无序材料中的电磁耦合场量子*理论及 SiO。和GeO。玻璃中光的瑞利散射损耗

孙 弘 方俊鑫

(上海交通大学物理系)

提 要

本文利用格林函数和图展开方法,提出了无序材料(如玻璃)中的电磁耦合场量子理论,并由此计算和 分析了 SiO₂ 和 GeO₂ 玻璃中光的瑞利散射及各种无序对散射贡献的大小,证实了虚温度近似中关于玻璃 的瑞利散射主要起源于原子密度无序涨落的假设。本文仔细地考虑了电磁耦合场量子色散对瑞利散射损 耗的影响。计算表明:对 SiO₂ 和 GeO₂ 玻璃,在最小损耗波长,由色散引起的偏离瑞利散射 λ⁻⁴ 规律的相 对误差分别为 20% 和 11%。

关键词:极化声子;玻璃;瑞利散射。

一、引 言

玻璃中光的瑞利散射是限制玻璃光纤最小损耗的主要固有损耗之一^[1]。文献中有很多 这方面的实验工作^[2~4]。在理论上通常采用的处理方法是所谓虚温度近似(fictive temperature approximation 或 FTA)^[5]。FTA 虽然数学上较简单,却包含着一些缺陷: 1. 虚 温度 T, 定义为玻璃溶液在冷却中开始由热力学平衡态变为非平衡态时的温度^[6]。 但玻璃 溶液的固化不是一个相变过程,而是渐变过程。所以无法精确定义在什么温度下溶液为平 衡或非平衡态,从而不能唯一地确定 T_f。不同文献在计算 SiO₂ 玻璃的瑞利散射时,采用的 T,差别很大^[1~5b, T]。2.由于在 T_f 附近(高于 1400 K),很多实验参数,如折射率、等温压 缩系数等不易获得,需利用室温下的实验值进行估计,这带有一定的任意性^[5b]。3.FTA 是宏观热力学统计理论,它掩盖了玻璃中光散射的微观机制。FTA 之所以有以上的缺点是 由于走了一条迂迴的途径:为了能利用平衡态统计理论来处理光散射,FTA 将室温下的玻 璃(非平衡系统)等同于处在 T_f 的热力学平衡态玻璃溶液,把固体中的光散射转化为溶液中 的光散射。这使整个问题的物理图像不甚清晰。为进一步探讨玻璃中光的瑞利散射,很有 必要建立一个具有清晰物理图像的微观理论。

我们曾指出¹⁸³,光纤或光波导中的导波光实质是光与介质材料中电磁性元激发(如激子和光学声子)耦合而成的新元激发——电磁耦合场量子(polariton)。实验也证实SiO₂ 玻璃中存在电磁耦合场量子¹⁸³。在本文中,我们利用格林函数和图展开方法^{100,113},给出无序材料(如玻璃)中的电磁耦合场量子理论,并由此计算SiO₂和GeO₂玻璃的瑞利散射。SiO₂和GeO₂玻璃是制作光纤的良好材料。与FTA不同,本文提出的理论直接以室温下的玻璃

收稿日期: 1986年12月10日;收到修改稿日期: 1987年4月17日

^{*} 文章中的电磁耦合场量子即是极化声子(polariton),我们认为前者译名更为合适。

为对象,这样完全回避了 ETA 中的迂迴途径及由之引起的缺点。玻璃的结构无序可造成原 子跃迁能量,振动频率和密度的无序。这些无序形成了玻璃中瑞利散射的微观机制。FTA 假设玻璃中瑞利散射只起源于玻璃溶液中原子密度的无序涨落并略去了材料色散。本文所 得公式使我们能够分析玻璃中各种无序对瑞利散射贡献的大小以验证 FTA 的假设并讨论 材料色散对瑞利散射的影响。

