

# LiNbO<sub>3</sub> 在反常色散区光学常数的测定

苏大昭 徐谨民 张万林 张光寅  
(南开大学物理系)

## 提 要

我们用 1708X 傅里叶变换红外光谱仪, 测量了 LiNbO<sub>3</sub> 在 30 cm<sup>-1</sup>~2800 cm<sup>-1</sup> 波段内的反射光谱。应用 Kramers-Kronig 关系的积分形式, 快速而准确地计算出 LiNbO<sub>3</sub> 在同一波段内的各种光学常数的谱图。由此, 可直接得到 A<sub>1</sub> 模和 E 模的横频率 ω<sub>T</sub>、纵频率 ω<sub>L</sub> 和高频介电常数 ε<sub>∞</sub>。计算了振子强度。讨论了振子间的相互耦合作用。并认为 670 cm<sup>-1</sup> 模就是 E 模的一个基频。

关键词: 铌酸锂, 差谱。

## 一、引 言

利用红外反射光谱。通过 K-K 关系来计算光学常数的方法, 早在 60 年代前后就有不少文章发表<sup>[1~3]</sup>。可是, 由于光谱数据的输出与输入, 加长了计算时间。若反射谱在某些波段急骤陡直下降, 利用下式<sup>[4]</sup>

$$Q(\nu_k) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \ln \left| \frac{\nu + \nu_k}{\nu - \nu_k} \right| \left| \frac{dR(\nu)}{d\nu} \right| d\nu,$$

式中 ν 为波数。所计算出的光学常数的谱图, 在该处产生一个尖峰而失真。为了提高远红外区 (30 cm<sup>-1</sup>~100 cm<sup>-1</sup>) 的信噪比和省略红外偏振片, 我们用差谱法测量了反射谱图。直接调用存在磁盘中反射谱图的数据, 利用 K-K 关系的积分形式

$$Q(\nu_k) = \frac{\ln R(\nu_1)}{2\pi} \ln \left| \frac{\nu_1 - \nu_k}{\nu_1 + \nu_k} \right| - \frac{\ln R(\nu_2)}{2\pi} \ln \left| \frac{\nu_2 - \nu_k}{\nu_2 + \nu_k} \right| + \frac{\nu_k}{\pi} P \int_{\nu_1}^{\nu_2} \frac{\ln R(\nu)}{\nu^2 - \nu_k^2} d\nu.$$

(ν<sub>k</sub> = ν<sub>1</sub> + dν...ν<sub>2</sub> - dν)

来进行计算, 节省了时间 (测完反射谱后, 由 K-K 变换到给出各种谱图只需半小时), 提高了数据的可靠性, 避免了谱图的失真。

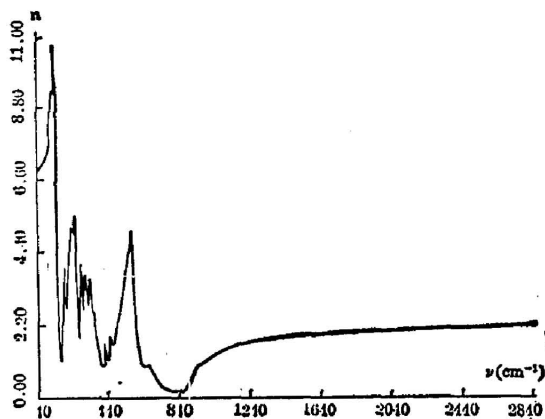


Fig. 1 Distortion of refractive index spectrum of E mode

## 二、实验与结果

我们用 170SX 傅里叶变换红外光谱仪和入射角小于  $10^\circ$  的反射附件, 在室温下, 利用差谱法分别测出  $\text{LiNbO}_3$  在  $30\text{cm}^{-1}\sim 2800\text{cm}^{-1}$  波段内  $A_1$  模和  $E$  模的反射光谱。如图 2 所示。

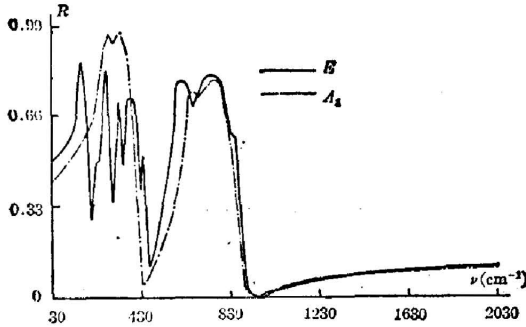


Fig. 2 Infrared reflectance spectra of  $A_1$  and  $E$  modes

直接调用存在磁盘中  $A_1$ 、 $E$  两模的反射谱图的数据, 利用  $K$ - $K$  关系的积分形式, 分别计算出  $A_1$  与  $E$  模的位相谱  $\theta(\nu)$ 。

