

c 向直流电压作用下 α -LiIO₃ 单晶的光的 异常散射的进一步研究

杨华光 李晨曦 许政一

(中国科学院物理研究所)

1980年11月27日收到

提 要

文献[1]发现激光束通过 c 向直流电压作用下的 α -LiIO₃ 单晶时,产生一种电矢量有特定取向且不同于入射光电矢量方向的异常散射带。本文进一步研究了这种散射带的精细结构。确定散射光相对于入射光没有大于 15MHz 的频移。这种散射带的强度在透射光斑两侧分布不对称,一侧强,另一侧弱。我们发现两种绝对构型的晶体,散射带的强度分布正相反,D型晶体散射强的一侧,正是L型晶体散射弱的一侧。并研究了异常散射带位置和透射光斑的位置间的各种配置状况,发现它们取决于两个通光面相对于 c 轴的取向。

在文献[1]中¹⁾,发现了激光束通过加 c 向直流电压的 α -LiIO₃ 单晶时,产生一种电矢量有特定取向的散射带。当入射光电矢量垂直于 c 轴时,散射光电矢量与 c 轴和散射光波矢 $\mathbf{k}'$ 共面;当入射光电矢量与 c 轴和入射光波矢 $\mathbf{k}$ 共面时,散射光电矢量垂直于 c 轴;当入射光同时包含寻常光和异常光分量时,上述两种偏振态的散射带同时出现。它们或者分开,或者重合,取决于样品两通光面(与 c 轴的相对)取向。为了叙述方便起见,我们把这种散射称为光的异常散射。

本文详细研究了 α -LiIO₃ 单晶的光的异常散射带的方位,散射带的精细结构和实验条件对它的影响,散射光相对于入射光有无频移,散射带强度分布相对于透射光斑的不对称性与晶体绝对构型的关系等。

实验所用样品由本所 α -磷酸锂研究小组提供^[2]。除特别声明者外,样品加工及实验方法均同文献[1]。本文所研究的现象对平均电场强度均不敏感,而我们所用的样品 c 向厚度除个别在文中指出者外,其余均在 9 至 10mm 之间,故以下对各样品不再列举其尺寸。

一、异常散射光频谱的测量

我们利用一共焦球面法布里-珀罗扫描干涉仪测量异常散射光的频谱和线宽,用通过晶体的透射光束作为比较标准。干涉仪的两球面反射镜的曲率半径为 50mm,故干涉仪

1) 该文中图 8(a), 图 9, 图 10 中 a 面通光应改为 b 面通光, 顺便予以更正。

的自由光谱区为 1500MHz. 仪器带宽为 15MHz. 用波长为 6328 Å 的稳频 He-Ne 激光器作为光源, 在样品前后置一起偏器和一检偏器, 用以控制射至压电扫描干涉仪的光是透射光还是散射光. 透过干涉仪的光用光电倍增管接收, 输出电信号经斩波和锁相放大作为函数记录仪的 y 轴信号, 而将压电扫描干涉仪所用的锯齿波电压作为记录仪的 x 轴信号, 记录下干涉图. 我们记录了 1) α - LiIO_3 样品加静电场前的干涉图; 2) 加静电场后异常散射光的干涉图; 3) 加静电场后透射光加散射光的干涉图. 对于 1# 样品, c 向厚度为 19mm, 加同号电压 1.5kV, 比较所得的干涉图, 峰的位置完全重合, 峰的半高宽相等. 对另外两个样品, 测量结果相同.

我们还用间隔分别为 1mm, 10mm, 30mm 的标准具, 同时记录散射光和透射光的干涉图, 结果两组干涉圈完全重合. 此外, 还利用分辨本领为 8cm^{-1} 的可见-近红外分光光度计测量散射光的波长, 测得散射光的波长和透射光的波长相同. 以上结论与散射角的大小无关.

根据上述测量, 结论是异常散射光与入射光比较, 不会有 15MHz 以上的频移, 散射光的频宽小于 15MHz.

