{ijmn,\,l} = \pi_{ijrs}d_{rsmn,\,l}. \tag{4}$$

При распространении в среде электромагнитной волны с напряженностью электрического поля $\mathbf{E}^{(0)}$ тепловая упругая волна возбуждает флуктуирующую поляризацию $\mathbf{P} = \Delta\varepsilon\mathbf{E}^{(0)}/4\pi$, которая является источником рассеянного излучения. Таким образом, рассеянное электромагнитное излучение будет описываться материальным уравнением

$$\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E} \tag{5}$$

и уравнениями Максвелла

$$\operatorname{rot}\mathbf{E} = -\frac{1}{c}\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t}, \quad \operatorname{div}\mathbf{B} = 0, \quad \operatorname{rot}\mathbf{B} = \frac{1}{c}\frac{\partial\mathbf{D}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c}\mathbf{J}, \quad \operatorname{div}\mathbf{D} = 4\pi\rho \tag{6}$$

с источниками

$$\mathbf{J} = \frac{\partial\mathbf{P}}{\partial t} = \frac{1}{4\pi}\frac{\partial}{\partial t}(\Delta\varepsilon\mathbf{E}^{(0)}), \tag{7}$$

$$\rho = -\operatorname{div}\mathbf{P} = -\frac{1}{4\pi}\operatorname{div}(\Delta\varepsilon\mathbf{E}^{(0)}). \tag{8}$$

Пусть рассеиваемое электромагнитное поле представляет циркулярно поляризованную монохроматическую волну. Полагая

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. СКОРИНЫ

$$\mathbf{B} = \operatorname{rot} \mathbf{A}, \quad \mathbf{E} = -\frac{1}{c}\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \operatorname{grad} \varphi, \tag{9}$$

и используя условие Лоренца в форме [11]

$$\operatorname{div} \mathbf{A} + \frac{\varepsilon}{c}\frac{\partial \varphi}{\partial t} = 0$$

для монохроматического источника $\mathbf{J} = \mathbf{J}_{\Omega} e^{-i\Omega t}$ ($\Omega = \omega \pm \Omega_0$, Ω_0 — частота упругой волны), из (5), (6), (9) получаем уравнение

$$(\nabla^2 + k_0^2)\, \mathbf{A}_{\Omega}(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{c}\, \mathbf{J}_{\Omega}, \tag{10}$$

где $k_0 = \sqrt{\varepsilon}\, \Omega/c = n_0 \Omega/c$. Решение уравнения (10) осуществим методом функции Грина, развитым в [12] для гиротропных сред и примененным для аналогичных задач в [13].

На достаточно большом расстоянии от рассеивающего объема выражение для векторных потенциалов лево- и правоциркулярно-поляризованных волн принимает вид

$$\mathbf{A}^{\lambda_1\lambda_2}_{(\pm)\Omega} = \frac{e^{ikR_0}}{v\sqrt{\varepsilon}\, R_0} \int (1 \pm i\mathbf{a}^{\times} - \mathbf{a}\cdot\mathbf{a})\, \mathbf{J}^{\lambda_1\lambda_2}_{\Omega} e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}} dV, \tag{11}$$

где $v = c/n$, $\mathbf{k}' = \mathbf{a}\Omega/c$, $\mathbf{a} = \mathbf{R}/|\mathbf{R}|$ — единичный вектор направления распространения рассеянной волны, $\lambda_1 = \pm 1$ соответствует левой и правой круговой поляризации падающего поля, $\lambda_2 = \pm 1$ — левой и правой циркулярной поляризации упругой волны, косой крест означает операцию векторного произведения, так что в данном случае $\mathbf{a}^{x} J_{\Omega} = [\mathbf{a}\mathbf{J}_{\Omega}]$, $\mathbf{a}\cdot\mathbf{a}$ — диада, т. е. $(\mathbf{a}\cdot\mathbf{a})_{ij} = a_i a_j$.

