

this case appear at a very small value of $\zeta_{02\bar{2}}$ resulting in a large uncertainty in the measurement of this quantity. From these measurements the 220 potential was determined to be

$$U_{220} = (1.57 \pm 0.20) \text{ \AA}^{-2}.$$

The second Bethe approximation gave a far too low value, as seen in Table 1.

The two maxima in the split $\bar{5}\bar{7}\bar{1}$ line at the position $\zeta_{02\bar{2}} = 0$ were measured to occur at

$$\zeta_{57\bar{1}} = \pm (1.17 \pm 0.07) \text{ \AA}^{-2}$$

which from equation (6) gives

$$U_{220} = (1.40 \pm 0.07) \text{ \AA}^{-2}$$

when the temperature factor is put equal to $B = 0.45$.

Conclusions

From the present study it can be concluded that non-systematic multiple beam dynamic effects in Kikuchi line patterns can be utilized for structure factor determination. These effects which are commonly observed at any acceleration voltage in weak lines near their intersections with strong bands or at equivalent positions in the pattern, can be localized and discussed by means of three-beam considerations. For quantitative structure factor determinations, however, corrections due to further beams have to be included in most cases. As distinct from the systematic many-beam case (Wa-

tanabe, Uyeda & Fukuhara, 1968) the second Bethe approximation was found to be inadequate for this purpose.

The accuracy of the present method will vary with the ratio between the structure factors involved and with the geometry of the interacting beams. Even in the more favourable cases the accuracy may be somewhat poorer than in the Uyeda-Watanabe method.

The main attraction by the present method is, of course, that one does not have to vary the acceleration voltage. It should also be pointed out that the use of non-systematic interactions introduces relations between other Fourier potentials than those belonging to a dense row in the reciprocal lattice.

The authors are grateful to Dr E. Nes for supplying the silicon samples.

References

- BETHE, H. A. (1928). *Ann. Phys.* **87**, 55.
 FUKUHARA, A. (1966). *J. Phys. Soc. Japan*, **21**, 2645.
 GJØNNES, J. & HØIER, R. (1969). *Acta Cryst.* **A25**, 595.
International Tables for X-ray Crystallography (1962). Vol. III. Birmingham: Kynoch Press.
 PFISTER, H. (1953). *Ann. Phys.* **11**, 239.
 UYEDA, R. (1968). *Acta Cryst.* **A24**, 175.
 WATANABE, D., UYEDA, R. & FUKUHARA, A. (1968). *Acta Cryst.* **A24**, 580.
 WATANABE, D., UYEDA, R. & KOGISO, M. (1968). *Acta Cryst.* **A24**, 249.

Acta Cryst. (1971). **A27**, 316

Die Messung von Schallgeschwindigkeiten in optisch anisotropen Medien mit dem Schaefer-Bergmann-Verfahren

VON H. KÜPPERS

Institut für Kristallographie der Universität zu Köln, Deutschland

(Eingegangen am 1. April 1970)

If the optical wave front is not normal to one of the principal axes of the indicatrix, diffraction of light in crystals, caused by ultrasound, is observed with maximum intensity when the incident beam is off the Bragg angle by an amount depending on double refraction. In a crystal plate of finite dimensions a standing ultrasonic wave also generates waves with propagation directions which are inclined to the normal of the plate, and interfere with the measurement of sound velocities by the improved Schaefer-Bergmann method. These difficulties are overcome by an appropriate choice of the angle of the incident light beam. Experiments with triclinic and trigonal crystals are reported. Formulae are derived for calculating the angles of incidence necessary for any measurements of sound velocities in crystals.

1. Einleitung

Das Schaefer-Bergmann-Verfahren (Beugung von Licht an Ultraschallwellen) wurde in den letzten Jahren zu einer Präzisionsmethode zur Messung von Schallgeschwindigkeiten und somit zur Bestimmung der

elastischen Konstanten in durchsichtigen Festkörpern entwickelt (Haussühl, 1957). Der grösste Teil der bisher untersuchten Kristalle gehörte höhersymmetrischen Kristallklassen an. Die Messung der Geschwindigkeiten und die Berechnung der elastischen Konstanten erfolgt in diesem Fall am einfachsten, indem die Ge-

schwindigkeiten längs der kristallographischen Hauptachsen bestimmt werden, in deren Richtung die Formfrequenzfläche Extremwerte besitzt und senkrecht zu denen keine Strahlendoppelbrechung auftritt. Erst in jüngerer Zeit wurden einige Vertreter monokliner (Haussühl, 1965a,b) und trikliner Kristalle (Haussühl & Siegert, 1969; Küppers & Siegert, 1970) vermessen; hier haben die Messrichtungen i.a. eine beliebige Lage zur Indikatrix und zu den zunächst unbekanntem elastischen Repräsentationsflächen. In diesem Fall ergeben sich einige Abweichungen von der gewöhnlichen Beugungsgeometrie, die in der vorliegenden Arbeit untersucht werden sollen und die bei der Bestimmung elastischer Konstanten sowie auch elastooptischer Konstanten nach der Ultraschallmethode (Dixon & Cohen, 1966) in niedrigsymmetrischen Kristallen beachtet werden müssen.

