

Technique and search results of atmosphere gas component sounding informative wavelengths

O. A. Romanovsky

Institute of Atmospheric Optics of the Siberian Branch of the Russian Academy of Science, Tomsk, Russia

On the basis of the proved absorption lines selection criteria and the offered atmosphere transmittance calculation algorithm the technique of informative wavelengths search for laser gas analyses on DIAL is developed. The described search technique can be applied in any spectral ranges under condition of addition of contemporary records about laser sources. Results of informative sounding wavelengths search in middle IR spectral range areas are resulted. The carried out calculations confirm perspectivity of CO-laser application for small-concentration atmosphere gas components remote laser sounding on DIAL.

PACS: 41.20.-q

УДК 535.243:543.42

Распространение света в кристаллах при наличии рассеяния

А. И. Колесников, А. В. Шелопаев, И. А. Каплунов, И. В. Талызин, В. Н. Горшков
Тверской государственный университет, г. Тверь, Россия

Теоретически и экспериментально показано, что при наличии рассеяния в кристаллах, методы расчета показателей ослабления света, основанные на законе Бугера, приводят к существенным погрешностям при оценках оптических характеристик материалов. Предложена методика оценки соотношения между вероятностями рассеяния и поглощения в оптических кристаллах.

PACS: 41.20.-q

Введение

Отклонения от экспоненциального характера ослабления света, определяемого законом Бугера, известны достаточно давно и изучались в основном экспериментально [1—6]. Объектами исследований являлись, как правило, не кристаллы, а жидкости, мутные стекла, аэрозоли. В данных средах наиболее отчетливо проявляется причина ослабления распространения в веществе света за счет рассеяния. При существенном рассеянии в объектах для вошедшего в исследуемую среду параллельного пучка света с интенсивностью I_0 не выполняются соотношения для ослабления интенсивности излучения, как учитывающие, так и не учитывающие рассеяние

$$I = I_0 \exp(-\alpha_{ab} h); \quad (1)$$

$$I = I_0 \exp(-\alpha_r h) = I_0 \exp[-(\alpha_{ab} + \alpha_{sow}) h], \quad (2)$$

где I — интенсивность вышедшего излучения;

α_{ab} — показатель поглощения;

h — толщина среды;

α_{sow} — показатель рассеяния;

$\alpha_r = \alpha_{ab} + \alpha_{sow}$ — показатель экстинкции (ослабления) света.

Формула (1) справедлива только при полном отсутствии рассеяния, а формула (2) — только по отношению к так называемым "баллистическим" фотонам, которые не испытывают ни поглощения, ни рассеяния. На самом деле рассеянные фотоны могут в результате отражений от границ среды или следующих актов рассеяния вновь продвигаться вперед и вносить свой вклад в световой поток, фиксируемый фотоприемником, расположенным на одной оси исходного пучка за исследуемым веществом.

Наличие неоднократного рассеяния сильнее-шим образом усложняет решение задачи о распространении света в различных средах [1, 5], причем в случае кристаллов необходимо учитывать рассеяние и отражение на полированных торцах и, как правило, на неполированной боковой поверхности образцов [7].

Таким образом, при заметном рассеянии не вполне корректными оказываются формулы, известные и используемые в оптической метрологии кристаллов, по которым рассчитываются показатели ослабления и поглощения света. В этих формулах данные величины вычисляются по экспериментально определенным коэффициентам пропускания T [8—12], в частности, стандартная формула для расчетов показателя ослабления α_r , применяемая в спектрофотометрических исследованиях, полученная без учета рассеяния, но учитывающая многократное отражение света [8—10]

$$\alpha_r = \frac{1}{h} \ln \left[\frac{(1-R)^2 + \sqrt{(1-R)^4 + 4T^2 R^2}}{2T} \right], \quad (3)$$

где R — коэффициент отражения света при нормальном падении.

Во многих работах, в том числе в публикациях последнего времени [8, 13—16], на основании таких данных о "показателях поглощения" (это в особенности касается оптических исследований полупроводниковых кристаллов) развиты представления о природе поглощения света, роли электронов и дырок, атомов различных примесей, зонной структуре, фононном спектре и т. д. Выведен и целый ряд полуэмпирических соотношений, в которые входит величина α_{ab} [8, 15, 17]. Подавляющее большинство справочных данных о показателях поглощения света кристаллами получены без учета рассеяния [18]. Определение показателей поглощения калориметрическим методом также не является более точным [19] — рассеянные фотоны также вносят свою долю в "чистое" поглощение кристаллов.

Недостаточна теоретическая проработка вопросов, связанных с невыполнением закона Бугера. В работе [1] был дан подробный обзор путей решения задачи о распространении пучка света в поглощающей и одновременно рассеивающей среде. Базовым соотношением, применяемым при расчетах интенсивности пучка света, идущего сквозь рассеивающую среду, является интегрально-дифференциальное уравнение переноса

$$\frac{dB(\bar{\ell})}{d\bar{\tau}} = -B(\bar{\ell}) + \frac{\Lambda}{4\pi} \int_{4\pi} x(\gamma') B(\bar{\ell}') d\omega', \quad (4)$$

где B — яркость луча в направлении $\bar{\ell}$;

$\Lambda = \alpha_{sow}/(\alpha_{ab} + \alpha_{sow})$ — вероятность выживания фотона;

$d\bar{\tau} = \alpha d\bar{\ell}$; $\alpha = \alpha_{ab} + \alpha_{sow}$ — коэффициент ослабления (экстинкции);

γ' — угол между направлением пучка и направлением другого пучка лучей с яркостью $B(\bar{\ell}')$, идущих в телесном угле $d\omega'$;

$x(\gamma')$ — индикатриса рассеяния.

Второй член в правой части уравнения (4) назовем Q — член или функция источника. Если функция источника равна нулю, то уравнение переноса превращается в обычный закон Бугера-Ламберта в дифференциальной форме. Отклонения от этого закона определяются именно величиной Q . Задание соответствующих граничных условий позволяет решить задачу по распространению света в соответствующей среде.

Существует ряд аналитических способов решения уравнений переноса: метод последовательных приближений, метод Chandrasekhara, вариационные методы, инвариантные методы, методы Владимиров, Карлсона и конечно-разностный метод [1]. Тем не менее и в современных работах некоторые авторы придерживаются упрощений в рамках двухпоточковой модели Кубелки-Мунка при сохранении экспоненциального закона ослабления [3, 4, 6]. В работах [2, 5] делаются попытки достаточно условного разбиения среды на отдельные зоны, в пределах которых закон Бугера применим. При этом акты многократного рассеяния не учитываются, а расчетные формулы, в которые входят коэффициенты пропускания, выведены исходя из справедливости экспоненциального ослабления, но снабжены поправками, не имеющими ясного физического смысла. Это вызывает удивление, поскольку аналитические способы прямого решения уравнений переноса, рассмотренные еще в [1], во многих случаях дают более или менее правильные качественно и количественно картины распространения света, причем существенные отличия от закона Бугера подтверждались непосредственными фотометрическими измерениями. Однако ограничения на число актов рассеяния фотонов в явной или неявной форме присутствуют и в любом аналитическом решении. Поэтому такие решения не могут быть более точными, чем решения, основанные на непосредственном нахождении траекторий фотонов.

Моделирование процесса распространения света при наличии рассеяния

При моделировании процесса рассеяния при прохождении излучения через кристаллическую среду акты рассеяния рассматриваются как последовательность случайных процессов, вероятность которых определяется известными формулами. Искомая интенсивность излучения измеряется числом траекторий, проходящих через данную точку пространства и представляющих фотоны данной энергии и направления. Такой способ расчета интенсивности света в кристалле использован авторами ранее [20] и в настоящей работе. Рассматривалась модель, в которой равномерный по

плотности поток фотонов в количестве I_0 падал перпендикулярно на левый торец кристалла (рис. 1). Кристалл представлял собой прямой круговой цилиндр длиной h и диаметром D ; торцы и боковая поверхность предполагались идеально гладкими, и рассеяние на поверхностях считалось равным нулю. Излучение предполагалось неполяризованным, интерференционные эффекты не учитывались.

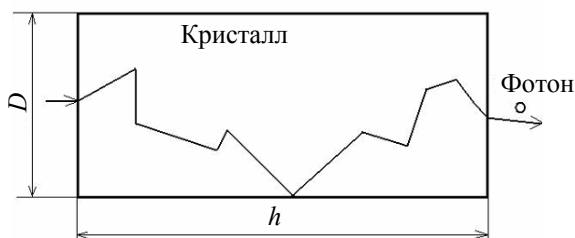


Рис. 1. Траектория одного из фотонов согласно модельному эксперименту

Для анализируемого материала задавался показатель преломления n . Коэффициенты отражения R считались равными вероятностям отражения W_R и вычислялись по формулам Френеля. Для фотонов, попавших в кристалл, учитывалось явление полного внутреннего отражения. Сам кристалл разбивался на N единичных слоев перпендикулярно оси кристалла. На пути длиной h/N вдоль любого направления задавались вероятность поглощения фотона α_{ab} и вероятность рассеяния фотона α_{sow} так, чтобы выполнялось условие $(\alpha_{ab} + \alpha_{sow}) \leq 1$, а на практике — $(\alpha_{ab} + \alpha_{sow}) \ll 1$.

При описании рассеяния света элементарным объемом рассматривались несколько типов индикатрис, определяющих вероятность рассеяния фотона в данном направлении $W(\gamma)$: сферическая индикатриса; релейевская индикатриса; вытянутая вперед индикатриса (рассеяние Ми). При расчетах для конкретных веществ (рассматривались кристаллы германия и парателлурида (α -TeO₂)) задавались индикатрисы, определенные экспериментально. Для германия были использованы данные работ [21—23] и собственные измерения авторов [9, 20, 24]. Для парателлурида использовали только собственные экспериментальные результаты, полученные с помощью спектрофотометрии и путем непосредственных измерений распределения интенсивности лазерного света, прошедшего сквозь образцы [24]. Индикатрисы рассеяния в германии и в парателлуриде в заданном спектральном диапазоне соответствовали малоугловому рассеянию Ми.

При расчетах определялась сумма косинусов углов с осью цилиндра, которые составляли траектории всех вылетевших из этого торца фотонов. Итогом расчетов являлось некоторое число I , по

которому определялся коэффициент пропускания $T = I/I_0$. Вычисления прекращали тогда, когда последний фотон (из падающего на левый торец потока фотонов) либо отражался, либо поглощался внутри кристалла, либо вылетал за его пределы. Для иллюстрации расчетной модели на рис. 1 изображена возможная траектория одного из фотонов.

Теоретические и экспериментальные результаты

Модельные эксперименты, выполненные в настоящей работе с учетом работы [20], показывают следующие закономерности, отличающие процесс реального распространения света в кристалле цилиндрической формы от идеального процесса, подчиняющегося закону Бугера-Ламберта:

1. Кривая $T = f(h)$, построенная на основании единственного измеренного значения $T(h_{\max})$ для диапазона $(0 - h_{\max})$ в соответствии с формулой (3) для случая, когда значение показателя ослабления $\alpha_r = \alpha_{ab}$, всегда лежит ниже любой модельной кривой, для которой $\alpha_r = \alpha_{sow} + \alpha_{ab}$. Физическое обоснование данной закономерности заключается в том, что при рассеянии часть первично рассеянных фотонов в результате последующих актов рассеяния и отражений от границ с определенной вероятностью может также достигать выходного торца кристалла и вылетать из него.

2. При увеличении вероятности рассеяния α_{sow} и сохранении неизменной вероятности поглощения α_{ab} соответствующая кривая $T(h)$ опускается вниз, поскольку сравнительно большая часть фотонов вылетает за пределы кристалла, не достигнув его выходного торца (рис. 2).

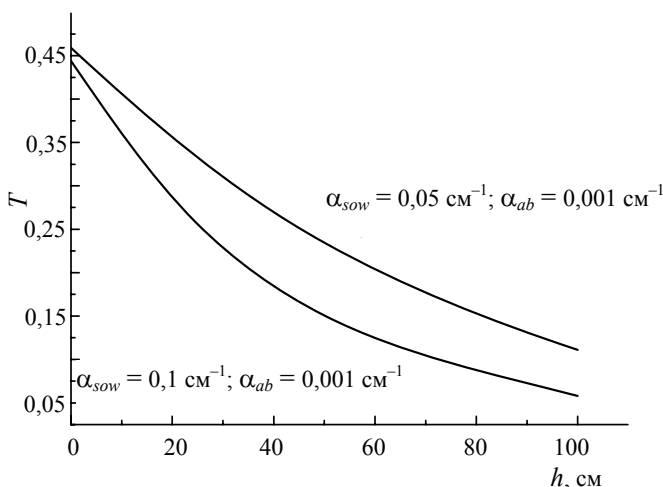


Рис. 2. Зависимости коэффициентов пропускания T от длины кристалла h для различных вероятностей рассеяния α_{sow} и поглощения α_{ab} фотонов

3. Чем больше отношение диаметра кристалла к его длине, тем рассеяние слабее сказывается на ходе кривых $T(h)$. Этот результат также понятен — чем короче кристалл при заданном диаметре, тем меньше относительная доля боковой поверхности, через которую фотоны покидают объем образца.

Представленные закономерности приводят к выводам, которые были подтверждены авторами практически. Если имеется абсолютно однородный по поглощению и рассеянию кристаллический образец, то можно путем оптических измерений определить коэффициент его ослабления. Разделив кристалл на отдельные части, подготовив из него образцы для оптических измерений и проведя сами измерения, можно вновь получить коэффициенты ослабления. При этом оказывается, что коэффициенты ослабления для того же кристалла, но меньшей длины, будут меньше, чем для исходного кристалла. Реальность получения таких результатов подтверждена в экспериментальной части работы.

В таблице представлены значения коэффициентов ослабления, вычисленные на основе измерения коэффициентов пропускания для образцов различной толщины, вырезанных из двух кристаллов — моно- и поликристалла германия, выращенных из расплава методом Чохральского.

Коэффициенты ослабления α моно- и поликристаллического германия (длина волны 6,0 мкм)

Толщина, см	Монокристалл		Поликристалл	
	$T, \%$	$\alpha, \text{см}^{-1}$	$T, \%$	$\alpha, \text{см}^{-1}$
1,2	46,5	0,007	45,5	0,017
3,7	45,3	0,008	42,2	0,019
7,3	43,0	0,010	33,0	0,038

Кристаллы выращивались при одинаковых технологических режимах, имели концентрацию легирующей примеси (сурьмы) в диапазоне $(6-8) \cdot 10^{15} \text{см}^{-3}$, что соответствует удельному сопротивлению 2,5—3,5 Ом·см. Размеры зерен поликристалла составляли 1—3 мм. Кристаллы имели форму цилиндров диаметром 38—40 мм, из которых для исследований были вырезаны три пары образцов одинаковой толщины. Образцы были достаточно однородными по удельному сопротивлению (концентрациям примеси) и соответствовали требованиям, предъявляемым к оптическому германию. Можно было предположить постоянство коэффициента ослабления α по образцам, однако эта величина для одного и того же материала падает с ростом толщины исследуемых образцов более чем в два раза. Для поликристаллических образцов этот эффект выражен сильнее.

Изученные закономерности позволяют практически находить истинное соотношение между вероятностями рассеяния и поглощения фотонов в кристаллах, у которых последовательно (для разных длин образцов одного и того же кристалла) измерялись коэффициенты пропускания света.

При исследовании образцов германия был использован метод математического моделирования и подбирались такие комбинации величин α_{sow} и α_{ab} , чтобы они давали коэффициенты пропускания T , измеренные экспериментально для известных толщин кристаллов h (см. таблицу).

Таким образом строились графики трех зависимостей $\alpha_{sow} = f(\alpha_{ab})_{T=T(h)}$. Поскольку исходный кристалл предполагался однородным, соответствующие зависимости для $h = 1,2; 3,7$ и $7,3$ см должны были пересекаться в одной точке. Как показано на рис. 3, три кривые (для монокристаллических образцов) действительно пересекаются в одной точке с координатами $\alpha_{ab} = 0,001 \text{см}^{-1}$; $\alpha_{sow} = 0,012 \text{см}^{-1}$. При этом вероятность рассеяния фотона для данного кристалла германия стала в 12 раз выше вероятности его поглощения.