Учитывая (9), а также соотношение $\mathbf{E}_{\pm} = \pm i\mathbf{B}_{\pm}/n$ для циркулярно-поляризованных волн, найдем циркулярные составляющие электрического поля рассеянной волны

$$\mathbf{E}^{\lambda_1\lambda_2}_{(\pm)\Omega} = \pm \frac{i}{2c\sqrt{\varepsilon}} \operatorname{rot} \left\{ \frac{e^{ikR_0}}{R_0} \int (1 \pm i\mathbf{a}^{x} - \mathbf{a}\cdot\mathbf{a})\, \mathbf{J}^{\lambda_1\lambda_2}_{\Omega} e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}} dV \right\}. \tag{12}$$

Для монохроматических полей $\mathbf{E}^{(0)} = \mathbf{E}^{(0)\lambda_1}_{\omega} e^{-i\omega t}$, $\mathbf{u} = \mathbf{u}^{\lambda_2}_{\Omega_0} e^{\pm i\Omega_0 t}$ — напряженность электрического поля рассеянного излучения, согласно (12), равна

$$\mathbf{E}^{\lambda_1\lambda_2}_{(\pm)\Omega} = -\frac{e^{ikR_0}}{8\pi R_0 \varepsilon} \left[\mathbf{k}' \left[\mathbf{k}' \mathbf{G}^{\lambda_1\lambda_2}_{(\pm)\Omega}\right]\right], \tag{13}$$

где

$$\mathbf{G}^{\lambda_1\lambda_2}_{(\pm)\Omega} = \int \left\{ \mathbf{J}^{\lambda_1\lambda_2}_{\Omega} \pm i \left[\mathbf{a}\mathbf{J}^{\lambda_1\lambda_2}_{\Omega}\right] \right\} e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}} dV.$$

Вводя $\mathbf{q}^{(\lambda_2)} = q_{\lambda_2}\mathbf{b}$ — волновые векторы звуковой волны, $\mathbf{b}$ — единичный вектор направления распространения акустического поля, $\mathbf{e}^{\lambda_2}$ — единичный вектор поляризации упругой волны, $\mathbf{e}^{\lambda_1}$ — единичный вектор поляризации падающей электромагнитной волны, с учетом условия Брэгга

$$\mathbf{k} + \mathbf{q}^{(\lambda_2)} - \mathbf{k}'_{\pm} = 0 \tag{14}$$

найдем окончательное выражение поля рассеянной волны

$$\mathbf{E}^{\lambda_1\lambda_2}_{(\pm)\Omega} = -\frac{e^{ikR_0}\Omega^2 V}{4\pi R_0 c^2} \left[\mathbf{a} \left[\mathbf{a} \left(\mathbf{Q}^{\lambda_1\lambda_2}_{\Omega} \pm i \left[\mathbf{a}\mathbf{Q}^{\lambda_1\lambda_2}_{\Omega}\right]\right)\right]\right]. \tag{15}$$

Входящая сюда величина V представляет объем рассеивающей среды, вектор $\mathbf{Q}^{\lambda_1\lambda_2}_{\Omega}$, согласно (3), (7), имеет вид

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ ИМЕНИ Ф. СКОРИНЫ

$$Q_{\Omega i}^{\lambda_1\lambda_2} = -\varepsilon^2 q_{\lambda_2} E^{(0)} u_0 \left(p_{ijmn} b_m + i q_{\lambda_2} \gamma_{ijmn,\, l} b_m b_l\right) e_n^{\lambda_2} e_j^{\lambda_1}, \tag{16}$$

где u_0 — амплитуда упругого поля, $E^{(0)}$ — амплитуда падающей волны. В дальнейшем вместо q_{λ_2} будем употреблять $q = (q_+ + q_-)/2$. Как показывает расчет [14], величина $\Delta q/q = (q_+ - q_-)/2$ имеет порядок $10^{-2} \div 10^{-3}$, так что при сделанном приближении можно считать $q_+ \simeq q_- \simeq q$.

Интенсивность лево- и правополяризованной волн равна

$$I_{\lambda_1} = \overline{|S_{\lambda_1}|} = \frac{c\sqrt{\varepsilon}}{8\pi}\, \overline{|\mathbf{E}_{\lambda_1}|^2} = \frac{c\sqrt{\varepsilon}}{8\pi} \overline{\left| \sum_{\lambda_2} \left(\mathbf{E}_{(+)\Omega}^{\lambda_1\lambda_2} + \mathbf{E}_{(-)\Omega}^{\lambda_1\lambda_2}\right)\right|^2}. \tag{17}$$