将位相谱代入菲涅耳公式

$$r(\nu) = \frac{[n(\nu) - 1] + iK(\nu)}{[n(\nu) + 1] + iK(\nu)}, \quad (1)$$

$$r(\nu) = R^{1/2}(\nu) e^{-i\theta(\nu)}. \quad (2)$$

$$\therefore n(\nu) = \frac{1 - R(\nu)}{1 + R(\nu) - 2\sqrt{R(\nu) \cos \theta(\nu)}}, \quad (3)$$

$$K(\nu) = \left\{ \frac{4R(\nu) \sin^2 \theta(\nu)}{[1 + R(\nu) - 2\sqrt{R(\nu) \cos \theta(\nu)}]^2} \right\}^{1/2}. \quad (4)$$

$r(\nu)$  为反射光波与入射光波之比,  $R(\nu)$  为反射率。

计算出折射系数  $n(\nu)$  和消光系数  $K(\nu)$  的谱图。如图 3 所示。

根据洛仑茨振子的介电色散关系与复折射率的色散关系<sup>[5]</sup>

$$\hat{\epsilon}(\nu) = \epsilon_r(\nu) + i\epsilon_i(\nu) = n(\nu) + iK(\nu),$$

所以:

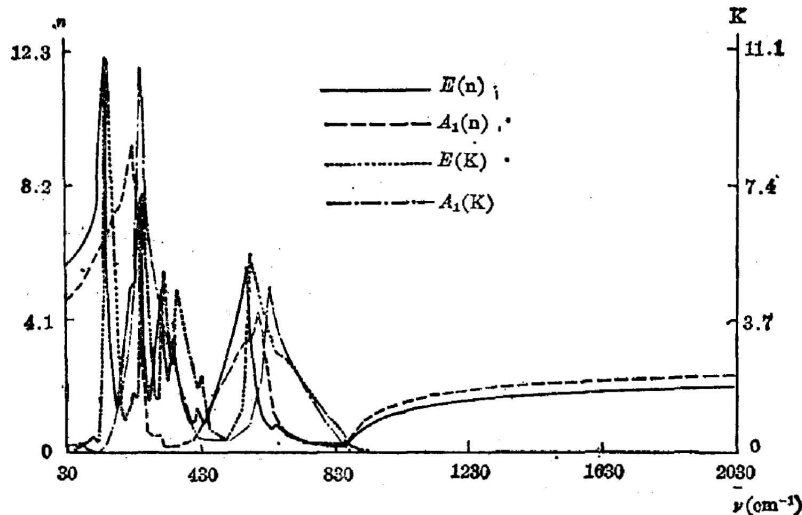


Fig. 3 Refractive index  $n(\nu)$  and extinction coefficient  $K(\nu)$  spectra of  $A_1$  and  $E$  modes

$$\varepsilon_r(\nu) = n^2(\nu) - K^2(\nu) = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)(\omega_T^2 - \omega^2)\omega_T^2}{(\omega_T^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2} \quad (5)$$

当  $\omega \rightarrow 0$  时,  $\varepsilon_r(\nu) \rightarrow \varepsilon_s$ ; 当  $\omega \rightarrow \infty$  时,  $\varepsilon_r(\nu) \rightarrow \varepsilon_\infty$ 。

$$\varepsilon_i(\nu) = 2n(\nu) \cdot K(\nu) = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\omega_T^2 \cdot \omega\gamma}{(\omega_T^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2} \quad (6)$$

当  $\omega = \omega_T$  时,  $\varepsilon_i(\nu)$  对应一峰值, 以及

$$(1/\hat{\varepsilon}(\nu))_i = \frac{2n(\nu)K(\nu)}{[n^2(\nu) + K^2(\nu)]^2} = \frac{(1/\varepsilon_\infty - 1/\varepsilon_s)(\varepsilon_s/\varepsilon_\infty)\omega_T^2\omega\gamma}{[(\varepsilon_s/\varepsilon_\infty)(\omega_T^2 - \omega^2)]^2 + \omega^2\gamma^2} \quad (7)$$

当  $\omega = \omega_L$  时, 由 LST 关系  $\omega_L^2 = \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_\infty} \omega_T^2$ ,  $(1/\hat{\varepsilon}(\nu))_i$  也对应一峰值。

上式中,  $\varepsilon_s$  为静态介电常数,  $\varepsilon_\infty$  为高频介电常数。  $\gamma$  为阻尼系数。