二、异常散射带的精细结构

为了研究散射带的强度分布, 我们用一光电倍增管置于一远离晶体处 (1.43m) 的平移装置上, 光电倍增管前开一宽为 0.13mm 的狭缝接收散射光, 使光电倍增管沿散射带方向作匀速平动, 同时记录接收到的信号, 这样记录得到的散射带由一系列的峰谷所构成, 如图 1 所示, 峰的角宽度约比接收狭缝的角宽度大一个数量级.

在本节叙述的实验中, 除非特别声明者外, 入射激光束均用 He-Ne 激光, 外加电压均为同号电压, 测量在加电压足够长时间后, 总光强已经稳定时进行. 记录的是电矢量垂直于 c 轴的异常散射带. 电矢量与 c 轴和 k' 共面的异常散射带以及加异号电压的情形结果均类似.

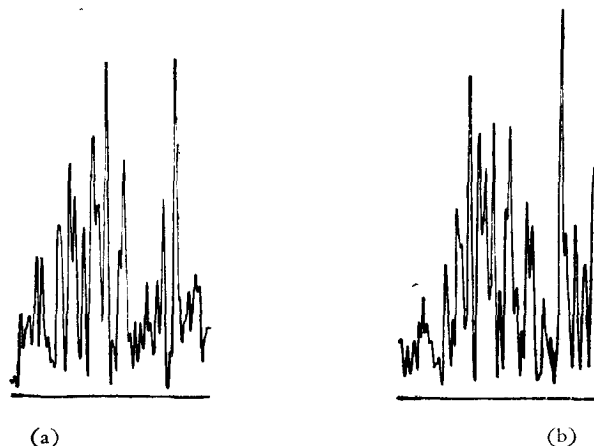


图 1 异常散射带强度分布不稳定情况
横坐标为沿散射带方向的空间坐标;纵坐标为散射强度

α - LiIO_3 晶体中光的异常散射在 360° 方位都发生, 因此散射带实际上是环状的, 但背向散射很弱。我们主要研究透射光斑附近散射带的特性。对 7 块样品的不同部位和不同的电压, 记录了数十条散射带的精细结构。可总结出以下的一般规律。

一般说来当加电压时间足够长以后, 在所加的电压较低时, 散射带的强度分布趋于稳定, 重复测量结果基本相同。但当电压较高时, 强度分布不稳定(总强度已经稳定), 如图 1 所示。图 1(a) 和 (b) 是对 2# 样品加 1.5kV 电压 40 小时后, 相隔 9 分钟记录下来的同一小段散射带的强度分布。从图 1 可知, 各峰的强度变化很大, 但峰的个数基本相同。这种散射带强度分布的不稳定性只是局部范围的峰强度的涨落。异常散射带强度一侧强, 另一侧弱的不对称性等总体特性并不改变。使异常散射带强度分布不稳定的所谓“较高电压”对不同样品差别很大, 例如 2# 样品, 加同号电压 800V, 强度分布就不稳定; 而 3# 样品加同号电压 1.5kV, 强度分布还基本稳定。一般说来, 异常散射带较强的样品, 在较低直流电压作用下就发生强度分布不稳定情况, 其电导率也较大。

散射带中各峰的峰值分布不规则, 但任取相近两小段散射带, 其平均峰间间隔(相邻两峰中心位置间的角间距)相近, 有 20% 左右的起伏。散射带相隔较远的不同段, 其平均峰间间隔不同, 散射带强度较弱的一侧, 平均峰间间隔较大, 逐渐移向散射带较强一侧, 平均峰间间隔逐渐减小。当散射角变化 $\pi/4$ 时, 平均峰间间隔可改变 20% 左右。

使入射激光束电矢量相对于 c 轴倾斜, 且使电矢量垂直于 c 向和与 c 轴及透射光波矢共面的两种偏振态的光强大致相等, 对 3# 样品, 加 1.5kV, 分别记录两种偏振态的异常散射带强度分布, 两者图象各异, 但它们对应部位的平均峰值强度和相邻两峰平均间隔相近。

