

一维离子导体 α -LiIO₃ 中空间电荷涨落 导致的光衍射现象的理论解释 (I)

各 向 异 性 模

顾世杰 李荫远

(中国科学院物理研究所)

1982年6月21日收到

提 要

实验观察到,在沿 α -LiIO₃ 的 c 向加不太强的静电场后,当一激光束接近垂直于 c 轴地通过晶体后,会产生具有许多特异性质的广角幅衍射带^[1-4]. 这时 c 向电流引起晶体内电荷密度涨落 $\delta\rho(r)$ 和伴随的内场 $\delta E(r)$, 通过线性电光效应,导致介电张量 $\delta\epsilon_{ij}$ 的涨落. 根据实验事实,我们假定 $\delta\rho(r) = \delta\rho(x, y)$ 与 c 向坐标 z 无关,因而在晶体中形成了各向异性的相位光栅. 由此,推导出的衍射效应定量地或定性地解释了观测到的现象,包括: 衍射光的偏振面转 90°, 衍射带强度分布的不对称性以及强度极小的存在及其角位置的确定;两种绝对构形的晶体产生的衍射带的不对称性呈现左右相反的关系;带的形状和其相对于透射光斑的位置的确定等. 理论中没有引入任何参数,而且首次推定静场的电光张量元 r_{41} 与 r_{42} 之比为 1.6.

一、引 言

当沿 α -LiIO₃ 单晶的 c 向加一不太强的静电场后,晶体的许多性能会产生异常,如静电场作用下某些中子衍射峰的显著加强和光衍射增强等现象以及介电行为的改变等^[5], 在文献[1-4]中又观察到对光产生的衍射现象. 原来对激光束完全透明的 α -LiIO₃, 在沿 c 向加静电场后,会沿近于垂直 c 向的方向出现衍射带¹⁾. 下面列出文献[1-4]中主要的实验现象:

1. 偏振面转 90°: 当入射光为 o 光时, 衍射光为 e 光, 反之亦然. (实验中同时观察到的 $e \rightarrow e$, $o \rightarrow o$ 的衍射将在文献[15]中讨论.)
2. 强度分布的不对称性: 衍射带的强度分布相对于透射光斑是不对称的, 一侧强, 另一侧弱.
3. 强度分布同偏振的关系: o 光入射光的衍射带强度分布不对称正好同 e 光入射光

1) 过去发表的实验报道中经常用散射和散射带等词, 本文明确了这类现象起源于晶体内的厚光栅的衍射效应, 故不再使用散射现象之说.

的衍射带不对称相反。

4. 强度分布同晶体的绝对构型的关系: L型和D型晶体的同一衍射带强度分布不对称性正好左右相反。

5. 现象与平行于 c 轴的通光面的取向无关: 实验分别取(10 $\bar{1}$ 0)和(11 $\bar{2}$ 0)晶面作通光面, 观察到的现象是完全相同的。

6. 强度分布包络具有极小值: 在带分布的弱侧具有极小, 相对透射光斑的角位置约为 6° 。

7. 强度极小的角位置与入射光方向的关系: 当入射光方向在垂直于 c 轴的平面内变化时, 极小角度同入射角有一定关系。实验已测出这种关系曲线^[2]。

8. 精细结构: 衍射带不是连续的, 它由分立的小光斑组成。

9. 衍射带的形状和位置: 当 c 轴与通光面不平行时, 衍射带同透射光斑不重合, 其形状也从直线变成圆弧, 但当入射光方向在包含 c 轴的平面内变化时, 带的相对位置不变。

二、理论计算

沿 c 向加一电场后, 光会产生垂直于 c 向的衍射。这清楚地说明, 这时的介电张量 ϵ 应在垂直于 c 向存在涨落, 其相关长度具有光波长的量级。我们认为, 产生这种涨落的根源在于加电场后晶体内产生的电荷密度涨落。在上述的实验中已经推测到这种电荷涨落的存在, 因而在主轴坐标系中介电张量出现不为零的非对角元^[3,4]。另一方面, 我们知道在全息术中, 一些铁电记录介质就是利用了电荷密度的变化, 产生一变化的内电场, 再通过线性电光效应, 以使介电张量发生变化, 形成厚相位光栅。在那里, 这种电荷密度变化是由物光束同参考光束相干产生的光场所引起的, 所以能把物光束的信息记录下来^[6]。我们假定在 α -LiIO₃ 中, 加电场后, 晶体内产生了电荷密度涨落 $\delta\rho(\mathbf{r})$ 。根据泊松方程, 产生一内电场 $\delta\mathbf{E}(\mathbf{r})$, 由于线性电光效应使晶体的介电张量发生变化:

$$\delta(\epsilon^{-1})_{ij} = \gamma_{ijl} \delta E_l(\mathbf{r}), \quad (1)$$

其中 γ_{ijl} 为线性电光张量元, 对于重复的下标要求和。 α -LiIO₃ 的点群是 C_6 , 在主轴坐标系 (z 轴同 c 轴重合, x, y 轴是任意的) 不为零的元为

$$\gamma_{13} = \gamma_{23}, \quad \gamma_{33}, \quad \gamma_{41} = -\gamma_{52}, \quad \gamma_{42} = \gamma_{51}. \quad (2)$$

因此可以写出 $\delta(\epsilon^{-1})_{ij}$ 中不为零的元

$$\begin{aligned} \delta(\epsilon^{-1})_{11} &= \delta(\epsilon^{-1})_{22} = \gamma_{13} \delta E_z(\mathbf{r}), \\ \delta(\epsilon^{-1})_{33} &= \gamma_{33} \delta E_z(\mathbf{r}), \\ \delta(\epsilon^{-1})_{12} &= \delta(\epsilon^{-1})_{21} = 0, \\ \delta(\epsilon^{-1})_{13} &= \delta(\epsilon^{-1})_{31} = \gamma_{42} \delta E_x(\mathbf{r}) - \gamma_{41} \delta E_y(\mathbf{r}), \\ \delta(\epsilon^{-1})_{23} &= \delta(\epsilon^{-1})_{32} = \gamma_{41} \delta E_x(\mathbf{r}) + \gamma_{42} \delta E_y(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (3)$$

现在的问题是一个衍射的问题, 我们利用厚光栅的模型。把 $\delta\rho(\mathbf{r})$ 作傅氏展开:

$$\delta\rho(\mathbf{r}) = \delta\rho \int H(\mathbf{K}) \sin \mathbf{K} \cdot \mathbf{r} d\mathbf{K}, \quad (4)$$

即把无规的涨落 $\delta\rho(\mathbf{r})$ 看成是具有各种波矢 $\mathbf{K}$ 的带有权重 $H(\mathbf{K})$ 的正弦分布 $\sin \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}$

的叠加. $\mathbf{K}$ 可以取各种方向和绝对值 ($|\mathbf{K}| \neq 0$ 将是晶体的总体保持电中性所要求的). 这样, 电场以及介电张量的变化也可看成是相应的正弦分布的叠加. 于是, 对入射光来说, 就相当于存在各种波矢 $\mathbf{K}$ 的厚相位光栅, 而其中只有那些波矢 $\mathbf{K}$ 满足布拉格条件(只考虑一级衍射)

$$\mathbf{K}_2 = \mathbf{K}_1 + \mathbf{K} \quad (5)$$

的光栅才能对光产生衍射, 其中 $\mathbf{K}_1$, $\mathbf{K}_2$ 分别为入射光和衍射光的波矢

$$|\mathbf{K}_1| = \frac{2\pi n_1}{\lambda}, \quad |\mathbf{K}_2| = \frac{2\pi n_2}{\lambda}, \quad |\mathbf{K}| = \frac{2\pi}{\Lambda}, \quad (6)$$

λ 为光的真空波长, Λ 是波矢为 $\mathbf{K}$ 的光栅的光栅常数, n_1 和 n_2 为相应的光的折射率.

这样, 我们的问题可以变成推导各光栅(波矢为 $\mathbf{K}$) 对入射光的衍射强度, 然后相加就可以了. 但是, $H(\mathbf{K})$ 是不知道的, 它是一个无规的分布, 是 $\mathbf{K}$ 的快变函数, 它只影响到衍射光的绝对强度的计算和精细结构的存在, 对讨论对称性问题是没有什么关系的. 这样, 我们可以单独地考察各正弦光栅对光的衍射效果.

波矢为 $\mathbf{K}$ 的分量为

$$\delta\rho_{\mathbf{K}}(\mathbf{r}) = \delta\rho \cdot \sin(\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}). \quad (7)$$

根据泊松方程可以得到相应的电场分布^[7]

$$\begin{aligned} \delta E_i(\mathbf{r}) &= \delta E_i \cos(\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \\ &= \frac{(\epsilon^{-1})_{ij} k_j}{|\mathbf{K}|} \cdot \delta\rho \cdot \cos(\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}), \end{aligned} \quad (8)$$

其中 $\delta\rho$ 和 $\delta\mathbf{E}$ 为相应的“光栅”的振幅; ϵ 为不加电场时的介电张量, $k_i = K_i/|\mathbf{K}|$. 由于线性电光效应, 晶体中的介电张量的变化(略去二阶小量)为

$$\begin{aligned} \delta\epsilon_{ij}(\mathbf{r}) &= \delta\epsilon_{ij} \cdot \cos(\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \\ &= -\epsilon_{ih} \cdot \gamma_{hkl} \cdot \delta E_l \cdot \epsilon_{kj} \cdot \cos(\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}), \quad (h, i, j, k = 1, 2, 3). \end{aligned} \quad (9)$$

对于 $\alpha\text{-LiIO}_3$, $\epsilon_{11} = \epsilon_{22} = (n_o)^2$, $\epsilon_{33} = (n_e)^2$.

本文所要讨论的是实验中观察到的一个最主要的衍射现象: 衍射带垂直于 c 轴, 从布拉格条件(5)式可以推出所有的 $\mathbf{K}$ 都要垂直于 c 轴, 即实验现象要求 $\delta\rho(\mathbf{r}) \equiv \delta\rho(x, y)$, 电荷密度涨落是各向异性的, 只在垂直于 c 向存在涨落, 这样(8)式中的 $k_z = 0$, $\delta E_x = 0$. 从(9)式可以推导出 $\delta\epsilon_{11} = \delta\epsilon_{22} = \delta\epsilon_{33} = 0$.

(9)式所表示的 $\delta\epsilon_{ik}(\mathbf{r})$ 代表的相位光栅的衍射效率可用公式^[7]

$$\eta = \sin^2 \left[\left(\frac{\pi}{\lambda} \right)^2 \frac{|\mathbf{e}_{1i} \cdot \delta\epsilon_{ij} \cdot \mathbf{e}_{2j}|}{\sqrt{K_{1y} K_{2y}}} \cdot d \right] \quad (10)$$

算出, 其中 d 为晶体的厚度, K_{1y} , K_{2y} 分别为入射光和衍射光(在晶体内部)的波矢在晶面法向的投影(已假定法向为 y 向), $\mathbf{e}_1$ 和 $\mathbf{e}_2$ 为入射光和衍射光的电向量的单位向量, $\delta\epsilon_{ij}$ 由(9)式所定义.

尽管晶体的总的衍射效率可达百分之几十, 但对每一个光栅元来说效率是很低的, 所以在以后计算相对强度分布时, 我们可以近似地在(10)式中作 $x \approx \sin x$ 的近似, 不讨论绝对强度, 这样在许多问题中只需考虑因子

$$C = |e_{1i} \cdot \delta \epsilon_{ij} \cdot e_{2j}| / \sqrt{K_{1y} K_{2y}} \quad (11)$$

就足够了。

我们先计算 $o \rightarrow e$ 衍射模的 C 值, 即入射光为 o 光, 衍射光为 e 光的情况, 光路的配置如图 1 所示, 在晶体内取右手坐标系, z 轴与 c 轴重合, 通光的晶面垂直于 y 轴, 入射光 (K_1) 同 y 轴成 ν 角, 顺正 y 方向看, K_1 在 y 轴右边时 ν 为正, 反之为负。衍射光同入射光的夹角为 θ (在晶体内的衍射角), 它的正负号的定义是: 顺着 K_1 方向看, K_2 在 K_1 右边时, θ 为正, 反之为负, 即 $K_2 \times K_1$ 指向正 z 方向时 θ 为正。由于 K 要满足布拉格条件(5)式 (一级衍射的情况, 高级衍射只影响绝对强度, 故无需考虑), 所以在 K 的方向上只有一个 $|K|$ 值能满足(5)式, 而且相应的光栅我们暂时假定总是存在的。因而满足布拉格条件的 K 就同 θ 一一对应。计算出这些 K 对应的光栅的 η 值, 乘上对该衍射方向有贡献的光栅(密度)数 $N(K)$ 后得到衍射强度的相对分布 (与 θ 的关系)。