Здесь черта означает операцию усреднения, нижний знак соответствует «+» — левой и «—» — правой циркулярной поляризации рассеянной электромагнитной волны. В результате суммирования с учетом (15) имеем

$$I_{\lambda_1} = \frac{c\sqrt{\varepsilon}}{2\pi} \sum_{\lambda_i,\, \lambda_j = \pm 1} \overline{\mathbf{E}_{\Omega}^{\lambda_1\lambda_i} \mathbf{E}_{\Omega}^{\lambda_1\lambda_j *}}, \tag{18}$$

где

$$\mathbf{E}_{\Omega}^{\lambda_1\lambda_i} = -\frac{e^{ikR_0}\Omega^2 V}{4\pi R_0 c^2} \left\{\mathbf{a}\left(\mathbf{a}\mathbf{Q}_{\Omega}^{\lambda_1\lambda_i}\right) - \mathbf{Q}_{\Omega}^{\lambda_1\lambda_i}\right\}. \tag{19}$$

Дальнейшая конкретизация вычисления напряженности электрического поля, интенсивности и коэффициента рассеяния требует выбора определенного класса кристаллов и задания геометрии процесса рассеяния.

Рассмотрим обратное мандельштам-бриллюэновское рассеяние в α-кварце (класс 32) с учетом акустической активности. Пусть волновые векторы падающей электромагнитной волны $\mathbf{k}$ и звуковой волны $\mathbf{q}$ направлены вдоль оси третьего порядка X_3. Из условия Брэгга (19) вытекает, что волновой вектор рассеянного излучения направлен в противоположную сторону, т. е. $\mathbf{k}' = k'\,(0,\ 0 - 1)$. Решение уравнения Кристоффеля [10] дает в рассматриваемом случае три акустических волны: одну продольную, скорость которой не зависит от параметра акустической активности, и две поперечные с циркулярной поляризацией $\mathbf{e}^{\lambda_2} = (\mathbf{e}_1 + i\lambda_2\mathbf{e}_2)/\sqrt{2}$. Рассеиваемое электромагнитное излучение имеет также циркулярную поляризацию, единичный вектор которой равен $\mathbf{e}^{\lambda_1} = (\mathbf{e}_1 + i\lambda_2\mathbf{e}_2)\sqrt{2}$.

В результате суммирования (19) по $\lambda_i = \pm 1$ с учетом свойств симметрии тензоров упругооптических и пьезооптических постоянных [15], а также тензора акустической активности [16] найдем выражение напряженности электрического поля рассеянного излучения

$$\mathbf{E}_{\lambda_1} = -\frac{i\lambda_1 e^{ikR_0} q u_0 E^{(0)} \Omega^2 V \varepsilon^2}{\sqrt{2}\,\pi R_0 c^2} \left\{p_{41} + \lambda_1 q\left[(\pi_{11} - \pi_{12})\, d_{15.3} + 2\pi_{14} d_{54.3}\right]\right\} (\mathbf{e}_1 - i\lambda_2\mathbf{e}_2)/\sqrt{2}. \tag{20}$$

Здесь использованы шестимерные обозначения пар трехмерных симметричных индексов [17]. Из (20) следует, что при обратном рассеянии в α-кварце с учетом акустической активности вдоль осей третьего порядка направление циркулярной поляризации изменяется на противоположное.

Используя (17)—(20), нетрудно найти интенсивность рассеянного света

$$I_{\lambda_1} = \frac{\Omega^4 V^2 \varepsilon^4 \sqrt{\varepsilon}\, q^2\, |E^{(0)}|^2\, \overline{u_0^2}}{16\pi^2 R_0^2 c^3} \left\{p_{41}^2 + 2\lambda_1 q p_{41}\left[(\pi_{11} - \pi_{12}) d_{15.3} + 2\pi_{14} d_{45.3}\right]\right\} \tag{21}$$

и коэффициент рассеяния [6]

$$R_{\lambda_1} = \frac{I_{\lambda_1} R_0^2}{I_0 V} = \frac{\Omega^4 V \varepsilon^4 q^2 \overline{u_0^2}}{2\pi^2 c^4} \left\{p_{41}^2 + 2\lambda_1 q p_{41}\left[\pi_{11} - \pi_{12}) d_{15.3} + 2\pi_{14} d_{45.3}\right]\right\}. \tag{22}$$

Как следует из общей теории термодинамических флуктуаций, звуковую волну можно рассматривать как совокупность двух классических осцилляторов, при этом энергия поля равна