加不同电压, 在不稳定情形, 只影响各峰的强度, 不影响各峰间的平均间隔。例如对 4# 样品, 用面积 $1 \times 1.2\text{mm}^2$ 的电极, 入射 He-Ne 激光光斑直径比电极略大, 分别加同号电压 1.5kV 和 800V (均属不稳定情况), 其电流分别为 $1.3\mu\text{A}$ 和 $0.75\mu\text{A}$, 平均峰间间隔基本不变, 但较低电压时峰值也相应地减小。对于 3# 样品加电压 1.5kV, 800V 和 500V, 其电流分别为 $0.20\mu\text{A}$, $0.15\mu\text{A}$ 和 $0.11\mu\text{A}$, 都属于稳定情况。不同电压下各峰基本上可对应起来, 只是峰值大小改变。

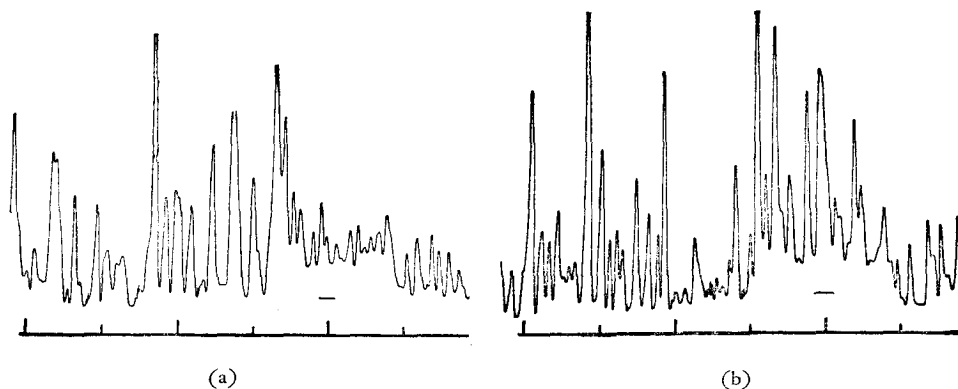


图 2 对不同波长的人射激光束, 异常散射带强度分布不同
图下部标尺中每一大格相应于 1° 角宽度; 图中短横线表示透射光斑位置

将样品沿 c 向平移, 改变通光部位, 对不稳定情形, 其异常散射带精细结构不同, 但平均峰间隔变化不大, 且有时某些强线位置始终保持不变。对于稳定情形, 其各峰基本上可一一对应地辨认出来。对于不同样品或同一样品的不同部位, 平均峰间隔一般在 $2.2'$ 至 $3.3'$ 的范围内变化。

为了研究异常散射带精细结构与入射激光波长的关系, 我们用一氩离子激光器, 使之分别输出单色的 $4880 \text{ \AA}$ 和 $5145 \text{ \AA}$ 的激光, 且使激光束从晶体同一部位通过。对 3# 样品, 加同号电压 1.5 kV 时, 记得异常散射带对应段的精细结构如图 2 所示。图 2(a) 相应于 $4880 \text{ \AA}$ 的入射光; (b) 相应于 $5145 \text{ \AA}$ 的入射光。从图 2 可见, 散射带的强度分布完全不同, 对应的峰也无法辨认, 但平均峰间间隔则大体相同。需要说明这种差别不是由于外加电压太高, 强度分布不稳定所引起, 因为对同一波长, 不同时刻记录的图形是基本上相同的。

对长方体形的 3# 样品, 将平行于 c 轴的四个面均抛光, 在 c 面上涂 $1 \times 1.2 \text{ mm}^2$ 的导电胶电极。先让激光束垂直 a 面且在电极正下方通过, 记录其强度分布。然后使样品转过 90° , 使激光束平行 a 面且仍在电极正下方通过, 记录其强度分布, 两次得到的平均峰间间隔大致相同。散射情况对于通光面相对于 a 轴的取向不敏感。

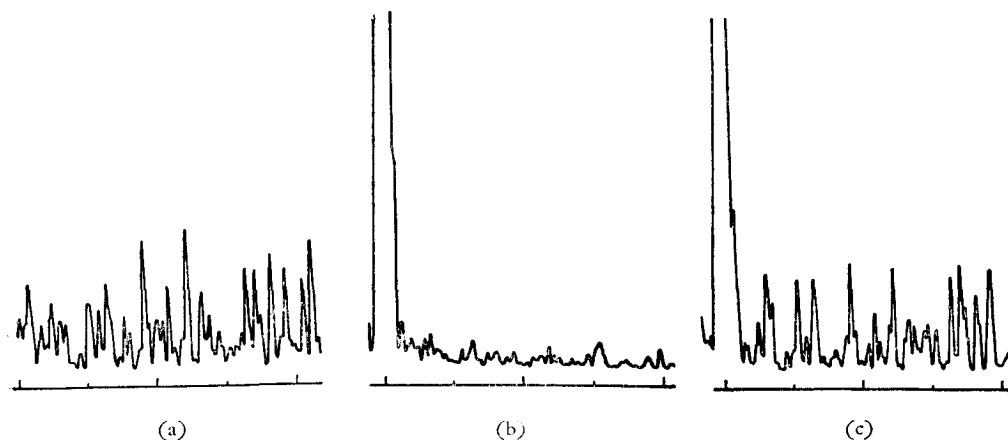


图 3 光通过两个散射区的效果
图下部标尺中每一大格相应于 1° 角宽度

将 5# 样品的 c 面镀两条条状电极, 光束在垂直电极方向先后在两电极下通过。图 3(a) 和 (b) 是电极 1 和电极 2 分别加 1.5 kV 时记录得到的异常散射带强度分布。图 3(c) 是两电极同时加 1.5 kV 时的结果。图 3 显示了两个散射区合成的效果。它表明光通过两个散射区的结果可看成各散射区散射强度的简单迭加, 即二次散射效应可以略去。

对于样品加低电压时 (使散射带强度分布处于稳定的范围内), 记录加电压 (或去电压) 后散射带精细结构的弛豫过程, 则可发现两相近时刻强度分布图象基本相似但略有畸变, 各峰的峰值逐渐增强 (或减弱)。

三、晶体的绝对构型对异常散射的影响

已经知道 $\alpha\text{-LiIO}_3$ 晶体的晶体结构具有两种绝对构型: L型和D型(前者旋光性为左旋,后者为右旋)^[3]. 文献[1]已报道,异常散射带的强度分布相对于透射光斑来说是不对称的,一侧强,另一侧弱. 对于电矢量和 c 轴及 k' 共面的异常散射带, $p_s \times k$ 所指一侧强度较弱; 对于电矢量垂直于 c 轴的散射带, $p_s \times k$ 所指的一侧强度较强,其中 p_s 是单晶体的自发极化强度矢量. 上述结论只是对 L型晶体而言. 我们对 D型晶体作光的异常散射实验,发现其结论正相反: 对于电矢量和 c 轴及 k' 共面的异常散射带, $p_s \times k$ 所指的一侧强度较强; 对于电矢量垂直于 c 轴的散射带, $p_s \times k$ 所指的一侧强度较弱. 需要说明,本文所有矢量积,不论对 L型还是对 D型晶体,都用右手规则.

在散射带强度较弱的一侧有一个强度极小位置. 将接收器置于离晶体 30cm 处的平移装置上,用第二节的方法,接收狭缝改为 4mm 宽,记录散射带的强度分布,结果如图 4 所示. 图中 M 处即为上述的强度极小处. 发现对不同样品和样品的不同部位,不论是何种偏振态的散射带,当入射光垂直入射至通光面时,强度极小方向均与入射光成接近 6° 角. 电压的极性和大小以及晶体的绝对构型对此角度数值均无影响.