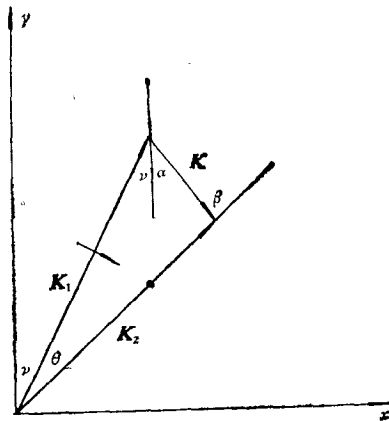


图 1

从图 1 可以看出: $e_1 = i \cos \nu - j \sin \nu$, $e_2 = h$ (i, j, h 为 x, y, z 轴的单位矢量), (11)式可写成

$$\begin{aligned} C &= |\cos \nu \delta \epsilon_{13} - \sin \nu \delta \epsilon_{23}| / \sqrt{K_{1y} K_{2y}} \\ &= |\cos \nu \cdot \epsilon_{11} \cdot \gamma_{13h} \cdot \epsilon_{33} \cdot (\epsilon^{-1})_{hj} \cdot k_j \\ &\quad - \sin \nu \cdot \epsilon_{22} \cdot \gamma_{23h} \cdot \epsilon_{33} \cdot (\epsilon^{-1})_{hj} \cdot k_j| \delta \rho / (|K| \sqrt{K_{1y} K_{2y}}), \end{aligned}$$

其中当 $i \neq j$ 时, $\epsilon_{ij} = (\epsilon^{-1})_{ij} = 0$; $(\epsilon^{-1})_{11} = (\epsilon^{-1})_{22} = 1/\epsilon_{11}$; $(\epsilon^{-1})_{33} = 1/\epsilon_{33}$, 以及 $\gamma_{13h} = \gamma_{2h}$, $\gamma_{23h} = \gamma_{4h}$, 而且只有 $\gamma_{31} = \gamma_{42} \approx 0$, $\gamma_{32} = -\gamma_{41} \approx 0$, 这样

$$C = |(ak_1 - k_2) \cos \nu - (k_1 + ak_2) \sin \nu| \delta \rho \gamma_{41} \epsilon_{33} / (|K| \sqrt{K_{1y} K_{2y}}), \quad (12)$$

其中 $a = \gamma_{42}/\gamma_{41}$, 从图 1 可直接看出: $k_1 = \sin \alpha$, $k_2 = -\cos \alpha$, 所以

$$\begin{aligned} C &= |(a \sin \alpha + \cos \alpha) \cos \nu - (\sin \alpha - a \cos \alpha) \sin \nu| \delta \rho \gamma_{41} \epsilon_{33} / (|K| \sqrt{K_{1y} K_{2y}}) \\ &= |a \sin(\alpha + \nu) + \cos(\alpha + \nu)| \delta \rho \gamma_{41} \epsilon_{33} / (|K| \sqrt{K_{1y} K_{2y}}). \end{aligned}$$

又可以从图 1 看出: $\sin(\alpha + \nu) = \sin \theta |K_2| / |K|$; $\cos(\alpha + \nu) = (|K_1| - |K_2| \cos \theta) / |K|$. 现在 $|K_2| = 2\pi n_e / \lambda = K_e$, $|K_1| = 2\pi n_o / \lambda = K_o$, 其中 n_o, n_e 分别为 α -LiIO₃ 的寻常光和非寻常光的折射率, 略去 C 中的因子 $[\delta \rho \gamma_{41} \epsilon_{33} \lambda^2 / (4\pi^2 \sqrt{n_o n_e})]$ 后, 把它写作 $O(\theta, \nu)$,

$$O(\theta, \nu) = |a n_e \cdot \sin \theta + n_o - n_e \cdot \cos \theta| / (A(\theta) \sqrt{\cos \nu \cdot \cos(\theta + \nu)}), \quad (13)$$

其中:

$$A(\theta) = n_o^2 + n_e^2 - 2n_o n_e \cos \theta. \quad (14)$$

同样, 可以利用图 1 来计算 $e \rightarrow o$ 模的 C 值, 这时 $|K_1| = K_e$, 为 e 光; $|K_2| = K_o$ 为 o 光, $e_1 = h$, $e_2 = i \cos(\nu + \theta) - j \sin(\nu + \theta)$, 这时(11)式可写成

$$\begin{aligned}
C &= |\cos(\nu + \theta)\delta\epsilon_{31} - \sin(\nu + \theta)\delta\epsilon_{32}|/\sqrt{K_{1y}K_{2y}} \\
&= |(ak_1 - k_2)\cos(\nu + \theta) - (k_1 - ak_2)\sin(\nu + \theta)|\delta\rho\gamma_{41}\epsilon_{33}/(|K|\sqrt{K_{1y}K_{2y}}) \\
&= |a\sin(\alpha + \theta + \nu) + \cos(\alpha + \theta + \nu)|\delta\rho\gamma_{41}\epsilon_{33}/(|K|\sqrt{K_{1y}K_{2y}}) \\
&= |a\sin\beta - \cos\beta|\delta\rho\gamma_{41}\epsilon_{33}/(|K|\sqrt{K_{1y}K_{2y}}).
\end{aligned}$$

从图 1 可见: $\sin\beta = |K_1|\sin\theta/|K|$; $\cos\beta = (|K_1|\cos\theta - |K_2|)/|K|$, 代入上式后, C 中略去因子 $[\delta\rho\gamma_{41}\epsilon_{33}\lambda^2/(4\pi^2\sqrt{n_o n_e})]$ 后可写成

$$\begin{aligned}
E(\theta, \nu) &= |an_e\sin\theta - n_o + n_e\cos\theta|/(A(\theta)\sqrt{\cos\nu \cdot \cos(\nu + \theta)}) \\
&= O(-\theta, -\nu).
\end{aligned} \tag{15}$$

三、实验现象的解释

用上面所作的理论计算结果,可以解释实验中所观察到的现象:

1. 偏振面转 90° 从 $O(\theta, \nu)$ 和 $E(\theta, \nu)$ 在一般情况下不等于零,就说明衍射现象中存在 $o \rightarrow e$ 和 $e \rightarrow o$ 衍射模式.