将计算出的  $n(\nu)$ 、 $K(\nu)$  值, 代入(5)、(6)、(7)三式, 可计算出介电常数实部  $\varepsilon_r(\nu)$ 、虚部  $\varepsilon_i(\nu)$  及复介电常数倒数的虚部等谱图, 如图 4、5、6 所示。

我们完全根据  $\varepsilon_i(\nu)$ 、 $(1/\hat{\varepsilon}(\nu))_i$  谱图的峰值位置及  $\varepsilon_r(\nu)$  的高频值。直接可得到 LiNbO<sub>3</sub> 的 9 个 E 模和 2 个 A<sub>1</sub> 模的横频率  $\omega_T$ 、纵频率  $\omega_L$  及高频介电常数  $\varepsilon_\infty$ 。

应用这些值, 根据多原子极性晶体中模强度公式, 计算出相应的振子强度  $s_{i\alpha}$ 。

$$s_{i\alpha} = (\omega_{\alpha L}^2 - \omega_{\alpha T}^2) \frac{\varepsilon_{\alpha\infty}}{\omega_{\alpha T}^2} \prod_{j=1}^{r_\alpha} \frac{(\omega_{\alpha Lj}^2 - \omega_{\alpha T}^2)}{(\omega_{\alpha Tj}^2 - \omega_{\alpha T}^2)}$$

式中  $\omega_{\alpha T}$  是离子平行  $\alpha$  主轴振动的固有频率, 也就是横向极性晶格振动频率。  $r_\alpha$  是振动方向在  $\alpha$  主轴方向的极性晶格振动的数目。其结果如下:

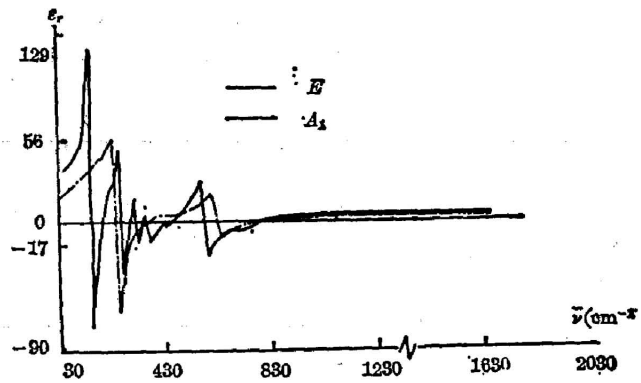


Fig. 4 Spectra of the real part of dielectric constants  $\varepsilon_r(\nu)$  of A<sub>1</sub> and E modes

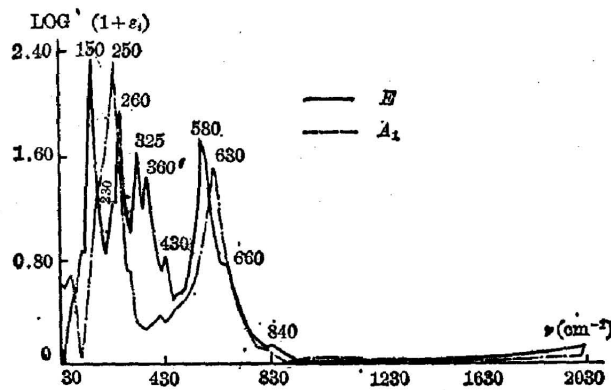


Fig. 5 Spectra of the imaginary part of dielectric constants  $\varepsilon_i(\nu)$  of A<sub>1</sub> and E modes

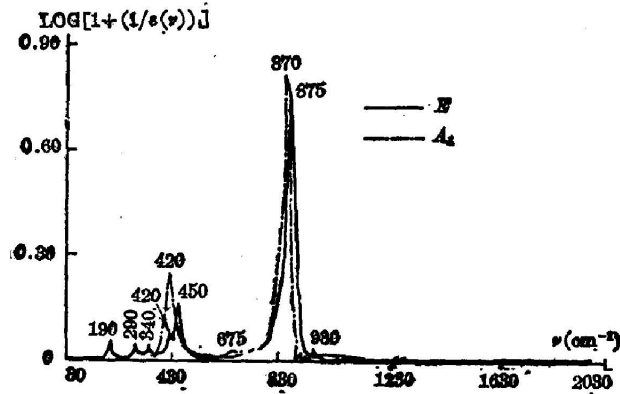


Fig. 6 Spectra of the imaginary part of reciprocal of complex dielectric constants ( $1/s(\nu)$ ) of  $A_1$  and  $E$  modes