2. Vorbemerkungen

(a) Die Beugung von Licht an einer Ultraschallwelle lässt sich als Photon-Phonon-Wechselwirkung beschreiben. Aus der Erhaltung des Impulses der Photonen ($\hbar \cdot \mathbf{k}$) und des Quasiimpulses des Phonons ($\hbar \cdot \mathbf{K}$) folgt:

$$\mathbf{k}_i \pm \mathbf{K} = \mathbf{k}_d \quad (1)$$

(\mathbf{k}_i und \mathbf{k}_d sind die Wellenvektoren des einfallenden bzw. gebeugten Lichtes, \mathbf{K} ist der Wellenvektor des Ultraschalls). Die Beziehung (1) lässt sich analog zur Ewaldschen Konstruktion geometrisch interpretieren. Der Vektor \mathbf{K} entspricht einem Vektor im reziproken Gitter, und der Ausbreitungskugel entspricht im vorliegenden Fall die in doppelbrechenden Medien zweischalige Indexfläche. Die Länge eines durch diese Fläche abgesteckten Radiusvektors ist proportional

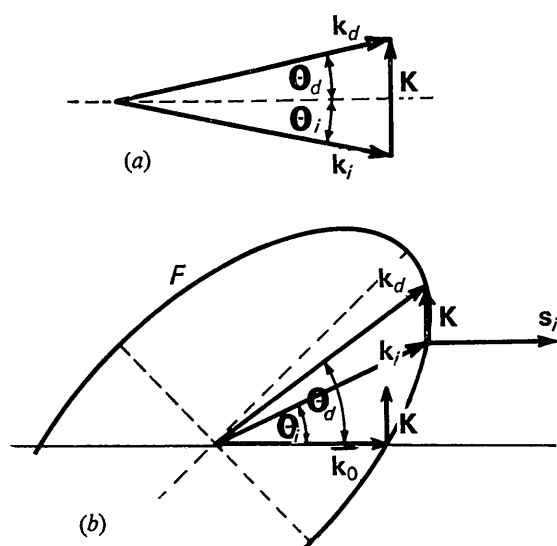


Fig. 1. Impulserhaltung bei der Braggreflexion von Licht an Ultraschallwellen (a) im isotropen Medium, (b) im anisotropen Medium.

dem Brechungsindex n in der betreffenden Richtung (für jede der beiden Polarisationsrichtungen) und damit proportional $|\mathbf{k}|$. – In optisch isotropen Medien ($|\mathbf{k}_d| = |\mathbf{k}_i|$) ist [Fig. 1(a)] der Einfallswinkel des Lichts, θ_i , gemessen relativ zur Schallfront (Ebene senkrecht auf \mathbf{K}), gleich dem Ausfallswinkel θ_d . Wenn dagegen $|\mathbf{k}_d| \neq |\mathbf{k}_i|$ ist (optische Anisotropie), ergeben sich Abweichungen von der symmetrischen Geometrie (Küppers, 1970). Im folgenden soll der in der Praxis vorwiegend auftretende Fall vorausgesetzt werden, dass der gebeugte Strahl dieselbe Polarisationsrichtung besitzt wie der einfallende (abgesehen von der geringen Änderung der Polarisationsrichtung, die aufgrund der Anisotropie bei einer Änderung der Ausbreitungsrichtung um einige Bogenminuten auftreten kann). Jetzt kann eine unter dem Braggwinkel – und da dieser in der Praxis sehr klein ist, also nahezu senkrecht zu \mathbf{K} – einfallende Welle, \mathbf{k}_0 , nicht mehr gebeugt werden, da der Endpunkt von \mathbf{K} , vektoriell zu \mathbf{k}_0 addiert, nicht mehr auf der Indexfläche F liegt [Fig. 1(b)]. Eine Beugung kann nur dann stattfinden, wenn \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_d so liegen, dass \mathbf{K} eine Sehne von F bildet. Da i.a. $|\mathbf{K}| \ll |\mathbf{k}|$ (in Quarz ist z.B. bei einer Ultraschallfrequenz $\nu = 15$ MHz und einer Lichtwellenlänge $\lambda = 0.6 \mu$: $|\mathbf{K}| \approx |\mathbf{k}| \cdot 2 \cdot 10^{-3}$), hat \mathbf{K} in guter Näherung die Richtung der Tangente an F . Da die Normale auf F die Richtung des zur Wellennormalenrichtung \mathbf{k}_i gehörenden Strahls \mathbf{s}_i angibt (Szivessy, 1928), kann man die Bedingung für das Auftreten von Beugung so formulieren: Die Lichtwelle muss um einen solchen Winkel θ_i geneigt einfallen, dass der zugehörige Strahl im Inneren des Kristalls senkrecht zu \mathbf{K} verläuft. – Es sei betont, dass in den so zu bestimmenden Richtungen jeweils das Maximum der Intensität des abgebeugten Lichts auftritt; die Halbwertsbreite betrug bei unseren experimentellen Bedingungen etwa 3 Grad. – Während der Beugungswinkel $\theta_d - \theta_i$ [Fig. 1(b)] i.a. sehr klein ist (ca. 10 Bogenminuten) kann der Einfallswinkel θ_i ($\approx \theta_d$) in der Grössenordnung von einigen Grad liegen.