2. 强度分布的不对称性 衍射强度正比于 $\eta N(\mathbf{K}) \sim C^2 N(\mathbf{K})$, 在目前情况下, $N(\mathbf{K}) \sim |d\mathbf{K}/d\theta|$, 其物理意义可这样来理解: 在 $H(\mathbf{K}) \equiv 1$ 的假定下, 光栅元 $(\mathbf{K})$ 在 $\mathbf{K}$ 空间中(在这一问题中它只是一个垂直于 c 轴的平面)的分布是均匀的, 所以对于在 θ 方向, $d\theta$ 范围内对衍射有贡献的光栅的数目正比于满足布拉格条件时变化 $d\theta$ 所对应的变化 $d\mathbf{K}$ 的长度, $d\theta$ 趋于零时, θ 方向的衍射强度正比于 $|d\mathbf{K}/d\theta|$, 由于 $\mathbf{K}_2 = \mathbf{K}_1 + \mathbf{K}$, $\mathbf{K}_1$ 为一常矢量, 所以

$$\left| \frac{d\mathbf{K}}{d\theta} \right| = \left| \frac{d\mathbf{K}_2}{d\theta} \right| = |\mathbf{K}_2|$$

是一个同 θ 无关的常数, 对于 $o \rightarrow e$ 和 $e \rightarrow o$ 模分别等于 K_e 和 K_o . 由于下面我们只对相对强度分布感兴趣, 所以可略去因子 $N(\mathbf{K})$ 而直接用 C 值来讨论强度分布.

先令(13)式中的 $\nu = 0$ (这是实验中所观察的, 垂直通光面入射的情况), 这时可看到分子中的因子 $n_o - n_e\cos\theta > 0$ ($\alpha\text{-LiIO}_3$ 是负单轴晶体 $n_o > n_e$), 分母是 θ 的偶函数, 若 $a > 0$, 则有 $O(\theta, 0) > O(-\theta, 0)$ 即相对于透射光斑 ($\theta = 0$ 处), 衍射带的一侧强, 而另一侧弱. 根据文献 [1], 在 L 型晶体中, $\mathbf{P}_s \times \mathbf{K}_1$ 是指向弱的一侧, 那么在图 1 中如令 $\mathbf{P}_s$ (自发极化矢量)指向正 z 方向, 上面所讨论的正是 L 型晶体的情况.

图 2 是用 $O^2(\theta, 0)$ 算出的 $o \rightarrow e$ 模的相对强度分布 (θ 是在晶体内的衍射角, θ_{out} 是在晶体外的衍射角, $\sin\theta_{\text{out}} = n_{o,e}\sin\theta$), 其中取 $a = 1.6$ (见这节 6) 以及 $H(\mathbf{K}) = 1$. 当然, 实际情况 $H(\mathbf{K})$ 是不恒等于 1 的. $H(\mathbf{K})$ 的分布包络的形状将会影响到图 2 曲线的形状和极大的位置, 但不会改变极小的位置. 实验没有测量整个分布曲线, 只测了很小一个范围 ($-11^\circ < \theta_{\text{out}} < -2^\circ$) 的分布 [2], 从图 2 看出它基本上同理论曲线重合, 以及从文献 [1] 中的图 2 的衍射带的照片可看出其极大值的位置同本文图 2 的极大值的位置大致相同, 这说明真实的 $H(\mathbf{K})$ 的分布包络的极大值位置 $|K_{\text{max}}|$ 对应着衍射角 $\theta_{\text{out}} \approx 5^\circ - 6^\circ$ 的衍射, 相当于 $|K_{\text{max}}| = 0.18 \times 2\pi/\lambda$, 由此可推测出电荷密度涨落中最可几的范围

为 $3.5 \mu\text{m}$ 左右, 如果有完整的强度分布的实验曲线, 就可用使理论值与正 θ 部分的实验值相拟合的办法来求出分布 $H(|K|)$, 再用这个值来算出负 θ 部分的理论曲线与实验相比较, 这样既能定量地检验理论, 又能得到分布 $H(|K|)$ 。

当 $\nu \approx 0$ 时, 这种强度分布相对于透射光斑 ($\theta = 0$) 的不对称性依旧存在, 而且从负 θ 侧存在强度为零的极小 ($o \rightarrow e$ 模) 这一事实可知仍是负 θ 侧是弱的。

当以 C 面(垂直于 c 轴)作为通光面, 入射光同 c 轴成一锐角时, 根据计算这种强度分布的不对称性仍存在, 在弱的一侧还是有极小。

3. 强度分布同偏振的关系 同样先令 $\nu = 0$, 那么(15)式变成 $E(\theta, 0) = O(-\theta, 0)$, 这正好说明实验所观察到的两种不同衍射模式的不对称性正好相反的事实。对于 $\nu \approx 0$ 的情况, 这种不对称性相反的特性仍存在, 但 $E(\theta, \nu)$ 不再严格地等于 $O(-\theta, \nu)$ 。这是由于在(13)和(15)式平方后分母中有一个因子 $\cos(\nu + \theta)$ 对于 $\pm \theta$ 是不同的, 但由于 $|\nu| < 35^\circ$ (α -LiIO₃ 的全内反射临界角), 所以在实验感兴趣的 θ 范围内, 这个因子引起的差别仅百分之几, 故还有 $E(\theta, \nu) \approx O(-\theta, \nu)$, 而(15)式说明, 当一种模以 ν 角入射, 另一种模以 $-\nu$ 角入射时, 强度分布是一一对应的。当然, 实际情况也不是这样严格地一一对应的, 因为同一 θ 对应两种模的 θ_{out} 是不同的, 另外, 它们相应点上的强度还要差个因子 (n_o/n_e) (来自不同的 $N(K)$)。