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорины

$$\rho V \bar{u}_0^2/2 = V\rho\,(v_t q)^2\,\bar{u}_0^2/4 = kT. \tag{23}$$

Подстановка (23) в (22) позволяет найти разность коэффициентов рассеяния лево- и правоциркулярно поляризованных электромагнитных волн в α-кварце

$$\Delta R_{\text{кварц}} = \frac{128\pi^2\varepsilon^4\Omega_0 kT}{\lambda^4\rho v_t^3}\, p_{41}\,[(\pi_{11}-\pi_{12})\, d_{15.3} + 2\pi_{14} d_{45.3}], \tag{24}$$

где λ — длина волны рассеянного света, ρ — плотность рассеивающего вещества, v_t — скорость поперечных колебаний, T — температура кристалла. Как показывает расчет с использованием численных значений оптических и акустических параметров [14, 18], параметр ΔR составляет величину $\sim 10^{-7}$ см$^{-1}$ при $T = 300$ K и $\lambda = 589$ нм.

Аналогичная методика может быть применена к расчету интенсивности и коэффициентов рассеяния для кубических кристаллов классов 23 и 432. В случае, когда волновой вектор **q** направлен вдоль оси второго порядка, а волновые векторы **k** и **k′** лежат в плоскости, образованной этими осями, и составляют с вектором **q** соответственно углы φ и $\pi + 3\varphi$, разность коэффициентов рассеяния лево- и правоциркулярно поляризованных электромагнитных волн для указанных классов имеет вид

$$\Delta R = \frac{128\pi^2\varepsilon^4\Omega_0 kT}{\lambda^4\rho v_t^3}\, d\pi_{44} p_{44} \cos\frac{3}{2}\vartheta \sin 2\vartheta. \tag{25}$$

Здесь d равно $d_{54.3}$ или $d_{56.1}$ соответственно для классов 432 и 23. Отметим, что в случае обратного рассеяния ($\vartheta = \pi$) величины $R_{\lambda_1(432)}$, $R_{\lambda_1(23)}$, $\Delta R_{(432)}$ и $\Delta R_{(23)}$ равны нулю. Полученные формулы (24), (25) позволяют по разности коэффициентов рассеяния определить некоторые компоненты тензора акустической активности кубических кристаллов и кварца, которые до настоящего времени еще не измерены.

Литература

[1] L. Cecchi, R. Vacher, L. Danyach. J. Phys. (France), *31*, 501, 1970.
[2] T. S. Narasimhamurty. J. Opt. Soc. Am., *59*, 582, 1969.
[3] W. S. Gornall, B. P. Stoicheff. Phys. Rev., *4*, 4518, 1971.
[4] V. R. Velasco, F. Garcia-Moliner. Sol. St. Commun., *33*, 1, 1980.
[5] М. А. Леонтович. ЖЭТФ, *9*, 1314, 1939.
[6] И. Л. Фабелинский. Молекулярное рассеяние света. Наука, М., 1965.
[7] Г. П. Матулевич. Тр. ФИ АН СССР, *5*, 9, 1950.
[8] F. Pockels. Lehrfurch der Kristalloptik. Leipzig—Berlin, Teubner, 1906.
[9] А. А. Андронов. Изв. вузов, Радиофизика, *3*, 645, 1960.
[10] D. L. Portigal, E. Burstein. Phys. Rev., *170*, 673, 1968.
[11] В. Л. Гинзбург. Теоретическая физика и астрофизика. Наука, М., 1975.
[12] В. В. Гвоздев, А. Н. Сердюков. Опт. и спектр., *47*, 544, 1979.
[13] В. Г. Гвоздев, В. А. Пенязь, А. Н. Сердюков. Опт. и спектр., *49*, 1168, 1980.
[14] C. Joffrin. J. Phys. Lett. (France), *41*, 391, 1980.
[15] Ю. И. Сиротин, М. П. Шаскольская. Основы кристаллофизики. Наука, М., 1979.
[16] K. Kumaraswany. Acta Crystallographica, *A36*, 760, 1980.
[17] Дж. Най. Физические свойства кристаллов и их описание при помощи тензоров и матриц. ИЛ, М., 1960.
[18] С. С. Горбач, А. В. Пахнев, М. П. Шаскольская. Фотоупругие свойства кристаллов. Обзоры по электронной технике, вып. 16, 1974.

Поступило в Редакцию 6 ноября 1981 г.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорины