

УДК 549.651.24; 535.4

ПЕРИОД ПЕРИСТЕРИТОВОЙ РЕШЕТКИ И ИНТЕРФЕРЕНЦИОННАЯ МОДЕЛЬ ИРИЗАЦИИ

А.П. Симаков, А.В. Смирнов, Б.А. Федоров, М.А. Иванов

Разработана численная интерференционная модель явления иризации плагиоклазов. На основе интерференционной модели рассчитаны спектры иризации для группы эталонных образцов лабрадора с разными цветами иризации. Модельные спектры эталонных образцов соответствуют экспериментальным в пределах погрешности 10–15%. По результатам моделирования обоснована возможность иризации плагиоклазов вне видимого диапазона (в ультрафиолетовой и ближней инфракрасной областях). Экспериментально подтверждено наличие интерференционных максимумов в ближней инфракрасной области.

Ключевые слова: иризация, плагиоклаз, перистеритовая решетка, интерференционная модель.

Введение

Сведения об иризации плагиоклазов встречаются в литературе, начиная с конца XIX в. Характерно, что до 1954 г. исследователи основное внимание уделяли оптическим особенностям иризации, в результате чего были выявлены главные ее закономерности, и было выдвинуто несколько гипотез о физической сущности явления. Вопрос же о его *минералогической причине*, т.е. об особенностях минеральных фаз, на которых происходит иризация, занимает основное место в работах, начиная с 50-х годов прошлого века.

В рентгеноструктурных и электронно-микроскопических исследованиях этого периода [1, 2] наличие иризации рассматривалось как подтверждение явления распада твердого раствора в плагиоклазах. Иризация сама по себе не рассматривалась, а известные ее закономерности не учитывались. В то же время электронно-микроскопическими исследованиями было установлено, что иризирующие кристаллы представляют собой совокупность тонких плоскопараллельных пластинок, размеры которых практически бесконечны по сравнению с их толщиной. Отсюда следует, что явление иризации может быть результатом интерференции лучей, отраженных от поверхностей раздела между пластинками.

Одним из наиболее полных аналитических обзоров в этой области до сих пор остается работа Н.К. Крамаренко [3]. В ней предполагается, что состав пластинок каждого типа остается постоянным для близких по валовому составу образцов. В этом случае интенсивность пучков, отраженных от единичных поверхностей раздела пластинок, будет оставаться (пренебрегая поглощением света в пластинке) постоянной. В той же работе автором представлены уравнения, описывающие явление иризации как результата интерференции света на стопке перистеритовых пластин.

Однако модель Крамаренко, основанная на ряде допущений и упрощений, недостаточна для создания на ее основе строгой интерференционной модели явления иризации:

- в ней не используются реальные (полученные экспериментально) толщины перистеритовых пластин и порядок идентичности;
- модель не предусматривает алгоритм расчета интерференционной картины для бесконечного количества пластин;
- все выкладки ограничиваются частными случаями для пар перистеритовых пластин разного типа;
- типизация пластин основывается на их химическом составе (основности), а не на оптических характеристиках, таких как показатели преломления и поглощения;
- недостаточно полно учтены поляризационные эффекты при отражении света стопкой перистеритовых пластин.

Представленная в настоящей работе интерференционная модель иризации, напротив, использует параметры перистеритов (толщины пластин и период идентичности), полученные экспериментальным путем, и перистеритовые пластины типизируются по показателю преломления. Такой подход к анализу явления иризации в лабрадорах ранее был предложен в диссертации одного из авторов [4]. Расчет интерференционной картины может быть произведен для любого количества слоев. Слои разных типов при

этом могут иметь разную толщину. Такая модель не только позволяет оценить вклад в природу иризации различных конституционных особенностей кристаллов лабрадора, но и дает возможность решить обратную задачу: по известному интерференционному спектру определять толщину перистеритовых пластин. В перспективе такие данные могут быть использованы для оценки физических условий посткристаллизационных изменений плагиоклазов. Подобные задачи ранее решались для просветляющих покрытий и многослойных фильтров [5, 6], но, как правило, для случая нормального падения лучей на многослойную систему. Используемый в настоящей работе метод позволяет производить расчет интерференционной картины при произвольном угле падения луча.

Методика расчета

Для предлагаемой интерференционной модели иризации был использован рекуррентный метод расчета оптических характеристик многослойных систем [7], основанный на формулах Френеля.

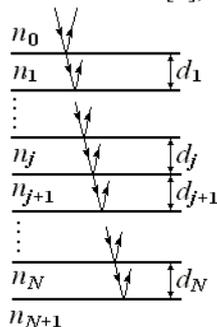


Рис. 1. Взаимное расположение границ

Рассмотрим систему, состоящую из N плоских прозрачных слоев с показателями преломления n_j и толщинами d_j ($j = 1, 2, \dots, N$). Система ограничена сверху средой с показателем преломления n_0 , снизу – средой с показателем преломления n_{N+1} (рис. 1). Свет, падающий из среды n_0 , частично отражается и частично преломляется на каждой из $N+1$ границ.

Амплитудные коэффициенты отражения и пропускания на границах различаются для компонент, поляризованных в плоскости падения (p -компонента) и перпендикулярно плоскости падения (s -компонента). Значения этих коэффициентов $r_{j,j+1}$ и $t_{j,j+1}$ на границе раздела между слоями n_j и n_{j+1} (рис. 2) можно найти по формулам Френеля в следующем виде [7]:

$$r_{j,j+1} = \frac{q_j - q_{j+1}}{q_j + q_{j+1}}, \quad t_{j,j+1} = \frac{2q_j}{q_j + q_{j+1}},$$

где $q_j = \begin{cases} n_j / \cos(\alpha_j), & \text{для } p\text{-компоненты;} \\ n_j \cos(\alpha_j), & \text{для } s\text{-компоненты.} \end{cases}$

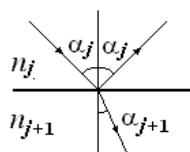


Рис. 2. Отражение и преломление на одной из промежуточных границ

Коэффициент отражения для всей структуры может быть найден с помощью рекуррентного метода, описанного в монографии [7]. На первом шаге вычисляется коэффициент $r_{N-1,N+1}$ отражения от N -го слоя в предположении, что сверху от него находится среда с показателем преломления n_{N-1} , при этом учитывается интерференция волн, отраженных от обеих границ слоя. Далее вычисляется коэффициент отражения $r_{N-2,N+1}$ от системы из $(N-1)$ -го и N -го слоев как результат интерференции волн, отраженных от N -го слоя и от верхней границы $(N-1)$ -го слоя. Коэффициент отражения $r_{j-1,N+1}$ для системы слоев с номерами $j, j+1, \dots, N$ выражается через коэффициент отражения $r_{j,N+1}$ для системы слоев с номерами $j+1, j+2, \dots, N$ и коэффициент отражения $r_{j-1,j}$ от верхней границы j -го слоя. Коэффициент отражения $r_{j-1,N+1}$ рассчитывается по рекуррентной формуле:

$$r_{j-1,N+1} = \frac{r_{j-1,j} + r_{j,N+1} \exp(-2i\varphi_j)}{1 + r_{j-1,j} r_{j,N+1} \exp(-2i\varphi_j)} \quad (j = N-1, N-2, \dots, 1),$$

где $\varphi_j = \frac{2\pi}{\lambda} n_j d_j \cos(\alpha_j)$.

Амплитудный коэффициент отражения $r_{0,N+1}$ для всей структуры вычисляется на последнем шаге указанной рекуррентной процедуры.

Коэффициент отражения R по интенсивности определяется соотношением

$$R = |r_{0,N+1}|^2.$$

Для расчета оптических характеристик перистеритовых структур в лабрадорах необходимо учесть особенности ориентировки перистеритов в кристалле. Стопка перистеритовых пластин ориентирована по плоскости (081) и образует угол δ с плоскостью второго пинакоида (010). Величина угла δ находится в интервале 5° – 13° и зависит от валового соотношения Ca и Na в конкретном кристалле. Точное значение δ может быть определено экспериментально с помощью гониометра. Таким образом, луч света, падая на кристалл, сначала проходит через клин, частично поляризуется и только после этого попадает на стопку перистеритовых пластин (рис. 3), которые представляют собой последовательно чередующиеся слои натриевой (альбит Na $[AlSi_3O_8]$) и калиевой (анортит Ca $[Al_2Si_2O_8]$) фаз распада твердого раствора. Пластины разного состава близки по толщине и имеют приблизительно одинаковую протяженность. Доминирующую толщину пластин d называют периодом идентичности перистеритовой структуры (решетки).

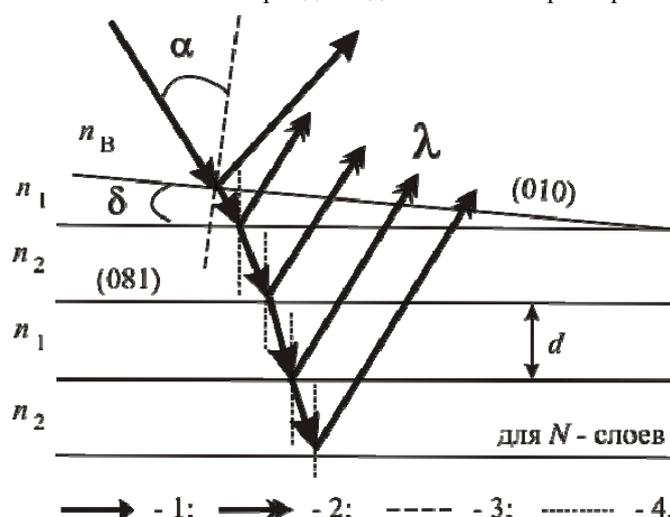


Рис. 3. Схема интерференции света в кристалле лабрадора: 1 – ход лучей сложного света; 2 – ход интерференционно усиленных лучей иризационного спектра; 3 – перпендикуляр к плоскости раздела сред n_B и n_1 ; 4 – перпендикуляры к плоскостям раздела сред; α – угол падения первичного луча сложного света на плоскость (010) кристалла; n_1 и n_2 – показатели преломления кальциевой и натриевой фаз распада; n_B – коэффициент преломления воздуха; δ – угол клина; d – период идентичности перистеритовой структуры; N – число слоев

Присутствие клина ограничивает диапазон углов падения света непосредственно на стопку пластин. Максимальный угол падения α_{\max} может быть рассчитан по формуле

$$\alpha_{\max} = \arcsin\left(\frac{n_B}{n_1}\right) - \delta.$$

Результаты и их обсуждение

Входными параметрами для расчета единичного интерференционного спектра плагиоклаза (единичным считаем спектр, полученный при монохроматическом освещении многослойной системы под углом от 0° до угла полного внутреннего отражения) являются следующие величины: λ – длина волны; α – угол падения луча на плоскость спайности кристалла (010) (рис. 3); d – период перистеритовой решетки; n_1 , n_2 – показатели преломления для соответствующих фаз твердого раствора; N – количество слоев в системе.

Описанная процедура была использована для расчета единичного интерференционного спектра плагиоклаза. Полученная зависимость суммарной интенсивности интерферирующих волн от угла падения первичного луча $I_{\lambda=\text{const}} = f(\alpha)$ может быть визуализирована в виде двумерного графика в системе координат $(I_i; \alpha_i)$, где i – порядковый номер дискретного значения угла падения при выбранном шаге изменения этого угла $\Delta\alpha$.

Иризация, однако, возникает при падении на образец не монохроматического, а полихроматического, белого света. По этой причине для более адекватного восприятия результаты расчета лучше пред-

ставлять в виде матрицы значений интенсивности $I_{i,j}$ в координатах $(\alpha_i; \lambda_j)$, где j – порядковый номер дискретного значения длины волны при выбранном шаге ее изменения $\Delta\lambda$. Визуализировать такие матрицы удобно в виде трехмерного графика в координатах $(\alpha_i; \lambda_j; I_{i,j})$.

В качестве эталонных образцов для проведения расчета были взяты четыре образца лабрадора с финского месторождения Юламаа (Ylämaa): неиризирующий, с синей иризацией, с зеленой иризацией и с красной иризацией.

Спаянные сколы по (001), полученные от эталонных образцов, протравливались в растворе соляной кислоты по специальной методике [3] до проявления рельефа перистеритов. Для изготовленных таким образом препаратов в лаборатории кафедры физики Российского государственного педагогического университета им. Герцена (г. Санкт-Петербург) на сканирующем зондовом микроскопе «СОЛБЕР Р47-PRO» (Россия) полуконтактным методом были получены снимки поверхности рельефа травления, по профилям которых были определены значения d .

Определению периода d идентичности перистеритовой решетки предшествовало решение вопроса о способе соотнесения рельефа травления с перистеритовой неоднородностью кристалла. Принято считать, что перистеритовые пластинки разной основности растворяются при травлении с разной скоростью. Таким образом, положению пластинок одного типа на профиле рельефа должны соответствовать «провалы» (минимумы), а положению пластинок другого типа – «возвышения» (максимумы) [3]. Однако при травлении подобной слоистой системы на субмикронном уровне большое значение приобретает кривизна поверхности раздела растворяемой фазы и растворителя [8]. Соотношение растворимостей (или скоростей растворения) участка фазы с плоской поверхностью и участка той же фазы с криволинейной поверхностью описывается уравнением Кельвина [9]. Иными словами, значение d , определенное по описанной Крамаренко модели, будет в два раза меньше значения d , полученного исходя из модели травления Кельвина.

Для выбора способа интерпретации рельефа травления был проведен расчет модельных спектров эталонного образца с синей иризацией по периодам идентичности перистеритовой решетки, соответствующим разным способам интерпретации: $d = 75$ нм (интерпретация по Крамаренко) и $d = 150$ нм (интерпретация по Кельвину). Моделирование спектров проводилось в диапазоне $N = 2-1000$ слоев.

Известно, что при интерференции света на стопке пластин положение пиков определяется периодом идентичности стопки, а форма пиков и их интенсивность – количеством пластин в стопке [10]. Иначе говоря, при увеличении расчетного количества слоев на модельном спектре максимум интерференции должен увеличиваться по высоте с одновременным уменьшением по ширине.

На спектрах, рассчитанных для $d = 150$ нм, с увеличением N происходит уменьшение ширины пиков с резким увеличением интенсивности в ультрафиолетовой и инфракрасной областях. В видимой же части спектра не наблюдается заметного повышения интенсивности пиков. Большинство максимумов, расположенных в этой области, с увеличением числа слоев, напротив, теряет интенсивность, и только при большом количестве слоев становятся заметны несколько отдельно стоящих максимумов. Положение максимумов в видимой части спектра соответствует синей и зелено-синей областям.

Спектры, рассчитанные для $d = 75$ нм, демонстрируют иную картину. При $N = 2$ наблюдается один широкий максимум с низкой интенсивностью. С увеличением расчетного числа слоев он резко увеличивается по интенсивности и становится заметно уже. При большом количестве слоев ($N > 1000$) наблюдается только непрерывная серия узких максимумов с высокой интенсивностью. Разрывы между пиками в данном случае объясняются дискретностью рекуррентной функции, лежащей в основе представленной модели [7]. По своему положению линия максимумов также соответствует синей и зелено-синей области спектра.

Таким образом, оба варианта расчета дают спектры с характеристическими пиками в области спектра, близкой к визуально наблюдаемой иризационной картине. Если говорить об общих закономерностях, свойственных интерференционным спектрам, то во втором случае ($d = 75$ нм) они проявляются заметно лучше. Исходя из этого, можно заключить, что рельеф травления эталонных образцов является результатом различной скорости растворения перистеритовых пластин разной основности. Полученные таким образом данные свидетельствуют об увеличении периода d перистеритовой решетки с увеличением длины волны иризации в эталонных образцах лабрадора: неиризирующий – $d = 54 \pm 5$ нм, иризирующий синим – $d = 75 \pm 5$ нм, иризирующий зеленым – $d = 98 \pm 5$ нм и иризирующий красным – $d = 231 \pm 5$ нм.

Модельный расчет первого приближения для этих образцов был проведен при $N = 1000$ слоев. Дальнейшее увеличение количества слоев не влияло на суммарную интенсивность и положение интерференционных максимумов. Для первого приближения в разработанной модели были приняты следующие допущения:

- поглощение образца учитывалось путем искусственного ограничения расчетного количества слоев;

– угол δ принимался равным 10° . Результаты расчета интерференционных спектров для эталонных образцов представлены на рис. 4.

Для иризирующих образцов (рис. 4, б–г) в видимой области модельных спектров наблюдаются непрерывные линии максимумов. Положение этих линий соответствует тем областям спектра, в которых наблюдается иризация в каждом конкретном образце. Иначе говоря, расчетные интерференционные картины, полученные для иризирующих образцов эталонной группы, соответствуют (с учетом относительной спектральной чувствительности глаза) наблюдаемым визуально.

Стоит также отметить, что во всех модельных спектрах иризирующих плагиоклазов линии максимумов захватывают краевые части соседних цветовых зон. Это объясняет отсутствие в иризационных картинах плагиоклазов чистых (ньютоновских) цветов. В данном случае происходит сложение длин волн соседних диапазонов, в результате чего синий цвет приобретает оттенки фиолетового и зеленого, зеленый – синего и желтого, желтый – зеленого и красного, красный – желтого, оранжевого и карминного.

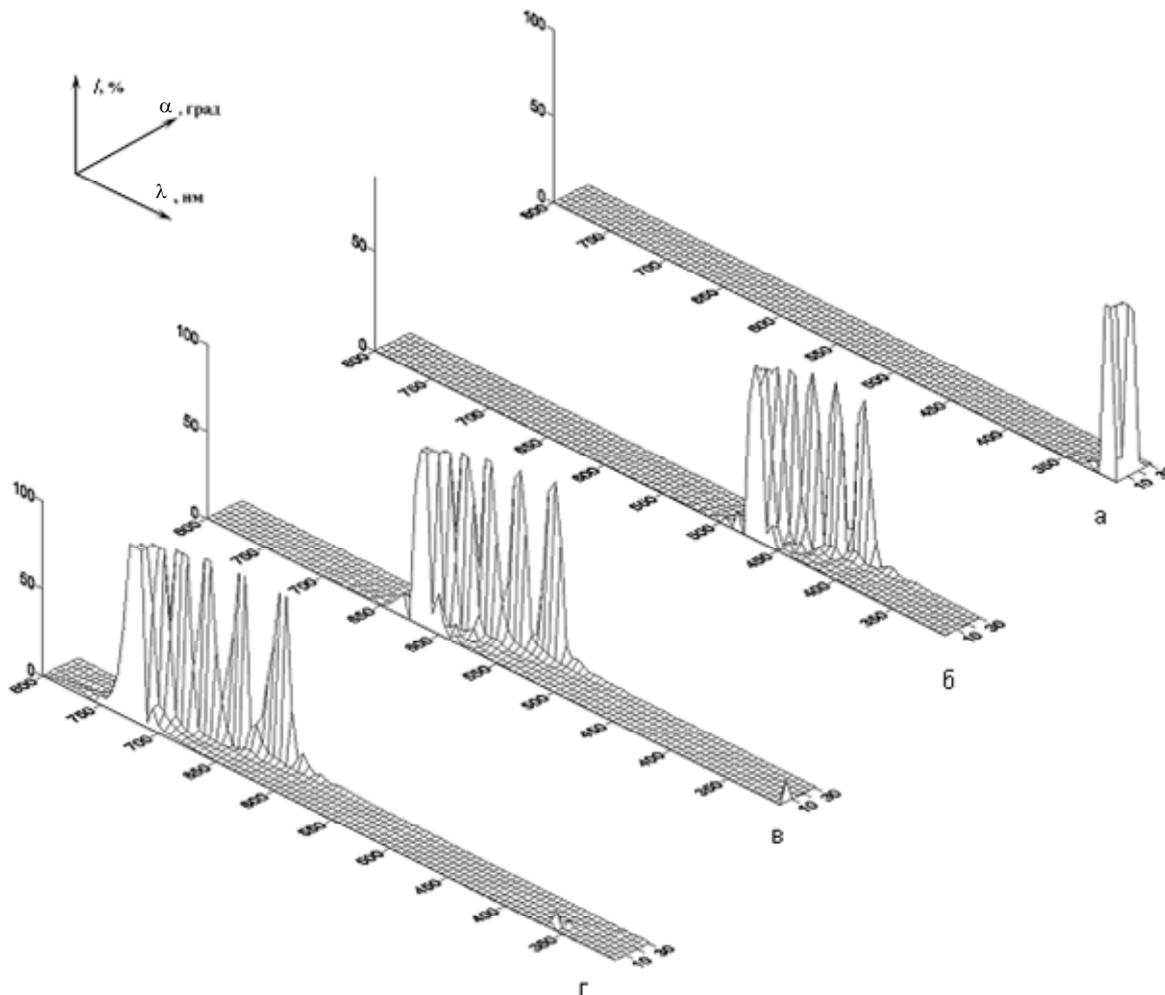


Рис. 4. Модельные спектры эталонной группы проб лабрадора: неиризирующий (а); с фиолетово-синей иризацией (б); с желтовато-зеленой иризацией (в); с карминно-красной иризацией (г)

Особого внимания заслуживают спектры неиризирующего лабрадора и лабрадора с красной (карминно-красной) иризацией (рис. 4, а, г, соответственно). Спектр неиризирующего лабрадора, как и следовало ожидать, не имеет максимумов интерференционного усиления в видимой области. В то же время можно наблюдать четкий пик в интервале 300–325 нм, что соответствует ультрафиолетовой области. Линия максимумов на спектре лабрадора с красной иризацией также частично находится вне видимой области спектра – в ближнем инфракрасном диапазоне.

Для проверки достоверности расчетных диапазонов интерференционного усиления были получены и усреднены по углам экспериментальные спектры иризационных картин (рис. 5). Соответствие диапазонов в данном случае определяется близостью значений λ середины диапазона интерференционного усиления на модельном спектре с положением максимальной по интенсивности точки на экспериментальном спектре [11]. Наложение спектров показало, что области интерференционного усиления на экспериментальных и модельных спектрах совпадают в пределах погрешности 10–15%. Поскольку модель-

ный расчет проводился для идеализированной перистеритовой решетки, можно считать, что разработанная модель вполне адекватно описывает реально наблюдаемые интерференционные картины.

Спектрофотометрические исследования также подтвердили наличие интерференционного эффекта в ближней инфракрасной области для образца с карминно-красной иризацией.

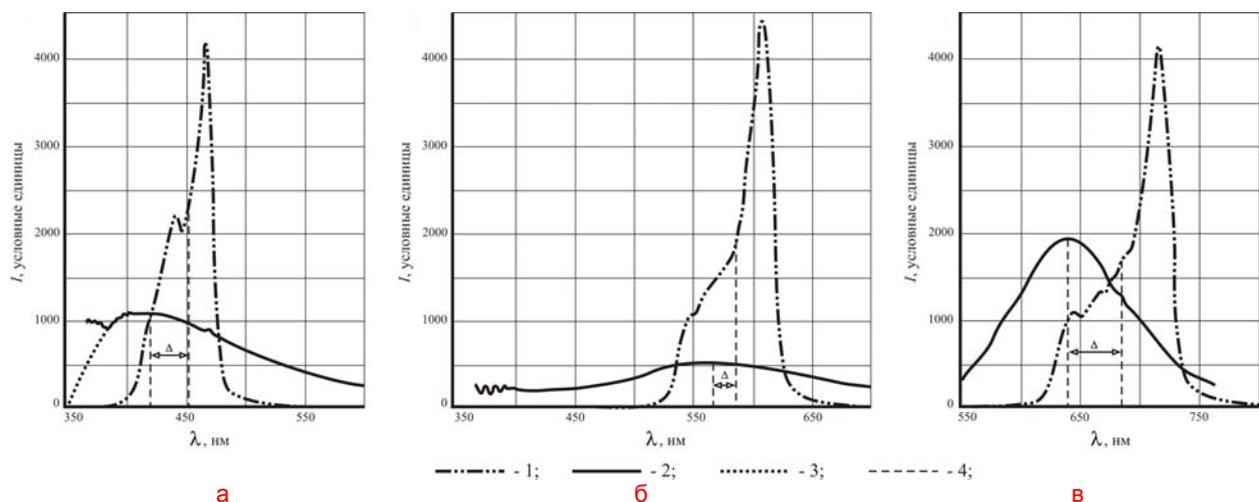


Рис. 5. Сравнение модельных интерференционных спектров с основными пиками экспериментальных спектров для лабрадоров эталонной группы проб: лабрадор с фиолетово-синей иризацией (а); лабрадор с желтовато-зеленой иризацией (б); лабрадор с карминно-красной иризацией (в). 1 – модельный спектр; 2 – усредненный по углам экспериментальный спектр; 3 – экстраполяция экспериментального спектра; 4 – положение середины диапазона модельных спектров и пика экспериментальных спектров; Δ – разность положения сопоставляемых линий. Экспериментальные спектры получены на спектрофотометре «Fluorolog» с микроскопом «Olimpus BX 51» (аналитик Е.А. Васильев)

Заключение

Алгоритм расчета спектров иризации, представленный в данной работе, позволяет перейти от общих представлений о природе иризации к численному моделированию этого явления. В то же время разработанная модель не претендует на полное математическое описание явления иризации в рамках интерференционной концепции.

Приведенные в работе результаты демонстрируют достаточно корректное описание интерференционных спектров и подтверждают зависимость цвета иризации от толщины перистеритов.

Обоснована возможность интерференционного усиления волн в ультрафиолетовой области для плагиоклазов, не проявляющих иризацию в видимом диапазоне. Экспериментально подтверждено наличие интерференционного эффекта в ближней инфракрасной области для плагиоклазов, иризирующих в верхнем красном диапазоне видимого спектра.

Таким образом, представленная модель позволяет расширить имеющиеся представления о природе явления иризации. Она объясняет изменчивость проявления иризационного эффекта в видимом диапазоне. При дальнейшем совершенствовании настоящей модели, возможно, удастся решить и обратную задачу – оценить размеры перистеритов по экспериментально полученному интерференционному спектру.

Литература

1. Baier E., Pense J. Elektronenmikroskopische Untersuchungen an Labradoren // Naturwissenschaften. – 1957. – V. 44. – № 5. – P. 110–111.
2. Laves F., Nissen H.-U., Bollmann W. On schiller and submicroscopical lamellae of labradorite, (Na, Ca) (Si, Al)₃ O₈ // Naturwissenschaften. – 1965. – V. 52. – № 14. – P. 427–428.
3. Крамаренко Н.К. Фазовый состав, пластинчатое строение и иризация плагиоклазов. – Киев, Наукова думка, 1975. – 108 с.
4. Симаков А.П.: Автореф. дис. ... кандидата геолого-минералогических наук [Электронный ресурс]. – Режим доступа: http://www.spmi.ru/system/files/lib/sci/aspirant-doctorant/avtoreferaty/2011/simakov_ar.pdf, свободный. Яз. рус. (дата обращения 06.06.2012).
5. Фурман Ш.А. Тонкослойные оптические покрытия. – Л.: Машиностроение, 1976. – 264 с.
6. Путилин Э.С. Оптические покрытия. – СПб: СПбГУ ИТМО, 2005. – 201 с.
7. Furman Sh.A., Tikhonravov A.V. Basics of optics of multilayer systems. – Edition Frontieres, Gif-sur-Yvette, 1992. – 104 p.
8. Wang Z.L., Liu Y., Zhang Z. Handbook of Nanophase and Nanostructured Materials: Materials Systems and Applications. – N.Y.: Kluwer Academic Press, 2002. – 265 p.

9. Вережников В.Н. Избранные главы коллоидной химии. – Воронеж: Изд-во ВГУ, 2011. – 237 с.
10. Бутиков Е.И. Оптика: Учебное пособие. – СПб: Лань, 2012. – 608 с.
11. Симаков А.П., Иванов М.А., Васильев Е.А. Исследование иризации плагиоклазов в ближней инфракрасной области // Материалы XVII Международного совещания «Кристаллохимия, рентгенография и спектроскопия минералов – 2011». – СПб, 2011. – С. 187–188.

- Симаков Антон Петрович* – Национальный минерально-сырьевой университет «Горный», кандидат геолого-минералогических наук, научный сотрудник, simakov@spmi.ru
- Смирнов Александр Витальевич* – Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, кандидат физ.-мат. наук, доцент, smirnav@phd.ifmo.ru
- Федоров Борис Александрович* – Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, доктор физ.-мат. наук, профессор, borfedorov@rambler.ru
- Иванов Михаил Александрович* – Национальный минерально-сырьевой университет «Горный», доктор геолого-минералогических наук, проректор, ivan@spmi.ru