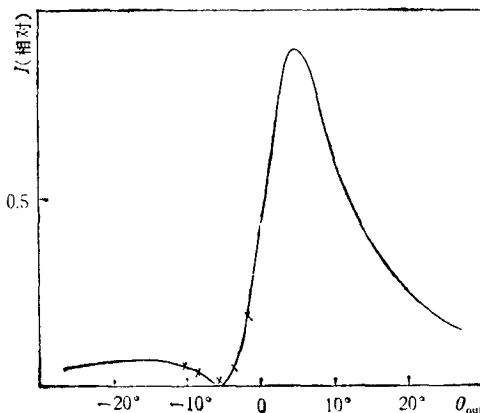


图2 $o \rightarrow e$ 衍射模相对强度分布
× 为实验值

4. 强度分布同晶体的绝对构型的关系 两种不同构型的晶体相对于包含其螺旋对称主轴的平面互成镜像^[8], 因此它们的衍射带强度分布的不对称性正好左右(相对透射光斑)反转, 只要将前面采用的右手坐标系改成左手坐标系^[9]就可得到D型晶体的表达式。保持(图1) y, z 轴不变, x 轴反转, 因此 θ, ν 的正负号的定义在两种坐标系中是相同的, 两种晶体的 $\mathbf{P}_s$ 都指向正 z 方向, 这样得到 $O_D(\theta, \nu) = O_L(-\theta, -\nu) = E_L(\theta, \nu)$ 和 $E_D(\theta, \nu) = E_L(-\theta, -\nu) = O_L(\theta, \nu)$ 。对于 $\nu = 0$, $O_D(\theta, 0) = O_L(-\theta, 0)$, 即在垂直入射情况, 同一衍射模在不同的构型的晶体中其分布正好左右反转, 这就是实验所观察的情况。对于 $\nu \approx 0$, 根据上面已讨论的理由, $O_D(\theta, \nu)$ 同 $O_L(-\theta, \nu)$ 近似相等。由 $O_D(\theta, \nu) = E_L(\theta, \nu)$ 和 $E_D(\theta, \nu) = O_L(\theta, \nu)$ 可见, 从两种不同构型的样品得到 $o \rightarrow e$ 和 $e \rightarrow o$ 模的分布却是分别相同的。

5. 现象与平行于 c 轴的通光面的取向无关 在图1中令通光面垂直 x 轴, θ, ν 的定义也从对 y 轴变成对 x 轴, 重新计算 $O(\theta, \nu)$ 和 $E(\theta, \nu)$, 得到同(13)和(15)式完全一样的结果, 这正好是实验中的两个互相垂直的通光面的情况。另外, 在图1中 x, y 轴方向的选择是任意的, 所以通光面平行 c 轴的现象就同通光面的取向无关。

6. 强度分布包络具有极小 令 $O(\theta, \nu)$ 为零, 得

$$\sin \theta_{\min} = -(n_o - n_e \cos \theta_{\min}) / a n_e. \quad (16)$$

只要 a 足够大, (16) 式总是有解的. 由 $n_o > n_e$, $a > 0$, 所以 (16) 式右边小于零, 即 $\theta_{\min} < 0$, 也就是说极小在衍射带的弱侧. (16) 式中不明显包含 λ , 只是通过 n_o , n_e 才与波长有关, 所以当实验中用 $6328 \text{ \AA}$ 和 $4850 \text{ \AA}$ 的光来观察时, 在误差范围内没有发现极小角位置有什么差别.

Nash 等人^[10]曾测出 $\gamma_{42} = 3.3 \pm 20\%$, $\gamma_{41} = 1.4 \pm 15\%$ (单位为 10^{-12} m/V), 所用电场的频率约为 70 MHz (无应变情况). 在静电场情况下, 电场将会通过逆压电效应使晶体产生应变, 而弹光效应又使介电张量再发生变化, 所以与高频电场情况完全不同. 因此, 我们用实验测得的极小角位置来算出 a , 再同用 Nash 的数值通过变换以后的结果作比较. 取 $o \rightarrow e$ 衍射极小角位置为 -5.5° (垂直入射, 这时 $e \rightarrow o$ 模极小为 6°), 相应的晶体极小角位置为 $\theta_{\min} = -3.2^\circ$, 代入 (16) 式, 得 $a = 1.6$.

我们可用公式^[11]

$$\gamma_{mn}^T - \gamma_{mn}^S = p_{mk}^E d_{nk}^T \quad \begin{matrix} n = 1, 2, 3; \\ k, m = 1, 2, \dots, 6 \end{matrix} \quad (17)$$

来算出静场的 $\gamma_{mn}(\gamma_{mn}^T)$, 其中 $\gamma_{mn}^T, \gamma_{mn}^S$ 分别为无应力 (静场情况) 和无应变 (高频场情况) 的线性电光张量元, p_{mk}^E 为恒定电场下的四阶弹光张量元, d_{nk}^T 为常应力压电张量元, 它们的值分别可从文献 [12] 和 [13] 中找到. 这样用 Nash 的数据从 (17) 式算出静场时的 $\gamma_{42}/\gamma_{41} \approx 1$. 这样算出的结果其误差大于 100% , 因为所测得的 $\gamma_{mn}^S, p_{mk}^E, d_{nk}^T$ 的误差都十分之大, 单 d_{nk}^T 的测量误差就可能大于 100% ^[14]. 所以, 我们认为 $a = 1.6$ 是精确的. 因为实验中测量的误差小于 10% .

在 Nash 等的测量中, 他们只定出了 $\gamma_{31}(=\gamma_{32}), \gamma_{33}, \gamma_{42}(=\gamma_{31})$ 等元的符号是相同的, 不能确定 $\gamma_{41}(=-\gamma_{32})$ 的符号, 更主要的是他们不能确定他们所选的坐标系的正 z 方向与 P_z 方向的关系以及 γ 系数与晶体的绝对构型的关系. 我们上面的讨论却自然地得出这些关系. 在 L 型晶体中, 使所选的右手坐标系 (R) 的正 z 向指向 P_z 方向, 则 $a_k^R = (\gamma_{42}^R)/(\gamma_{41}^R) > 0$, 因而在这坐标系中除 γ_{32}^L 外, 其它 γ 完全是同号的; 对于 D 型晶体, 由对称性可知, 在相应的左手系 (L) 中有 $|a_L^D| = |a_k^R|$ 和 $a_L^D = (\gamma_{42}^D)/(\gamma_{41}^D) > 0$. 当从左手系变换成右手系时, 在 (L) 系中的 $\gamma_{31}^D = \gamma_{32}^D, \gamma_{33}^D, \gamma_{31}^D = \gamma_{42}^D; \gamma_{32}^D = -\gamma_{41}^D$ 分别变换成 (R) 系中的 $\gamma_{32}^D = \gamma_{31}^D, \gamma_{33}^D; \gamma_{42}^D = \gamma_{31}^D; \gamma_{41}^D = -\gamma_{32}^D$; 而 $(\gamma_{42}^D)/(\gamma_{41}^D) > 0$ 变换成 $(\gamma_{31}^D)/(\gamma_{32}^D) > 0$. 所以, 在同一个右手系 (P_z 指向正 z 向) 中, 就有 $\gamma_{31}^L = \gamma_{32}^L = \gamma_{31}^D = \gamma_{32}^D; \gamma_{33}^L = \gamma_{33}^D; \gamma_{42}^L = \gamma_{31}^L; \gamma_{41}^L = \gamma_{32}^L = [-\gamma_{32}^D] = [-\gamma_{41}^D]$, 它们全有相同的符号.