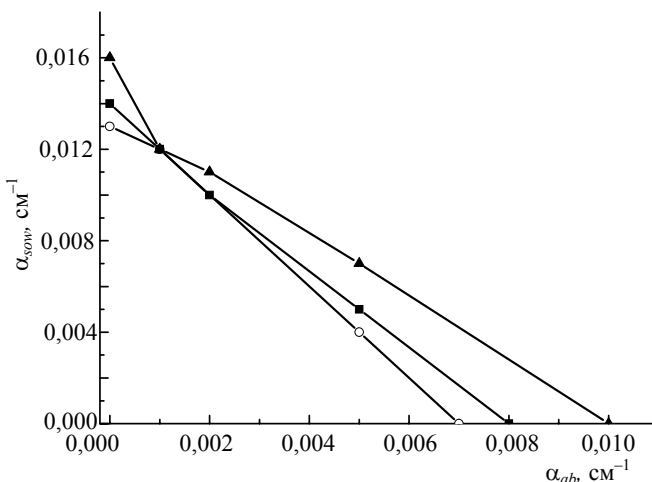


Рис. 3. Зависимости вероятности рассеяния фотона (α_{sow}) от вероятности поглощения фотона (α_{ab}) для трех образцов разной толщины монокристалла германия с известным коэффициентом пропускания (T):
 ○ — 1,2 см; ■ — 3,7 см; ▲ — 7,3 см

Заключение

Современные теория, экспериментальная техника и метрологические приемы, используемые для оценки вкладов рассеяния и поглощения в общее ослабление света в кристаллах, нуждаются в существенных коррективах. При заметном рассеянии (и, как следствие, невыполнении экспоненциального закона Бугера) можно использовать для описания и расчета световых потерь вероятности поглощения и рассеяния фотонов на единицу длины. Такие величины не только полностью характеризуют поглощение и рассеивающие свойства материала (для вероятности рассеяния необходима также ее зависимость от угла рассеяния), но и позволяют рассчитывать световые потери в образцах с любыми геометрическими размерами. Предложенная методика апробирована на полупроводниковых кристаллах германия и диэлектрических кристаллах парателлурита.

Разработан и осуществлен способ определения соотношений между вероятностями рассеяния и поглощения фотонов кристаллическим материалом. Способ основан на экспериментальном определении зависимости коэффициентов пропускания света от толщины для одного кристалла с последующим математическим моделированием зависимостей между вероятностями рассеяния и поглощения, комбинации которых дают измеренные коэффициенты пропускания. В результате может быть определено истинное соотношение между вероятностями рассеяния и поглощения фотонов в исследуемом материале. Показано, что в кристаллах германия, применяемых в инфракрасной оптике, имеющих низкие значения коэффициента ослабления, вероятности рассеяния фотонов примерно равны вероятности их поглощения, а иногда и существенно превышают последние. Подобных результатов следует ожидать при аналогичных исследованиях других материалов, используемых в классической, квантовой и нелинейной оптике, в оптоэлектронике и акустооптике.

Литература

1. Иванов А. П. Оптика рассеивающих сред. — Минск: Наука и техника, 1969. — 571 с.
2. Середенко М. М. Применимость закона Бугера к оценке светорассеивающих свойств гетерогенной среды с плоскими границами//Оптический журнал. 1999. Т. 66. № 1. С. 29—31.
3. Борткевич А. В., Полушкин А. Ю., Середенко М. М., Белых А. М., Беляева О. Н. Решение обратной задачи при определении оптических характеристик светорассеивающих материалов в видимой и ИК-областях спектра на основе двухпараметрической двухпоточковой теории рассеяния//Там же. Т. 66. № 3. С. 63—65.
4. Борткевич А. В., Лейкин С. М., Полушкин А. Ю., Середенко М. М. Решение обратной задачи при определении оптических характеристик слабомутных сред//Там же. С. 66—68.
5. Wind L., Szymanski W. W. Quantification of Scattering Corrections to the Beer-Lambert Law for Transmittance in Turbid Media//Measurement Science and Technology. 2002. V. 13. P. 270—275.
6. Воробьев Н. С., Подгаецкий В. М., Смирнов А. В., Терещенко С. А. Ослабление и рассеяние вперед лазерного излучения малой длительности в сильнорассеивающей среде//Квантовая электроника. 1997. Т. 24. № 7. С. 667—670.
7. Караванов В. Б., Сахновский Н. Ю. Влияние качества полировки поверхности монокристаллов Ge на их оптические константы//Журнал прикладной спектроскопии. 1986. Т. 14. № 4. С. 623—627.
8. Bishop P. J., Gibson A. F. Absorption Coefficient of Germanium at 10.6 μm //Applied Optics. 1973. V. 12. № 11. P. 2549—2550.
9. Оптические кристаллические материалы: Каталог. ГМП "Оптические материалы, элементы приборов". — Л.: ВНИЦ "ГОИ им. С. И. Вавилова", 1991. — 52 с.
10. Уханов Ю. И. Оптические свойства полупроводников. — М.: Наука, 1977. — 368 с.
11. Каплунов И. А., Колесников А. И., Шайович С. Л., Талызин И. В., Смирнов Ю. М. Измерение показателей ослабления света методом направленного пропускания//Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2006. Т. 72. № 4. С. 24—30.
12. Каплунов И. А., Колесников А. И., Талызин И. В., Седова Л. В., Шайович С. Л. Измерения коэффициентов ослабления света монокристаллами германия и парателлурита// Оптический журнал. 2005. Т. 72. № 7. С. 76—84.
13. Маколкина Е. Н., Пржевуцкий А. К. Влияние структурных дефектов на оптические параметры кристаллов германия//Там же. 2003. Т. 70. № 11. С. 64—67.
14. Галуцкий В. П. Широкополосная люминисценция ионов Si^{3+} в кристаллах ниобата лития: Автореф. ... дис. на соиск. уч. ст. канд. физ.-мат. наук. — Краснодар: КГУ, 2006. — 27 с.
15. Уханов Ю. И. Оптические свойства полупроводников. — М.: Наука, 1977. — 368 с.
16. Несмелова И. М., Астафьев Н. И. Оптические характеристики монокристаллического германия//Оптический журнал. 1999. Т. 66. № 1. С. 68—72.
17. Hutchinson C. J., Lewis C., Savage J. A., Pitt A. Surface and Bulk Absorption in Germanium at 10.6 μm //Applied Optics. 1982. V. 21. № 8. P. 1490—1495.
18. Блистанов А. А., Бондаренко В. С., Переломова Н. В. и др. Акустические кристаллы: Справочник. — М.: Наука, 1982. — 632 с.
19. Capron E. D., Brill O. L. Absorption Coefficient as a Function of Resistivity for Optical Germanium at 10.6 μm //Applied Optics. 1973. V. 12. № 3. P. 566—572.
20. Каплунов И. А. Зависимости коэффициентов пропускания света кристаллами от их толщины//Оптический журнал. 2005. Т. 72. № 12. С. 59—65.
21. Калинушкин В. П. Исследование примесных дефектов в полупроводниках методом рассеяния лазерного излучения ИК-диапазона: Труды ИОФ АН СССР. 1986. Т. 4. С. 3—59.
22. Заболотский С. Е., Калинушкин В. П., Крынецкий Б. Б. и др. Определение параметров точечных центров, образующих "слабые" примесные скопления в полупроводниковых материалах//ФТП. 1987. Т. 21. С. 65—78.
23. Воронков В. В., Воронкова Г. И., Зубов Б. В. и др. Рассеяние инфракрасного лазерного излучения — метод исследования локальных неоднородностей в чистых полупроводниках//ФТТ. 1981. Т. 23. Вып. 1. С. 117—125.
24. Каплунов И. А., Колесников А. И., Шайович С. Л., Талызин И. В. Рассеяние света монокристаллами германия и парателлурита//Оптический журнал. 2005. Т. 72. № 3. С. 51—56.

Статья поступила в редакцию 1 августа 2008 г.

Light propagation in scattering crystals

A. I. Kolesnikov, A. V. Shelopaev, I. A. Kaplunov, I. V. Talyzin, V. N. Gorshkov
Tver State University, Tver, Russia

It is shown theoretically and experimentally that the methods of calculation of light attenuation on the basis of Bugar law may introduce essential errors into the characterization of optical parameters of scattering materials. A method is proposed for the estimation of the relation between the probabilities of scattering and absorption in optical crystals.