二、无序材料中的电磁耦合场量子

$$\begin{aligned} \mathcal{R}\bar{F}kl \, & \mathbb{H} = \mathbb{H}_{rad} + \mathcal{H}_{gh} + \mathcal{H}_{ee} + \mathcal{H}_{gh-rad} + \mathcal{H}_{ee-rad} + \Delta H = \mathcal{H}_{0} + \Delta \mathcal{H}, \\ \mathcal{H}_{rad} = \sum_{kj} \hbar \omega_{kc} t_{kj}^{k} c_{kj}, \quad \mathcal{H}_{gh} = \sum_{kj} \hbar \omega_{gh} a_{kj}^{k} a_{kj}, \\ \mathcal{H}_{ae} = \sum_{kj} \hbar \omega_{ee} b_{kj}^{k} b_{kj} + \sum_{kj} \mathcal{T}_{k} (b_{kj}^{+} b_{kj} + b_{kj} b_{kj}^{+} - b_{kj}^{+} b_{-kj}^{-} b_{kj} b_{-kj}), \\ \mathcal{H}_{gh-rad} = \sum_{kj} \mathcal{G}_{kj}^{en} (c_{kj} + c_{-kj}^{+}) (a_{kj}^{+} - a_{-kj}), \\ \mathcal{H}_{ee-rad} = \sum_{kj} \mathcal{G}_{kj}^{en} (c_{kj} + c_{-kj}^{+}) (b_{kj}^{+} - b_{-kj}), \\ \mathcal{H} = \sum_{kj} \sum_{k'j'} \Delta \hbar \omega_{kj,k'j'}^{en} a_{kj}^{+} a_{k'j'} + \sum_{kj} \sum_{k'j'} \Delta \hbar \omega_{kj,k'j'}^{en} b_{kj}^{+} b_{k'j'} - a_{-k'j'}) \\ & + \sum_{kj} \sum_{k'j'} \Delta \mathcal{G}_{kj,k'j'}^{en} (c_{kj} + c_{-kj}^{+}) (b_{k'j'}^{+} - b_{-k'j'}) c_{k'j'} + c_{kj} \sum_{k'j'} \Delta \mathcal{G}_{kj,k'j'}^{en} (c_{kj} + c_{-kj}^{+}) (b_{k'j'}^{+} - b_{-k'j'}) c_{k'j'} - b_{-k'j'}) c_{k'j'} \\ \end{aligned}$$

其中 c_{ij} , a_{kj} 和 b_{kj} 分 别产生一个频率为 ω_{k} , ω_{gk} 和 ω_{ee} , 波矢为 k, 偏振为 j 的光子、光学声 子和 Frenkel 激子; T_{k} 是不同电子——空穴对之间互作用的傅利叶变换; $G_{kj}^{s}(G_{kj}^{s})$ 是光子与 声子(激子)的耦合常数, 在电偶极矩近似下^{CSD} $G_{kj}^{CSD} = g_{gk}\sqrt{\hbar\omega_{k}}$ ($G_{kj}^{SD} = g_{ee}\sqrt{\hbar\omega_{k}}$), $g_{gh}(g_{ee})$ 为一 常数;

$$\Delta \hbar \omega_{kj,k'j'}^{q} = \sum_{\alpha} \hbar \omega^{q} e_{kj}^{\alpha} e_{k'j'}^{\alpha} \left(\frac{\Delta \omega^{q}}{\omega_{q}} \right)_{k-k'}; \quad \left(\frac{\Delta \omega^{q}}{\omega_{q}} \right)_{k-k'} = \sum_{l} \frac{e^{-i(k-k')\cdot l}}{N} \left(\frac{\Delta \omega_{l}^{q}}{\omega_{q}} \right),$$

$$\Delta G_{kj,k'j'}^{q} = \sum_{\alpha} G_{kj}^{q} e_{kj}^{\alpha} e_{k'j'}^{\alpha} \left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{k-k'}; \quad \left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{k-k'} = \sum_{l} \frac{e^{-i(k-k')\cdot l}}{N} \left(\frac{\Delta V_{l}}{V} \right)_{0},$$
(2)