当晶体绕 c 轴转过一角度,使入射光与通光面不垂直,则散射带沿着自身的方向相对于透射光斑移动. 特别是强度极小方向与透射光波矢方向间夹角 δ 和入射光波矢方向与入射通光面法向间夹角 φ 之间有确定的函数关系. 图 5 是对 L型晶体得到的 δ 与 φ 之间的关系. 曲线 1 和曲线 2 分别为电矢量与 c 轴和 k' 共面的散射带和电矢量垂直于 c 向的散射带的结果. φ 以 $(p_s \times k) \cdot n$ 的符号为其符号, n 是晶体入射通光面的面法线向量,方向指向晶体外. 图 5 表明,当转动晶体使 φ 角由零向负值方向变化时,两条异常散射带的极小位置分别向远离透射光斑的两侧移动; 当使 φ 角由零向正值方向变化时,两条散射带的极小位置均向透射光斑移近. 将图 5 中的 φ 改变符号,即得到 D型晶体的结果.

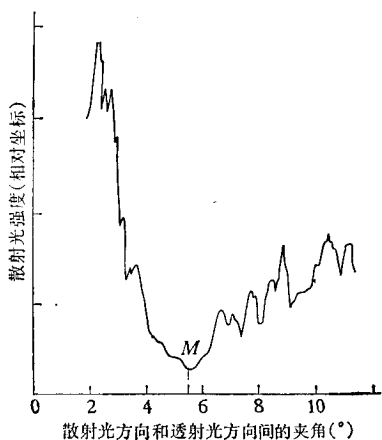


图 4 异常散射带强度极小位置

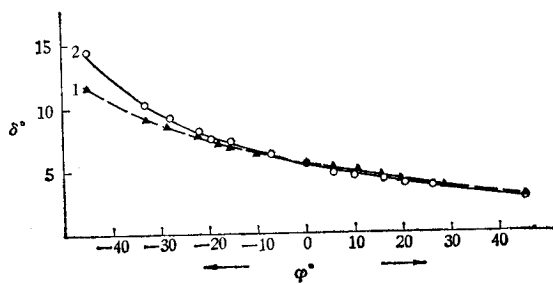


图 5 L型晶体的 δ 与 φ 之间的关系

δ 随 φ 变化并不是由于入射光波矢相对于晶体 a 轴取向不同而引起的, 这种变化纯粹决定于入射光相对于入射通光面的取向。我们曾分别取 $(10\bar{1}0)$, $(11\bar{2}0)$ 面为入射通光面, 结果都是图 5 的形式。

四、异常散射带的方位

异常散射带的位置在通常情况下不能根据入射光方向用晶体光学方法确定, 即电矢量垂直于 c 轴的散射带并不一定通过寻常光的透射光斑; 电矢量和 c 轴及 k' 共面的散射带也不一定通过异常光的透射光斑。两种偏振方向的异常散射带和透射光斑的相对位置取决于入射通光面和出射通光面相对于 c 轴的取向。所有各种情形可概括于图 6。图 6 中各分图的左侧表示入射通光面 A , 出射通光面 B 与 c 轴的相对取向, 而取入射光方向