7. 极小角位置同入射光方向的关系 当入射光在 xy 平面内改变入射方向时, 强度极小点同透射光斑之间的角距离 δ 也要变化, 实验已测出两种模式的 $\delta-\varphi$ (φ 为入射光同入射面法向间的夹角) 曲线^[2]. 我们已经证明, 在晶体内这个角度 $\theta_{\min}$ 与入射方向无关, 那么, 所有的变化都可用晶体光学来处理. 可以从图 3 直接算出 δ 与 φ 的关系

$$\delta_{o \rightarrow e} = \sin^{-1} \left\{ n_e \sin \left[\sin^{-1} \left(\frac{\sin \varphi}{n_o} \right) + \theta_{\min} \right] \right\} - \varphi, \quad (18)$$

其中 φ 的正负号的规定同文献 [2] 中的一致. 对于 $e \rightarrow o$ 模只需在 (18) 式中作对换

$n_e \longleftrightarrow n_o$. 从(18)式算出的曲线同实验曲线完全重合. 表 1 中列出了一些代表性的数据 (其中取 $|\theta_{\min}| = 3.2^\circ$). 从 $|\delta_{o \rightarrow e}| \approx |\delta_{e \rightarrow o}|$ 就可以看出, 在实际情况下, 两种模式的衍射强度分布不是一一对应的.

φ	$ \delta (o \rightarrow e \text{ 模})$		$ \delta (e \rightarrow o \text{ 模})$	
	理 论	实 验	理 论	实 验
45°	2.8°	2.7°	2.8°	2.7°
0°	5.5°	5.5°	6°	5.5°
-45°	10.9°	11.3°	14.8°	14.5°

8. 精细结构 在我们上面的讨论中, 强度分布是连续的, 这是因为假定了各种方向的光栅可以有不为零的各种 $|K|$ 值, 布拉格条件自然会在各个方向上满足. (4) 式中的 $H(K)$ 同 K 的关系显然会使强度分布产生精细结构, 精细结构中的峰和谷 (不是整个分布包络的极值) 是由于相应的方向上满足布拉格条件的 K 所对应的 $H(K)$ 出现峰和谷所致, 如果能从强度分布的精细结构反算出分布 $H(K)$, 那么就可以了解到 $\delta\rho(r)$ 的一个概貌, 从而有助于对这个问题的物理机制的研究.

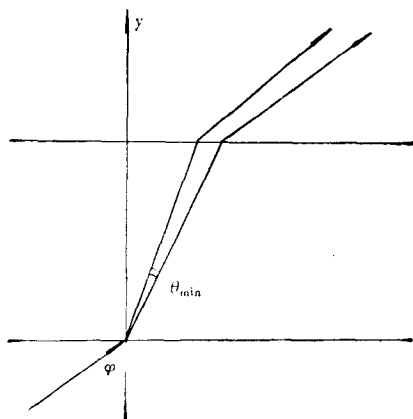


图 3

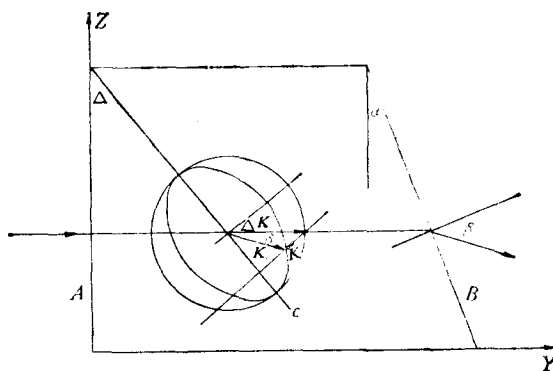


图 4

9. 衍射带的形状和位置 上面讨论了入射光垂直于 c 轴的情况, 衍射带是直线并通过透射光斑. 现在来讨论 c 轴不平行于通光面的情况. 先确定带的位置, 即计算在 YZ 平面内各出射光同出射面 B 的法线间的夹角 β (见图 4). 图 4 是实验中的一般情况. B 面和 c 轴分别同 A 面间的夹角为 α 和 Δ (它们在图 4 中的情况为正, 张角在垂线的左边时为负). 在入射光垂直于 A 面时显然有

$$\sin \beta_o = n_o \sin \alpha, \quad \sin \beta_e = n_e[\Delta] \sin \alpha, \quad (19)$$

其中 $n_e[\Delta]$ 为传播方向与 c 轴的垂直线成 Δ 角的 e 光折射率, $1/n_e^2[\Delta] = \cos^2 \Delta / n_e^2 + \sin^2 \Delta / n_o^2$.

对于 $o \rightarrow e$ 模, 可以从图 4 中的衍射矢量图^[7]来算出 K_2 的方向. 入射光 K_1 为 o 光, 相应的波矢面是一个半径为 $2\pi n_o / \lambda$ 的球, 其中心在 K_1 矢量的起始点 o 上; K_2 为 e 光, 而

e 光的波矢面是一旋转椭球, 其长轴同 c 轴重合. 半长轴为 $2\pi n_o/\lambda$, 半短轴为 $2\pi n_e/\lambda$. 图 4 中只画出它们同 YZ 平面的交线, 分别为一个圆和椭圆. K 一定要在垂直于 c 轴的平面内. 布拉格条件(5)式决定了 K_2 的矢端一定要落在通过 K_1 的矢端并垂直于 c 轴的平面与旋转椭球的交线上. 这样从图 4 中不难看出 K_2 要与 K_1 偏离一个角度 δ (向下), 而且直接可看出角 δ 所满足的关系式:

$$n_e[\Delta + \delta] \sin(\Delta + \delta) = n_o \sin \Delta. \quad (20)$$

所以对于 $o \rightarrow e$ 模有

$$\sin \beta_{o \rightarrow e} = n_e[\Delta + \delta] \sin(\alpha + \Delta). \quad (21)$$

对于 $e \rightarrow o$ 模, K_2 同 K_1 的夹角为 δ' (向上), 它满足方程

$$n_o \sin(\Delta - \delta') = n_e[\Delta] \sin \Delta \quad (22)$$

以及

$$\sin \beta_{e \rightarrow o} = n_o \sin(\alpha - \delta'). \quad (23)$$

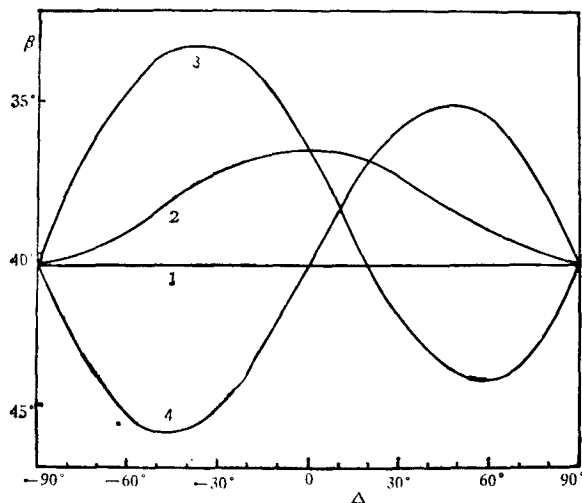


图 5 1, 2 分别为 o 光和 e 光的 β_o 和 β_e 角; 3, 4 分别为 $o \rightarrow e$ 和 $e \rightarrow o$ 的衍射光的 $\beta_{o \rightarrow e}$ 和 $\beta_{e \rightarrow o}$ 角

在一般情况下, 只能用数值计算才能算出 $\beta_{o \rightarrow e}$ 和 $\beta_{e \rightarrow o}$, 图 5 为 $\alpha = 20^\circ$ 时 $\beta - \Delta$ 关系曲线. 对于实验中的几个特殊情况可正确地算出:

1) $\Delta = 0$, c 轴平行于 A 面, 这时 $\delta = \delta' = 0$, 所以 $\beta_{e \rightarrow o} = \beta_o$, $\beta_{o \rightarrow e} = \beta_e$, 这是一目了然的, o 光和 e 光的衍射带 (分别为 e 光和 o 光) 分别与 e 光和 o 光的透射斑相重合.

2) $\Delta = \alpha$, c 轴平行于 B 面, 从(20)式可以看出: $\sin(\alpha + \delta) = n_o \sin \alpha / n_e[\alpha + \delta]$, 代入(21)式, 得到 $\sin \beta_{o \rightarrow e} = n_o \sin \alpha = \sin \beta_o$, 即 $\beta_{o \rightarrow e} = \beta_o$. 同样, 可以算出 $\beta_{e \rightarrow o} = \beta_e$. 即与 1) 的情况相反, 电量为 e 光的衍射带通过 o 光的透射光斑; 电量为 o 光的衍射带通过 e 光透射光斑.

3) $|\Delta| = 90^\circ$, $\delta = \delta' = 0$, $\beta_{o \rightarrow e} = \beta_{e \rightarrow o} = \beta_e = \beta_o$.

所有出射光重合在一个点上¹⁾, 并且由于 $\delta\epsilon_{12} = 0$, 透过光除旋光性的影响外, 偏振面应无变化。

4) $\Delta = \alpha/2$. 数值解得 $\beta_{o \rightarrow e} = \beta_{e \rightarrow o} = (\beta_o + \beta_e)/2$, 即两衍射带重合, 其位置在两透光斑中间. 上述这些结果都是实验中所观察到的特殊情况。

当 c 轴固定而在 YZ 平面内改变入射方向时, 衍射带的相对位置不变. 这是实验中观察到的又一有趣的现象. 令图 4 中 A 面 $\parallel B$ 面 $\parallel c$ 轴, φ 为入射角, β 为出射角 (都相对于通光面的法线). 显然, 透射光的 $\beta_{o,e} = \varphi$, 令 φ' , φ'' 分别为 o 光和 e 光进入 A 面的折射角: $\sin \varphi' = \sin \varphi/n_o$, $\sin \varphi'' = \sin \varphi/n_e[\varphi'']$, 而 $\sin \beta_{o \rightarrow e} = n_e[\varphi' + \delta] \sin(\varphi' + \delta)$. 令(20)式中的 $\Delta = \varphi'$ 就可求出 $\sin(\varphi' + \delta) = n_o \sin \varphi' / n_e[\varphi' + \delta]$. 所以 $\sin \beta_{o \rightarrow e} = n_o \sin \varphi' = \sin \varphi$, 即 $\beta_{o \rightarrow e} = \varphi$. 而 $\sin \beta_{e \rightarrow o} = n_o \sin(\varphi'' - \delta')$, 同样, 令(22)式中的 $\Delta = \varphi''$ 就可求出 $\sin(\varphi'' - \delta') = n_e[\varphi''] \sin \varphi'' / n_o$, 由此得到 $\sin \beta_{e \rightarrow o} = n_e[\varphi''] \sin \varphi'' = \sin \varphi$. 结果为 $\beta_o = \beta_e = \beta_{o \rightarrow e} = \beta_{e \rightarrow o} = \varphi$, 不管入射方向如何, 带的相对位置不变 (在 $A \parallel B \parallel C$ 的特殊情况, 它们是全重合的), 可见, 仅仅改变入射方向, 由衍射效应产生的带位置的改变正好被双折射效应所抵消. 所以在实验中只观察到当 c 轴与通光面的取向变化时, 才能有带的相对位置的变化。

现在来考察整个衍射带的形状. 上面已经说到, K_2 的端点落在旋转椭球与垂直于 c 轴并通过 K_1 端点的平面的交线上, 这是以 c 轴为中心的一个圆. 所以, K_2 保持与 c 轴的夹角 $((\pi/2) - \Delta - \delta)$ 不变 (其长度也不变) 而绕 c 轴旋转. 因此, 这时 ($\Delta \approx 0$) 衍射带必为一个圆弧. 从出射面外的屏上来观察就是一条两端向下的圆弧 (见文献 [1] 的图 3). 只有 $\Delta = 0$ 时投影成一条直线 (见文献 [1] 的图 2). $|\Delta|$ 变大时, 圆弧的曲率半径变小, 直到 $|\Delta| = 90^\circ$ (即垂直于 C 面通光的情况) 变成一个点. 对于 $e \rightarrow o$ 模的情况完全一样. 当 $\Delta < 0$ 时, 圆弧的两端向上, 这些结果同实验观察到的完全一致。

四、讨 论

上面我们只讨论了衍射光的偏振面与入射光的偏振面间成 90° 的那些衍射现象. 在实验中同时观察到另外一些偏振面不变的衍射现象. 我们将在文献 [15] 中予以讨论。

实验发现, 在晶体内只有外场而无电流的区域是无衍射现象的^[3,4]. 这是由于仅在有电流的区域内才能产生电荷密度的涨落, 低温“冻结”效应^[3,4]更直接地表明不是电流本身 (在低温下电流可忽略地小), 而是电荷涨落被“冻结”产生的现象. 涨落有空间的涨落和时间的涨落. 电荷密度的空间涨落产生了衍射现象; 它的时间涨落使衍射强度, 特别是细结构, 随时间有变化, 这是实验中观察到的. 尤当电流强度很大, 衍射强度趋近饱和时, 这种涨落更为显著^[2], 这显示了涨落现象的特点。

激光通过不同的样品, 或在同一样品相距不远的部位, 尽管外加静电场强度不变, 实验观察到的衍射带绝对强度有相当大的差异, 即绝对强度具有结构灵敏性. 可见, 空间电荷的空间涨落与晶体的某一特定类型的缺陷有一定的关联. 在我们讨论的问题中, 结构

1) 王琇等: C 面通光, 入射面法向不平行于 c 轴, 光束倾斜入射后平行于 c 向的实验观察 (内部交流).

灵敏性首先反映在(4)式中 $\delta\rho$ 的大小以及 $H(K)$ 的函数关系上,但相位光栅的 K 与 c 轴基本上正交则是不变的,至于有关的缺陷的性质和 $\delta\rho(x, y)$ 几乎可以作为与坐标 z 无关的机制尚有待于探讨. 在文献[15]中将要讨论的偏振面不变, 倾斜于 c 轴的小角衍射带则与另一种缺陷有联系,衍射现象的时间弛豫行为和缺陷类型间存在密切的关系.

各向异性涨落是一个普遍的现象,例如在液晶中也有类似的现象^[16,17]. 在各向异性相的 MBBA 中,当液晶分子的取向 n 受到某种扰动之后, e 光折射率在垂直于 n 的方向上有涨落,而在这方向上产生衍射. 但在平行于 n 方向以及 o 光的折射率没有涨落^[16]. 在液晶中已经知道产生这种各向异性涨落的物理机制.

我们已经成功地解释了文献[1—4]中一直令人费解的众多实验现象,而且数值计算也和实验结果相吻合. 由此可见,我们的理论模型是正确的,并得到了电光张量元 r_{42} 与 r_{41} 的比值为 1.6 (静场). 我们认为这模型也应能用于中子衍射增强^[18]等现象的解释.

工作中曾与李铁城和许政一同志进行过有益的讨论,谨致谢意.

参 考 文 献

- [1] 杨华光, 物理学报, **29**(1980), 1039.
- [2] 杨华光等, 物理学报, **30**(1981), 928.
- [3] 许政一等, 物理学报, **31**(1982), 615.
- [4] 许政一等, 中国科学, 待发表.
- [5] 许政一等, 物理, **8**(1979), 9.
- [6] "Holographic Recording Materials" ed. H. M. Smith, Springer-Verlag, (1977).
- [7] M. P. Petrov *et al.*, *J. Optics (Paris)*, **12**(1981), 287.
- [8] M. N6Grádi, *Stereochemistry*, (1981).
- [9] W. G. Cady, *Piezoelectricity*, (1946). Chap. 16.
- [10] F. R. Nash *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **40**(1969), 5201.
- [11] S. H. Wemple, in "Laser Handbook" Vol. 1, ed. F. T. Arecchi *et al.*, (1972).
- [12] A. W. Warner *et al.*, *J. Acoust. Soc. Amer.*, **47**(1970), 791.
- [13] S. Haussühl, *Acoustica*, **23**(1970), 165.
- [14] 刘鸿举等, 物理学报, **30**(1981), 297.
- [15] 顾世杰、李荫远, 本刊本期.
- [16] S. J. Gu (顾世杰) *et al.*, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **69**(1981), 287.
- [17] P. G. de Gennes, *The Physics of Liquid Crystals*, (1974) § 3. 4.
- [18] 杨桢等, 中国科学, (7)(1979), 649; *Scientica Sinica*, **22** (1979), 1000.

THEORETICAL EXPLANATION OF THE LIGHT DIFFRACTION DUE TO SPACE CHARGE FLUCTUATION IN THE QUASI ONE- DIMENSIONAL IONIC CONDUCTOR

—— α -LiIO₃ (I)

ANISOTROPIC MODES

GU SHI-JIE LI YIN-YUAN (Y. Y. Li)

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

A theoretical treatment was developed to explain the light diffraction bands normal to the c -axis subtending large angle and strong in intensity which were investigated in much details with α -LiIO₃ single crystals under the action of a d. c. field^[1-4]. It is assumed only that a fluctuation of the space charge density $\delta\rho(x, y)$ appears as ionic transportation taking place in the c -direction. The related internal field $\delta E(x, y)$ produces $\delta\epsilon_{ij}(x, y)$ for the dielectric tensor through the linear electro-optic effect. As a consequence, anisotropic phase gratings come into existence in the crystal. With such a model we successfully explained quantitatively or qualitatively all observed phenomena such as the polarization of diffracted beams turning $\pi/2$, the angular distribution of diffracted intensity being asymmetric and possessing a minimum, and those observed using specimens of different absolute configurations being related as mirror images. The relative positions of the diffracted bands and their shapes observed with specimens cut in different orientations with respect to the c -axis were found in agreement with our theoretical derivation. The variation of the angular position of the minimum intensity with the change of the incident angle were calculated and satisfactory results were obtained. Therewith we evaluated for the first time the ratio of two elements of the electro-optic tensor $\gamma_{42}/\gamma_{41}=1.6$ in a d. c. field.