 $\alpha = x_{1} y_{2} z_{1} q = ex, ph; N 为原胞总数; e_{bl}(j=1, 2) 是垂直于 k 的偏振矢量; <math>\omega_{q} n V \neq \omega_{l}$ 和 V_{1} 的平均值; $\Delta \omega^{q} = \omega_{l}^{q} - \omega_{q} n \Delta V = V_{l} - V$ 是由材料结构无序造成的格点 l 上原子跃迁 能量 $\hbar \omega_{l}^{p}$ 、原子振动频率 ω_{l}^{p} 和原子所占体积 V_{1} 的无序涨落。 H_{0} 是 H 对无序的 平均 部 分 (虚晶近似), ΔH 包含了材料的无序。

定义无序材料中电磁耦合场量子的产生算符:

$$D_{k\mu j}^{+} = \sum_{k'\mu' j'} \left(u_{k\mu j, k'\mu' j'} d_{k'\mu' j'}^{+} + V_{k\mu j, k'\mu' j'} d_{-k'\mu' j'} \right)_{\circ}$$
(3)
$$d_{k\mu j}^{+} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\alpha_{k\mu j} (c_{kj}^{+} + c_{-kj}) + \beta_{k\mu j} (c_{kj}^{+} - c_{-kj}) + \tau_{k\mu j} (b_{kj}^{+} + b_{-kj}) \right]_{\circ}$$

其中

$$\sum_{k \neq j} \left(b_{kj}^{+} - b_{-kj} \right) + \lambda_{k \neq j} \left(a_{kj}^{+} + a_{-kj} \right) + \gamma_{k \neq j} \left(a_{kj}^{+} - a_{-kj} \right) \right]_{o}$$
(4)

μ-1, 2, 3 表示电磁耦合场量子的上、中、下三支; 系数 u_{kµj,k'µ'} 和 α_{kµj} 等由以下本征值方 程确定*:

• 由于 aku 等系数的表达式过于冗长,在比从略。

$$[H, D_{k\mu j}^{+}] = \hbar \Omega_{k\mu j} D_{k\mu j}^{+}, \quad [H_{0}, d_{k\mu j}^{+}] = \hbar \omega_{k\mu j} d_{k\mu j_{0}}^{+}$$
(5)

将(1)、(3)、(4)式代入(5)式,通过一些运算,可得无序材料中电磁耦合场量子的本征频率 $Q_{k\mu}$ 由格林函数 $G = [(\hbar Q)^{3} - \hat{H} + i0^{+}]^{-1}$ 的极点给出,其中:

$$\begin{split} H - H_{0} + \hat{V}; \quad \hat{V} = \hat{V}_{1} + \hat{V}_{3}g_{0}\hat{V}_{3}, \\ \hat{H}_{k\mu j, k'\mu' j'}^{(0)} = \delta_{k,k}\delta_{\mu,\mu}\delta_{j,j'}(\hbar\omega_{k\mu j})^{2}; \quad g_{k\mu j,k'\mu' j'}^{(0)} = \delta_{k,k'}\delta_{\mu,\mu'}\delta_{j,j'}(\hbar\omega_{k\mu j})^{-2}, \\ \hat{V}_{k\mu j,k'\mu' j'}^{(1)} = \hbar\omega_{k\mu j}g_{k\mu j,k'\mu' j'} + \hbar\omega_{k'\mu' j'}Q_{k\mu j,k'\mu' j'}, \\ \hat{V}_{k\mu j,k'\mu' j'}^{(2)} = \hbar\omega_{k'\mu' j'}Q_{k\mu j,k'\mu' j'}; \quad \hat{V}_{k\mu j,k'\mu' j'}^{(3)} = \hbar\omega_{k\mu j}g_{k\mu j,k'\mu' j'}, \\ g_{k\mu j,k'\mu' j'} = 2\Delta\hbar\omega_{kj,k'j'}^{**}s_{k\mu j}^{**}s_{k'\mu' j'}^{**} + 2\Delta\hbar\omega_{kj,k'j'}^{**}r_{k\mu j}^{**}r_{k'\mu' j'}^{**}, \\ Q_{k\mu j,k'\mu' j'} = 2\Delta\hbar\omega_{kj,k'j'}^{**}r_{k\mu j}^{**}r_{k'\mu' j'}^{**} + 2\Delta\hbar\omega_{kj,k'j'}^{*h}\delta_{k\mu j}^{**}\delta_{k'\mu' j'}^{**}, \\ - 4\Delta G_{k'j',kj}^{**}k_{\mu j}\beta_{k'\mu' j'}^{**} - 4\Delta G_{-kj,-k'j'}^{**}\beta_{k\mu j}^{**}\delta_{k'\mu' j'}^{**}, \end{split}$$