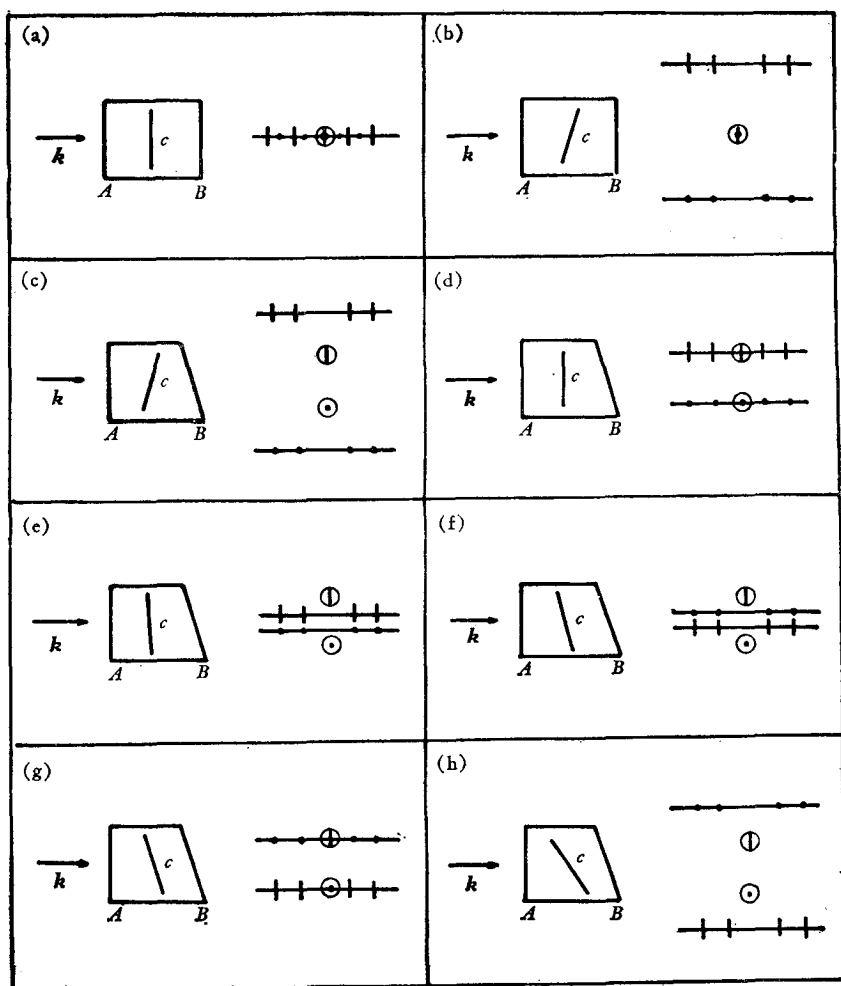


图 6 散射带与透射光斑的相对位置和 c 轴与通光面相对取向间对应关系示意图

图中画有短竖线的圆圈代表异常光的透射光斑; 画有黑点的圆圈代表寻常光的透射光斑; 带有黑点的直线代表电矢量垂直 c 轴的散射带; 带有短竖线的直线代表电矢量和 c 轴及 k' 共面的散射带; 样品中的直线代表 c 轴的取向

总是垂直 A 面, 与之相对应的异常散射带和透射光斑的相对位置示于该分图的右侧. 图 6(a), (b) 为通光面 A, B 平行的情况, 其异常光透射光斑和寻常光透射光斑位置重合(在 (b) 的情形, 并不完全重合, 但对尺寸为厘米量级的样品来说, 此两光斑分不开). (d) 和 (g) 是 c 轴分别与 A 面和 B 面平行的情形. 在情形 (e), c 轴与 A 面的夹角小于 c 轴与 B 面的夹角. 在情形 (f), 则 c 轴与 A 面的夹角大于 c 轴与 B 面的夹角. 显然, 当 c 轴在 A 面和 B 面的夹角的平分面上时, 两条散射带重合, 对此特殊情形图中没有单独列出. 实际上, 图 6 中的 (c), (d), (e) 和 (h), (g), (f) 之间并不是完全无关的. 对于 (c), (d) 和 (e), 假如将出射面 B 改作入射面, 则面 A 成为出射面, 就分别得到 (h), (g) 和 (f) 的情形. 这就是文献 [1] 中所述当样品绕 c 轴转动 180° , 两种散射带互换位置 (c 轴和入射面及出射面并不一定平行, 所以这样说不很严格). 图 6 对 D 型和 L 型的晶体都成立, 为使此图适用于两种构型的晶体, 所以图中没有画出此两种散射带的强度分布不对称性.