(b) Messungen nach dem verbesserten Schaefer-Bergmann-Verfahren werden an planparallel geschliffenen Kristallpräparaten angestellt, in denen bei passend eingestellter Ultraschallfrequenz stehende Wellen zwischen den Plattenflächen erzeugt werden. In den Experimenten der vorliegenden Arbeit zeigte sich jedoch, dass ausser der Hauptwelle (mit Ausbreitungsvektor \mathbf{K} senkrecht zur Platte) noch weitere Schallwellen auftraten, deren \mathbf{K} -Vektoren bis zu etwa 2° gegen die Plattennormale geneigt waren. Dieses Phänomen kann durch die folgende Betrachtung gedeutet werden.

Das Verhältnis der Schallwellenlänge λ zur Breite L des Kristallpräparates lag bei den vorliegenden Versuchsbedingungen in einer Grössenordnung ($\lambda/L \approx 1/50$), in der Beugungserscheinungen eine massgebende Rolle spielen. – Beugungseffekte an Ultraschallwellen wurden 1956 von Seki, Granato & Truell im Zusammenhang mit Impulsmessungen experimentell untersucht; Modellrechnungen nach dem Huygens-

schen Prinzip unter Annahme skalarer Kugelwellen standen im Einklang mit dem Experiment und lieferten für den dort vorliegenden Fall, dass ein kleiner Quarzschwinger auf ein grösseres Kristallpräparat gekittet ist, das Ergebnis, dass sich die Phasenflächen einer zunächst eben einfallenden Welle nach mehreren Reflexionen bis zu etwa 2° krümmen, symmetrisch zur Mittelsenkrechten auf den Quarzschwinger. – In unseren Experimenten war der Durchmesser der Quarzscheibe grösser als die Abmessungen des Kristalls. Diese geometrische Anordnung wird treffender durch zwei gegenüberliegende, begrenzte Spiegel beschrieben, zwischen denen die Wellen hin- und hergeworfen werden; diesen Fall berechneten Fox & Li (1961) im Hinblick auf die Beugungsverluste an Laserspiegeln und zeigten, dass die Phasenflächen einer eben einfallenden Welle hier ebenfalls nach mehreren Reflexionen bis zu etwa 2° gekrümmt werden (unter Annahme des oben angegebenen Verhältnisses A/L).

Als wesentliche Komplikation tritt bei der Übertragung dieser Ergebnisse auf die Schallausbreitung in Kristallen die Anisotropie der Schallgeschwindigkeit hinzu. Dazu sei Fig. 2 betrachtet, die einen Schnitt durch eine Kristallplatte K der Dicke D mit Quarzschwinger Q darstelle. Eine elastische Welle, deren Ausbreitungsrichtung senkrecht zur Plattenfläche (parallel OA) verläuft, möge die Geschwindigkeit v_0 besitzen. Eine Welle, die in Richtung OB , um einen Winkel α gegen OA geneigt, wandert, möge aufgrund der elastischen Anisotropie eine Geschwindigkeit $v^+ = v_0 + \Delta v$ besitzen; sie wird an der Gegenfläche in eine Richtung BC reflektiert, längs der die Schallgeschwindigkeit v^- betragen möge. Der Winkel β folgt aus dem Reflexionsgesetz: $v^-/v^+ = \sin \beta / \sin \alpha \approx \beta/\alpha$. Es sei nun die Änderung der Schallgeschwindigkeit im Winkelbereich von etwa 2° um OA als konstant, $\partial v / \partial \alpha = C$, vorausgesetzt; dann gilt für v^+ und v^- :

$$\left. \begin{aligned} v^+ - v_0 &= \Delta v = C \cdot \alpha \\ v^- - v_0 &= -C \cdot \beta \approx -\frac{v^-}{v^+} C \cdot \alpha = -\frac{v^-}{v^+} \Delta v \end{aligned} \right\} (2)$$

$$\left. \begin{aligned} v^+ &= v_0 + \Delta v \\ v^- &= \frac{v_0(v_0 + \Delta v)}{v_0 + 2\Delta v} \end{aligned} \right\} (3)$$

Die für den Weg OBC benötigte Zeit beträgt also (wenn man $\cos \alpha = \cos \beta$ setzt, was näherungsweise gut erfüllt ist):

$$T = \frac{D}{\cos \alpha (v_0 + \Delta v)} + \frac{D(v_0 + 2\Delta v)}{\cos \beta \cdot v_0(v_0 + \Delta v)} \approx \frac{2D}{v_0 \cdot \cos \alpha} \quad (4)$$

Diese Zeit ist ebenso gross wie die Zeit, die im isotropen Medium eine Welle der Geschwindigkeit v_0 für den Weg OBC benötigt hätte. Nach einem Hin- und Herlauf stellen sich daher längs der Geraden OC im an-

isotropen Fall dieselben Phasen ein wie im isotropen Fall, und die Berechnung nach dem Huygensschen Prinzip liefert vergleichbare Ergebnisse.

3. Experimente

Das Zusammenwirken der beiden in § 2(a) und (b) beschriebenen Effekte wurde durch experimentelle Untersuchungen an Guanidin-Aluminium-Sulfat-Hexahydrat (GASH) (trigonal), Kalium-Tetra-Oxalat-Dihydrat (KTO) (triklin) und Ammonium-Tetra-Oxalat-Dihydrat (ATO) (triklin) studiert. Das Licht eines Argon-Lasers (514.53 nm) wurde durch eine Linse, hinter der sich der Kristall befand, auf eine 4 m entfernte Photoplatte fokussiert. Der Kristall war mitsamt Schwingquarz im Strahlengang kippbar angeordnet, so dass sich verschiedene Einfallswinkel θ_i relativ zum Ultraschallwellenvektor K einstellen liessen. Die Ultraschallfrequenz lag i.a. bei etwa 15 MHz.

In Fig. 3 sind die Resultate von Messungen an einem KTO-Präparat dargestellt. Die Ausbreitungsrichtung

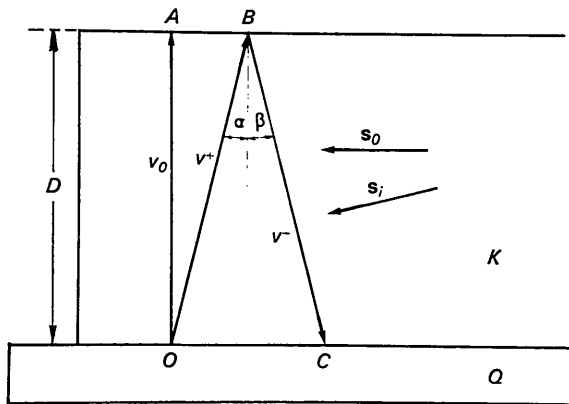


Fig. 2. Reflexion elastischer Wellen in einem Kristallpräparat.

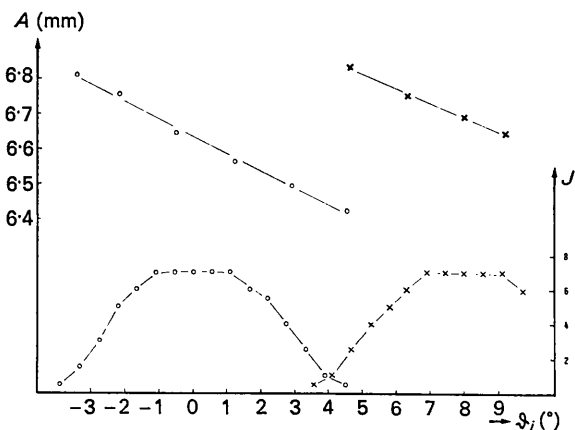


Fig. 3. Abstand A der Beugungspunkte und Intensität J des gebeugten Lichts in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ_i in KTO ($K||[110]'$; $k||[1\bar{1}1/2]'$). o = quasiordentlicher Strahl, x = quasiasusserordentlicher Strahl.

des Schalls lag in einem kartesischen Koordinatensystem (Küppers & Siegert, 1970) parallel $[110]'$,* die des Lichtes (bei $\theta_i=0$) parallel $[\bar{1}1/2]'$. Im oberen Teil der Fig. 3 ist der Abstand A des Beugungspunktes 1. Ordnung von dem der nullten Ordnung (Primärstrahl), im unteren Teil die Intensität J des abgebeugten Lichts – jeweils für die beiden Polarisationsrichtungen und in Abhängigkeit von ϑ_i (in Grad) – aufgetragen. J wurde mit einem Photomultiplier gemessen und in willkürlichen Einheiten aufgetragen. Unter ϑ_i sei der Einfallswinkel ausserhalb des Kristalls verstanden, der mit dem bisher betrachteten Einfallswinkel θ_i (innerhalb des Kristalls) durch den Brechungsindex n verknüpft ist: $\sin \vartheta_i = n \cdot \sin \theta_i$.

Die Brechungsindices von KTO betragen (Porter, 1928): $n_\alpha = 1.4152$, $n_\beta = 1.5364$, $n_\gamma = 1.5604$; der Kristall ist also wegen der relativ geringen Differenz zwischen n_β und n_γ näherungsweise optisch einachsig. Die Lichteinfallrichtung $[\bar{1}1/2]'$ liegt etwa unter 45° zwischen den beiden Bisektrizen; daher zeigt der quasiausserordentliche Strahl eine maximale Strahlendoppelbrechung, der quasiordentliche nahezu keine.

Im Sinne der unter § 2(a) erörterten Gesichtspunkte liefert daher der quasiordentliche Strahl eine maximale Intensität des abgebeugten Lichts bei etwa senkrechtem Einfall ($\vartheta_i=0$), der quasiausserordentliche dagegen unter einer Neigung, die sich experimentell zu etwa 8° ergibt.

Dass der Abstand A der Beugungspunkte, der ein Mass für die Schallgeschwindigkeit v dargestellt, vom Einfallswinkel ϑ_i abhängt, folgt aus § 2(b). Demgemäss wird ein schräg zur Richtung senkrechter Inzidenz (s_0 in Fig. 2) einfallender Lichtstrahl s_i nicht an der längs OA laufenden Schallwelle, sondern an einer benachbarten, etwa parallel BC laufenden Schallwelle gebeugt, die wegen der elastischen Anisotropie eine andere Geschwindigkeit hat und daher auch einen anderen Abstand A der Beugungspunkte liefert. Die Steigung der die Messpunkte in Fig. 3 verbindenden Linie gibt also ein Mass für die Änderung der Schallgeschwindigkeit bei Änderung der Ausbreitungsrichtung.

Ein weiteres Beispiel, das beweist, dass die beobachteten Phänomene nicht rein optischer Natur sind, ist in Fig. 4 angeführt. In einem ATO-Präparat lief der Schall parallel $[010]'$ und das Licht parallel $[001]'$. Im unteren Teil sind die A -Werte der quasilongitudinalen Schallwelle, im oberen die der quasitransversalen Schallwelle in Abhängigkeit von ϑ_i aufgetragen, jeweils für beide Polarisationsrichtungen des Lichts. In diesem Falle unterscheiden sich die Steigungen der Geraden sogar durch das Vorzeichen. Man muss daher schliessen, dass die Geschwindigkeit der quasilongitudinalen Welle mit wachsendem Winkel α zunimmt, die der quasitransversalen dagegen abnimmt.

Tabelle 1 zeigt die Auswertung dieser und einiger weiterer Versuche: Für die Substanzen GASH, ATO und KTO sind die Ausbreitungsrichtungen von Schall, \mathbf{K} , und Lichtstrahl, \mathbf{s} , und der Charakter der Schallwelle [quasilongitudinal (qlo.) oder quasitransversal (qtr.)] zusammengestellt. Die Spalte $(\Delta v/v \cdot \text{Grad})^c$ enthält die berechnete relative Änderung der Schallgeschwindigkeit pro Grad Richtungsänderung in der durch \mathbf{K} und \mathbf{s} definierten Ebene. Die Geschwindigkeiten der zu \mathbf{K} benachbarten Schallwellen wurden aus den für die betrachteten Kristalle bekannten elastischen Tensoren (Haussühl, 1959; Küppers & Siegert, 1970) berechnet; das Vorzeichen der Winkeländerung werde bei Drehung von \mathbf{K} auf \mathbf{s} als positiv definiert. In der Spalte $(\Delta v/v \cdot \text{Grad})^o$ sind die experimentell aus den Kurven $A(\vartheta_i)$ ermittelten Werte zusammengestellt. Die theoretischen Werte geben die ungefähre Grösse und das Vorzeichen der Effekte richtig wieder.

Tabelle 1. *Relative Änderung der Schallgeschwindigkeit pro Grad Richtungsänderung*
c = berechnet; o = beobachtet

\mathbf{m} bedeutet die Richtung der Fläche (110) im kristallographischen Koordinatensystem). qlo. = quasilongitudinal, qtr. = quasitransversal.

Substanz	\mathbf{K}	\mathbf{s}	Char.	$(\frac{\Delta v}{v \cdot \text{Grad}})^c$	$(\frac{\Delta v}{v \cdot \text{Grad}})^o$
GASH	$[01\bar{1}]'$	$[011]'$	qlo.	-0,0070	-0,0062
			qtr.	-0,0017	-0,0018
ATO	$[010]'$	$[001]'$	qlo.	-0,0063	-0,0059
			qtr.	0,0056	0,0069
			$\perp \mathbf{m}, \mathbf{e}_3$	$\parallel \mathbf{m}$	qlo.
			qtr.	-0,0062	-0,0057
KTO	$[110]'$	$[\bar{1}1/2]'$	qlo.	-0,0121	-0,0112

Anhand der Fig. 3 und 4 werden die Schwierigkeiten evident, die sich durch die oben beschriebenen Effekte für die Messung von Schallgeschwindigkeiten in Richtungen, die nicht durch Symmetrien ausgezeichnet sind, ergeben. Man erhält i.a. für die beiden Polarisationen je ein System von Beugungspunkten. Diese werden wegen der Strahlendoppelbrechung getrennt auf der Photoplatte abgebildet und liefern bei der Auswertung zwei verschiedene Schallgeschwindigkeiten, da die Beugung durch elastische Wellen verschiedener Richtung und Geschwindigkeit verursacht wird. Im Beispiel der Fig. 4 erhält man bei senkrechter Inzidenz ($\theta_i=0$) für die beiden Polarisierungen zwei Messungen der quasilongitudinalen Schallgeschwindigkeit, die sich um 3% unterscheiden; in diesem Falle gibt der quasiordentliche Lichtstrahl den richtigen Wert für die Schallwelle mit \mathbf{K} parallel $[010]'$ wieder, während durch den quasiausserordentlichen Strahl die Geschwindigkeit einer benachbarten Welle gemessen wird. – Besonders extreme Verhältnisse (Abweichungen von 6%) ergeben sich beispielsweise, wenn man in dem in Fig. 3 wiedergegebenen Fall das Licht unter 5° einstrahlt. Unter diesem Winkel findet für beide Polarisations-

* Die mit einem Apostroph versehen Richtungssymbole sollen sich auf kartesische Systeme beziehen.

richtungen gerade noch Beugung statt, die jedoch durch zwei ganz verschiedene Schallwellen (etwa parallel OB bzw. BC in Fig. 2) hervorgerufen wird.

Für die Praxis der Schallgeschwindigkeitsmessung ist daher zu fordern, dass die Messungen bei einer bestimmten Polarisationsrichtung des Lichts ausgeführt werden und dass das Licht unter einem solchen Winkel eingestrahlt wird, dass die Strahlrichtung im Inneren des Kristalls parallel zur Plattenfläche (OC in Fig. 2) verläuft. Nur dann wird die gewünschte, durch die senkrecht zur Plattenebene laufende Schallwelle hervorgerufene Lichtbeugung registriert. Die Formeln zur Berechnung des beim Versuch einzustellenden Einfallswinkels ϑ_i werden in § 4 hergeleitet.

Die vorangegangene Interpretation erklärt die Breite des Winkelbereichs, in dem eine Beugung festzustellen ist (Fig. 3 unten) durch die Annahme mehrerer, kontinuierlich über diesen Bereich verteilter Schallwellen. Die Beugung an einer einzelnen dieser Schallwellen müsste demnach nur in einem wesentlich schmaleren Bereich möglich sein. – Um die Breite des Beugungsbereichs einer einzelnen Schallwelle zu messen, wurde ein Schallimpuls von etwa $1 \mu\text{s}$ Dauer in den Kristall geschickt; das an diesem Wellenpaket (von etwa 5 mm Länge) gebeugte Licht wurde, ehe eine Reflexion des Schalls an der Gegenfläche stattfinden konnte, mit einem Photomultiplier registriert und auf dem Schirm eines Oszillographen gemessen. In Fig. 5 ist die Intensität J (in willkürlichen Einheiten) in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ_i aufgetragen; der Versuch wurde an einem rhombischen Schwefelkristall ($\mathbf{K}||[101]'$, $\mathbf{k}||[010]'$) ausgeführt ($\nu = 12 \text{ MHz}$, Länge L des Kristalls in Durchstrahlungsrichtung = 13 mm), der sich wegen des extrem hohen elastooptischen Effekts besonders für diese Messung eignet.

Ähnliche Untersuchungen – jedoch an Flüssigkeiten – wurden mit entsprechendem Resultat bereits früher von Nomoto (1942) angestellt, der auch das Auftreten der Nebenmaxima erklärte. Nach Nomoto ist der Winkel θ_m , unter dem die Intensität zwischen zwei benachbarten Maxima verschwindet, durch die Bedingung (5) gegeben:

$$\text{tang } \theta_m = m \frac{A}{L}; \quad (m = \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (5)$$

Nach (5) ergibt sich unter Verwendung der elastischen Konstanten von Schwefel (Haussühl, 1969) der Winkel für das erste Minimum zu $\theta_m^c = 1.4^\circ$, experimentell findet sich – in zufriedenstellender Übereinstimmung – $\theta_m^o = 1.25^\circ$. Die Abhängigkeit von Ultraschallfrequenz ν und Kristalllänge L wurde durch Versuche bei 21 MHz und an Präparaten von 21 mm Länge im Sinne der Gleichung (5) bestätigt.

Wegen der beträchtlichen Breite des Beugungsbereichs einer einzelnen Welle und wegen des Auftretens der Nebenmaxima ist es schwer, einer schräg zur optimalen Einstrahlrichtung einfallenden Lichtwelle diejenige Schallwelle zuzuordnen, von der das abgebeugte Licht vorwiegend herrührt. Überdies lässt sich die Intensität einer schräglaufenden Schallwelle nur schwer abschätzen. Für die Messung von Schallgeschwindigkeiten folgt auch daraus die Notwendigkeit, das Licht so einzustrahlen, dass die Beugung durch die Schallwelle mit \mathbf{K} parallel OA (Fig. 2), die die grösste Amplitude besitzt, erfolgt. – Aus dem gleichen Grunde dürften auch die Abweichungen der berechneten von den experimentell beobachteten Werten für $\Delta v/v$. Grad in Tabelle 1 zu erklären sein. Bei starken Abweichungen [z.B. bei ATO q_{10} , $\mathbf{K}||(\perp \mathbf{m}, \mathbf{e}_3)$] ist beim experimentellen Wert stets eine Tendenz zu kleineren Werten (Überwiegen des Einflusses der senkrecht zur Plattenfläche laufenden Welle) zu erwarten.

4. Quantitative Beschreibung

Die Schallgeschwindigkeitsmessungen sind also so vorzunehmen, dass für jede der beiden Polarisationsrichtungen des Lichts – gekennzeichnet durch einen Winkel χ zur Richtung von \mathbf{K} – ein bestimmter Einfallswinkel θ_i einzustellen ist; weiterhin wird sich ergeben, dass

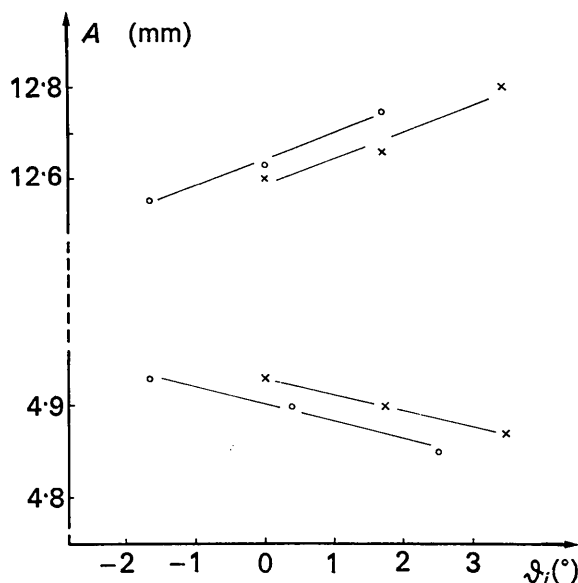


Fig. 4. Abstand A der Beugungspunkte in Abhängigkeit vom Einfallswinkel ϑ_i in ATO ($\mathbf{K}||[010]'$; $\mathbf{k}||[001]'$). o = quasiordentliches Strahl, x = quasiausserordentliches Strahl. Oben: quasitransversale Schallwelle, unten: quasilongitudinale Schallwelle.

Tabelle 2. Berechneter, ϑ_i^c , und beobachteter, ϑ_i^o , Einfallswinkel und Korrekturfaktor für drei ausgewählte Richtungen

Substanz	\mathbf{K}	\mathbf{s}	χ	θ_i	n	ϑ_i^c	ϑ_i^o	$1 + \frac{2}{3}\theta_i^2$
GASH	$[01\bar{1}]'$	$[011]'$	0°	$-3,42^\circ$	1,4894	$5,10^\circ$	$5,5^\circ$	1,0053
ATO	$[010]'$	$[001]'$	$104,4^\circ$	$-1,09^\circ$	1,4615	$1,60^\circ$	$1,7^\circ$	1,0005
KTO	$[110]'$	$[\bar{1}\bar{1}1/2]'$	$-9,1^\circ$	$-4,99^\circ$	1,4985	$7,49^\circ$	$7,9^\circ$	1,0114

der Beugungswinkel φ , aus dem die Schallgeschwindigkeit berechnet wird, bei schiefer Inzidenz einer geringen Korrektur bedarf. Diese drei Grössen, χ , θ_i und φ , lassen sich relativ einfach aus dem Tensor der Dielektrizitätskonstanten ε_{ij} (im Frequenzbereich des sichtbaren Lichts) herleiten.

In Fig. 6 seien \mathbf{x}_1 , \mathbf{x}_2 und \mathbf{x}_3 die Einheitsvektoren in Richtung der Flächennormale eines rechtwinklig geschliffenen Kristallpräparats, an dem die Messungen ausgeführt werden; \mathbf{x}_2 sei die Ausbreitungsrichtung des Schalls und \mathbf{x}_3 die dazu senkrechte Richtung des Lichtstrahls \mathbf{s} . Der ε -Tensor habe im System $\{\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3\}$ die Komponenten ε'_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$). Da $\mathbf{E} \perp \mathbf{s}$ liegt, müssen die beiden elektrischen Feldvektoren \mathbf{E} (für die beiden Polarisationsrichtungen) in der von \mathbf{x}_1 und \mathbf{x}_2 aufgespannten Ebene liegen; sie haben die Richtung der Hauptachsen der Schnittellipse des durch die ε_{ij} bestimmten Fresnelschen Ellipsoids und bilden mit der Achse \mathbf{x}_2 die beiden durch (6) gegebenen Winkel χ :

$$\tan 2\chi = \frac{2\varepsilon'_{12}}{\varepsilon'_{22} - \varepsilon'_{11}}. \quad (6)$$

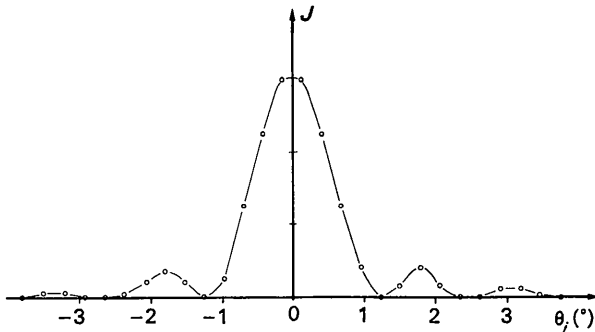


Fig. 5. Intensität J des an einem Schallimpuls abgebeugte Lichts in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ_i in Schwefel ($\mathbf{K}||[101]$; $\mathbf{k}||[010]$); $\nu = 12$ MHz, $L = 13$ mm.

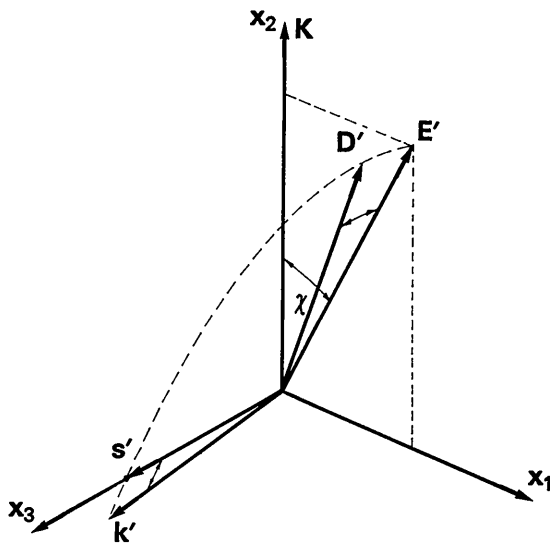


Fig. 6. Lage der Einheitsvektoren \mathbf{E}' , \mathbf{D}' , \mathbf{s}' und \mathbf{k}' der elektrischen Feldstärke, dielektrischen Verschiebung, Strahlrichtung und Wellennormalenrichtung im System $\{\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3\}$.

Die weitere Rechnung ist für jeden der Winkel χ_1 und $\chi_2 (= \chi_1 + 90^\circ)$, d.h. für jede Polarisationsrichtung, getrennt fortzuführen. Aus dem Vektor $\mathbf{E} = E\{\sin \chi; \cos \chi; 0\}$ lässt sich über die Beziehung $D_i = \varepsilon'_{ij} E_j$ der zugehörige Vektor $\mathbf{D} = \{D_1; D_2; D_3\}$ der dielektrischen Verschiebung errechnen. Da \mathbf{E} , \mathbf{D} , \mathbf{s} und \mathbf{k} komplanar sind und $\mathbf{k} \perp \mathbf{D}$ liegt, ergibt sich für die Komponenten des Einheitsvektors in Richtung \mathbf{k} : $1/|\mathbf{D}| \{\sin \chi D_3; -\cos \chi D_3; \cos \chi D_2 + \sin \chi D_1\}$. Für den Winkel θ_i zwischen \mathbf{k} und den Schallebenen (senkrecht \mathbf{K}) gilt also:

$$\sin \theta_i = \frac{D_3 \cos \chi}{|\mathbf{D}|}. \quad (8)$$

$$\text{Aus } \sin \psi = \frac{-D_3 \sin \chi}{|\mathbf{D}|} \quad (9)$$

folgt der Winkel, um den die Lichteinfallrichtung um die Achse \mathbf{x}_2 gedreht werden musste, damit \mathbf{s} genau parallel \mathbf{x}_3 läuft.

Die Winkel θ_i und ψ geben die Richtung von \mathbf{k} im Inneren des Kristalls an. Wenn das Licht von aussen einfällt, muss man wegen der Brechung an der Kristalloberfläche unter einem (näherungsweise) n -mal grösseren Winkel einstrahlen. Den Brechungsindex n für die vorliegende Polarisationsrichtung erhält man aus den bisher bereitgestellten Grössen am einfachsten aus (Szivessy, 1928):

$$n^2 = D^2 / (\mathbf{E} \cdot \mathbf{D}). \quad (10)$$

Die folgende Betrachtung gilt dem Beugungswinkel φ , der aus dem Abstand der Beugungspunkte -1 . und $+1$. Ordnung (oder Paaren höherer Ordnung) bestimmt wird. Dieser Winkel stellt die eigentliche Messgrösse dar; er erfährt bei schiefer Inzidenz und optischer Anisotropie eine geringe Änderung.

In Fig. 7 sind die Richtungen der beim Beugungsvorgang auftretenden Wellennormalen eingezeichnet. Die primäre Lichtwelle (0. Ordnung) habe im Inneren des Kristalls eine Richtung, der der Brechungsindex n_0 zugehört; entsprechend sollen die abgebeugten Wellen -1 . und $+1$. Ordnung im Kristallinneren die Brechungsindices n_1 bzw. n_2 besitzen. Es gelten dann die Beziehungen:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\sin \vartheta_i}{\sin \theta_i} &= n_0 \approx \frac{\vartheta_i}{\theta_i}; \quad \sin \varphi_1 = \frac{\lambda_0}{n_1 A}; \quad \sin \varphi_2 = \frac{\lambda_0}{n_2 A} \\ \gamma_1 &\approx n_1(\theta_i - \varphi_1) \approx n_1 \theta_i - \lambda_0 / A \\ \gamma_2 &\approx n_2(\theta_i + \varphi_2) \approx n_2 \theta_i + \lambda_0 / A \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Der gemessene Winkel zwischen -1 . und $+1$. Ordnung ist:

$$\begin{aligned} \gamma_2 - \gamma_1 &\approx 2 \frac{\lambda_0}{A} + \theta_i (n_2 - n_1) \approx 2 \frac{\lambda_0}{A} + \theta_i \frac{\partial n}{\partial \varphi} (\varphi_1 + \varphi_2) \\ &\approx 2 \frac{\lambda_0}{A} + \theta_i \frac{\partial n}{\partial \varphi} \frac{\lambda_0}{A} \left(\frac{1}{n_1} + \frac{1}{n_2} \right) \\ &\approx \frac{\lambda_0}{A} \left(2 + \theta_i \frac{\partial n}{\partial \varphi} \frac{2}{n_0} \right) \end{aligned} \quad (12)$$