引入辅助格林函数 $G_0 = [(\hbar \Omega)^3 - \hat{H}_0 + i0^+]^{-1}$ 和子矩阵

$$G_{k,k'} = \{G_{kw,k'w'}\}_{6\times 6} \quad w = (\mu, j) = 1, 2, \dots 6,$$
(7)

及 $G_{k,k'}^{(n)}$, $g_{k,k'}^{(n)}$, 和 $\hat{\mathcal{V}}_{k,k'}^{(i=1, 2, 3)}$ 等等。 $G_{k,k'}$ 对无序的平均值 $\langle G_{k,k'} \rangle$ 可用以下的图表示^{[10], [11]}:

$$\langle G_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'} \rangle = \delta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'} (--+\sigma(\boldsymbol{k}) - --+\sigma(\boldsymbol{k}) - --\sigma(\boldsymbol{k}) - --+\cdots)$$
(8)

$$\sigma k = \underline{\lambda} + \underline$$

其中 $\sigma(\mathbf{k})$ 表示自能子矩阵。 $\sigma(\mathbf{k})$ 的图必须满足以下规则:

i. 不包括能剪断一根——线而成为两个独立图形的图;

ii. 在任意两根-----线之间必须至少有一根----线;

ⅲ. 任一・点应能通过-----和 * 与至少另一・点相接。

由(8)式,无序材料中电磁耦合场量子本征频率 Qini 的久期方程为:

 $\det \| \delta_{\mu,\mu'} \delta_{j,j'} [(\hbar \Omega_{k\mu j})^2 - (\hbar \omega_{k\mu j})^2] - \sigma_{\mu j,\mu' j'}(k) \| = 0$ (µ=1, 2, 3; j=1, 2) (10) 自能子矩阵 $\sigma(k)$ 很难精确求得。 文献中有各种近似方法^{CUI}。 在光纤通讯中,光波长位于 激子和光学声子共振区之间,并远离共振区。(9)式中各项不会出现共振效应,而且每个·点 正比于 $\frac{\Delta \omega_e}{\omega_q} (q = ex, ph)$ 和 $\frac{\Delta V}{V}$, 对于一般的玻璃 $\left(\frac{\Delta \omega_e}{\omega_e}\right)^2$ 和 $\left(\frac{\Delta V}{V}\right)^2$ 对无序的平均值远小 于 1,所以可只保留 (9)式中最低阶的图,方程 (10) 的近似解为:

$$(\hbar \mathcal{Q}_{\boldsymbol{k} \mu j})^{2} - (\hbar \omega_{\boldsymbol{k} \mu j})^{2} + \sigma_{\mu j, \, \mu j}(\boldsymbol{k}) \,. \tag{11}$$