当光的入射方向不垂直于 c 轴和通光面时, 散射带实际上是弧形的, 在图 6 中, 简单地画成直线了. 散射带成弧形的原因之一是散射带不同部位的散射光和 c 轴夹角不同, 因此折射率不同^[4]. 以 c 轴为极轴取一球极坐标, 散射方向可以两个极角描写. 散射带的弯曲是否还和散射方向的两极角间的关联有关, 我们还没有仔细研究. 顺便指出, 文献 [1] 中所谓“散射带垂直 c 轴”只是对 k 垂直 c 轴和通光面的情形而言, 否则, 只是弧形散射带的中心部位才近似垂直 c 轴.

当 k 与 c 轴间夹角偏离 90° , 甚至偏离较大时, 我们都没有发现散射带的宽度有明显的变化.

五、讨 论

α - LiIO_3 在 c 向静电场作用下发生的光的异常散射的机理尚不清楚. 对于这种异常散射, 除了文献 [1] 中已强调指出的入射光和散射光的偏振态间的独特关系以及散射带的取向垂直 c 轴的特点外, 我们认为还应该强调以下各点:

1. 由于散射光和入射光之间不存在大于 15MHz 的频移, 这种光散射是一种准弹性散射. 图 6 表明, 在多数安排下, 散射带不通过透射光斑, 即不存在波矢与入射光波矢一致的散射光(至少强度非常弱), 这是散射现象中不常见的.
2. 如第三节所述, 散射带强度分布的左右不对称性相应于晶体的两种构型(L 型和 D 型的差别在于单胞内原子排列互为左右手坐标关系). 在光散射中, 强度分布左右不对称是稀见的现象. 它是我们所研究的散射带的引入瞩目的特点.
3. 异常散射带具有精细结构, 因此很可能散射光还经过空间电荷缀饰晶体中某种平行于 c 向的准周期缺陷所形成的空间光栅^[4]的衍射. 但这假定又似乎和某些晶体中并不出现垂直 c 向而偏振态和入射光的偏振态相同的散射带^[5]这一事实相矛盾.

本工作得到李荫远教授的关心和指导, 成希敏、罗田、周棠、王胜利等同志协助做了实验工作, 在此表示感谢.

参 考 文 献

- [1] 杨华光, 物理学报, **29** (1980), 1039.
- [2] 中国科学院物理研究所 α -碘酸锂晶体研究小组, 物理, **1** (1972), 28.
- [3] 李荫远、范海福、贾寿泉, 中国科学, 1973, 1, 96.
- [4] 顾本源、许政一、赵世富、张安东, 中国科学, 1979, 5, 447; 外文版, *Scientia Sinica*, **22** (1979), 1010.
- [5] 许政一、张安东、徐刚、杨华光, 物理学报, 待发表.

**FURTHER INVESTIGATIONS ON THE ABNORMAL
SCATTERING OF LIGHT IN AN α - LiIO_3 SINGLE CRYSTAL
UNDER THE ACTION OF A DC FIELD**

YANG HUA-GUANG LI CHEN-XI XU ZHENG-YI

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

It is found in Ref. [1] that a band of scattered light is produced when a laser beam passes through an α - LiIO_3 single crystal under the action of a DC field along the c -axis. The electric vector of the scattered light has special direction which differs from that of the incident beam. In this paper, we have further investigated the characters of this scattering of light. The fine structure of the band has been studied. No frequency shift between the scattered and incident beam larger than 15 MHz has been observed. The distribution of intensity of the band is asymmetric with respect to the transmitted light spot, one side is stronger than another. We have found that the distributions of intensity of the scattering band are inverse for the two types of absolute configuration of α - LiIO_3 single crystals, that is the stronger side of the band for the D type crystal corresponds to the weaker side for the L type crystal. We have also studied the relationship between locations of bands and that of the transmitted light spots, and found it is dependent on the orientations of the incident and exit surfaces of specimens with respect to the c -axis of the crystal.