Table 1 Optical phonon modes in  $\text{LiNbO}_3$

	$E$ mode $\epsilon_\infty=5.0$	$A_1$ mode $\epsilon_\infty=4.6$
$\omega_T(\text{cm}^{-1})$	150 230 260 325 360 430 580 660 840	250 275* 333* 630
$\omega_L(\text{cm}^{-1})$	190 235 290 340 420 450 875 675 980	420 277* 334* 870
$s_i$	25 0.54 6.5 3.1 3.8 0.27 6.8 0.66 0.22	19 1.07 0.08 2.7

### 三、讨 论

A. S. Barker<sup>[6]</sup>等人,通过实验和计算,得到7个 $E$ 模和一个附加的 $670\text{ cm}^{-1}$ 模。他们认为 $670\text{ cm}^{-1}$ 是一个组合模。Axe和O'Kane<sup>[7]</sup>发现,当晶体表面被腐蚀后, $670\text{ cm}^{-1}$ 模变强,认为它就是 $A_2$ 模由于形变而成为红外激活的了<sup>[8]</sup>。我们认为 $660\text{ cm}^{-1}$ 模就是 $E$ 模的一个基频。因为:

1. 纵 $\epsilon_i(\nu)$ 和 $(1/s(\nu))_i$ 的谱图中,清楚地看到,它的横频率 $\omega_T$ 和纵频率 $\omega_L$ 所对应的峰值位置,这和其它基频的规律是一样的。

2. 纵反射光谱中,我们看出,多数声子的反射带能足够地分开,各自保持单振子反射带的特征。 $660\text{ cm}^{-1}$ 模是一个弱振子,位于强振子 $580\text{ cm}^{-1}$ 模的短波处,并落在它的剩余反射单带内。由于它们相互耦合作用的结果,使强振子的反射带分裂而在 $670\text{ cm}^{-1}$ 处产生一个凹陷。这和我们过去做的石英晶体<sup>[9]</sup>的 $1160\text{ cm}^{-1}$ 基频是一样的。

3. 对于 $A_1$ 模,我们仅仅得到两个基频: $250\text{ cm}^{-1}$ ,  $630\text{ cm}^{-1}$ 。为了计算振子强度,我们引用了拉曼光谱的数据 $275^*$ ,  $333^*$ 。它们的振子强度仅仅是强振子 $250\text{ cm}^{-1}$ 的 $1/17$ 和 $1/231$ 。而且完全淹没在强振子的剩余反射带内。所以无法分辨出来。

### 参 考 文 献

- [1] H. R. Philipp, E. A. Taft; *Phys. Rev.*, 1964, **136**, No. 5A (Nov), 1445~1448.  
 [2] Elizabeth. Barta; *Infrared. Phys.*, 1977, **17**, No. 5 (Sep), 319~329.  
 [3] Franz C. Jahodaf; *Phys. Rev.*, 1957, **107**, No. 5 (Sep), 1261~1265.

- [4] C. Kittel; *Introduction to Solid State Physics*, (5th edition, John Wiley & Sons, Inc. 1976), Chapter 11.
- [5] 南开大学物理系固体教研室编;《晶格振动光谱》, 1984, Chapter 7.
- [6] A. S. Barker Jr.; R. Loudon, *Phys. Rev.*, 1967, **158**, No. 2 (Jun), 433~445.
- [7] J. D. Axe, D. F. Okane; *Appl. Phys. Lett.*, 1963, **9**, No. 1 (Jul), 58~60.
- [8] A. S. Barker Jr.; *Phys. Rev.*, 1963, **132**, No. 4 (Nov), 1474~1481.
- [9] 苏大昭等;《红外研究》, 1986, **5**, No. 3 (Jun), 175~180.

## Measurement of optical constants of LiNbO<sub>3</sub> in the range of abnormal dispersion

SU DAZHAO, XU JINMIN, ZHANG WANLIN AND ZHANG GUANGYIN

(Department of Physics Nankai University, Tianjin)

(Received 15 August 1986; revised 24 November 1986)

### Abstract

The reflection spectrum of LiNbO<sub>3</sub> in the range of 30 cm<sup>-1</sup>~2800 cm<sup>-1</sup> is measured by means of a 170SX Fourier transformation infrared spectrometer.

The optical constant spectra of LiNbO<sub>3</sub> in the same range are calculated rapidly and accurately using the integral form of the Kramers-Kronig relation.

The transversal frequencies  $\omega_T$ , longitudinal frequencies  $\omega_L$  and high-frequency dielectric constants  $\epsilon_\infty$  of  $A_1$  and  $E$  modes can be obtained directly from the spectra.

The oscillator strength is calculated and the mutual coupling between these oscillators are discussed. The 670cm<sup>-1</sup> mode is recognized as a fundamental frequency of the  $E$  mode.

**Key Words.** LiNbO<sub>3</sub>; difference spectrum.