自能 σ_{μ1,μ1}(k)的虚部确定了无序材料中电磁耦合场量子的寿命,从而确定了损耗。将图式 (9)中各符号的表示式代入,并注意只保留(9)式中量低阶的图,可得频率为Q(ω_{μ1}<Q<ω₄₀) 的入射光的散射损耗为:

$$\begin{aligned} \alpha(\Omega) &= \alpha_0 \bigg\{ \left\langle \left(\frac{\Delta\hbar\omega_{eg}}{\hbar\omega_{eg}}\right)^2 \right\rangle \frac{(\omega_{ex}^2 + \Omega^2)^2}{(\omega_{ex}^2 - \Omega^2)^4} d_{ex}^4 + \left\langle \left(\frac{\Delta\omega_{ph}}{\omega_{ph}}\right)^2 \right\rangle \frac{(\Omega^2 + \omega_{ph}^2)^2}{(\Omega^2 - \omega_{ph}^2)^4} d_{ph}^4 \\ &+ \left\langle \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^2 \right\rangle \bigg[\frac{2d_{ex}^2}{\omega_{ex}^2 - \Omega^2} - \frac{2d_{ph}^2}{\Omega^2 - \omega_{ph}^2} \bigg]^2 \bigg\} \Omega^4 \\ &\times \bigg[1 + \frac{\omega_{ex}^2 d_{ex}^2}{(\omega_{ex}^2 - \Omega^2)^2} + \frac{\omega_{ph}^2 d_{nh}^2}{(\Omega^2 - \omega_{ph}^2)^2} \bigg] / \bigg[1 + \frac{\epsilon(\Omega) \Omega^2 d_{ex}^2}{(\omega_{ex}^2 - \Omega^2)^2} + \frac{\epsilon(\Omega) \Omega^2 d_{ph}^2}{(\Omega^2 - \omega_{ph}^2)^2} \bigg]^2 \\ &= \alpha_1(\Omega) + \alpha_2(\Omega) + \alpha_3(\Omega) (db/km)_0 \end{aligned}$$
(12)

其中 $\alpha_0 = \frac{4\pi^2}{3} (10 \log_{10} e) L_0 \frac{\epsilon^3(\Omega)}{c} \cdot \frac{V}{(2\pi c)^3}; \quad \epsilon(\Omega) = 1 + \frac{d_{co}^2}{\omega_{ex}^2 - \Omega^2} + \frac{d_{ph}^2}{\omega_{ph}^2 - \Omega^2},$ $L_0 = 1 \text{ km}; \ d_q^2 = \omega_q |2g_q|^2/\hbar, \ (g = ex, \ ph), \ \langle \cdots \rangle \rangle$ 表示对无序求平均。由于远离共振区,在 (12)式中已略去了激子的空间色散($T_k = 0$)。 α_1, α_2 分别是由原子跃迁能量和原子振动频率 的无序造成的散射损耗, α_3 则来源于原子密度的无序。

三、SiO₂和GeO₂玻璃中光的瑞利散射损耗

在 SiO₃ 玻璃中,由结构无序造成的原子跃迁能量的无序为^{[141}<($4\hbar\omega_{eb}$)²>=6.15×10⁻⁴ eV²。〈($4\omega_{ph}$)²〉可从[15]的计算求得:计算表明把 SiO₂ 玻璃中 Si—O—Si 的夹角 θ 相对于 平均值 张 开 或 合 拢 10°, ω_{ph} 将移 动 ±75 cm⁻¹。实验给出 θ 的 均 方根 为 15°^[10],所以 〈($4\omega_{ph}$)²〉=1.27×10⁴(cm⁻²)〈($\frac{\Delta V}{V}$)²〉的计算较为复杂。SiO₂ 玻璃中光学跃迁过程主要 是氧原子的 2P 态与硅原子的 3S 态之间的跃迁^[17,18]。因此可将一个氧原子和邻近两个 硅 原子上的两个 SP³ 杂交轨道看作是一个二能级"原子"。"原子"密度等于氧原子密度。SiO₂ 玻璃的微观结构如图 1(a)所示,其中 Si—O 键长 r 和 O—Si—O 键角 ρ 涨落很小^[16,18],四 个氧原子构成很好的四面体。玻璃的结构无序主要来自 Si—O—Si 键 角 θ 以及 α 角的涨 落。要精确定义一个 Si—O—Si 键在 SiO₂ 玻璃中所占体积 是 很 困 难 的,我们 假设一个 Si—O—Si 键所占体积 V 与一个键长为 R=2r sin $\frac{\theta}{2}$ 的 Si—Si 键在金刚石格子中所占体 积相同。图 1(b) 画出四个 Si—Si 键在金刚石格子中所占体积 \hat{V} , 而 $V = \frac{\hat{V}}{4}$ 。利用 以上 儇 设和表 1 中给出的实验参数求得 SiO₂和 GeO₂ 玻璃中 V 的平均值为 22.52和 24.15(Å³)与



(a) Microscopic structure of SiO₂ glass, where \bigcirc and \bullet represent orygen and silicon atoms respectively; (b) Volume occupied by four Si—Si bonds in diamond structure

文献[20]中给出的值 22.7 和 24.1(Å³)很接近。 α 的变化不影响 R, 只有 θ 的涨 落引 起 R 的变化。由图 1(b), $R_i(i=1, 2, \dots, 4)$ 的变化造成 V 的涨落为:

$$\frac{4V}{V} = \frac{1}{8} \sum_{i=1}^{4} \left[\left(\frac{R_i}{\bar{R}} \right)^8 - 1 \right]_{\bullet}$$
(13)

A,满足高斯型分布^[31]。

$$f(R_{i}) = \tau \exp\left[-(R_{i} - \bar{R})^{2}/2\sigma^{2}\right]; \quad \sigma = r\left(\sin\frac{\bar{\theta} + \Delta\theta}{2} - \sin\frac{\bar{\theta} - \Delta\theta}{2}\right)_{o}$$
(14)

其中 τ 是归一化常数, θ 和 $\Delta\theta \neq \theta$ 的平均值和均方根。表1列出了各参数的实验值及 V 和 $\left\langle \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^{a} \right\rangle$ 的计算值。

glass	Ø	40	r(Å)	φ	$\left< \left(\frac{\Delta \hbar \omega_{ea}}{\hbar \omega_{es}} \right)^2 \right>$	ħω _{es} (eV)	<i>ħd_{es}</i> (eV)	$\langle \left(\frac{\beta \omega_{ph}}{\omega_{ph}}\right)^2 \rangle$	ω _p , (cm ⁻¹)	$d_{ph} \ (ext{cm}^{-1})$	$\left\langle \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^2 \right\rangle$	₽(ų)
SiO ₂	144°a)	15°a)	1.62*)	109.5°	3.48×10~6	13.3°)	13.9°)	1.07×10-2	1065°)	10 6 5°)	9. 9 2×10 ⁻⁴	22.52
GeO ₂	136°t)	6.5°b)	1.74b)	109.5	5.08×10-6	11.0 ^d)	13.7ª)	1.72×10-3	857•)	8470)	3.51×10^{-4}	24.15
a):	[19], [21]; b)): [21]	; c):[20]; d): [56]	j; e):	[22]				<u></u>	

Table 1 Parameter value for SiO₂ and GeO₂ glasses

为计算各无序对光散射贡献的大小,引入比值

$$Q = \frac{\alpha_1(\Omega)}{\alpha_3(\Omega)} + \frac{\alpha_2(\Omega)}{\alpha_3(\Omega)},$$
 (15)

利用表1给出的参数和(12)式,图2中曲线(a)给出SiO₂玻璃中Q的计算曲线。显然在光 纤通讯波段($\lambda = 0.5 \sim 2.0 \mu m$),光散射以原子密度无序为主。 $\alpha(\Omega)$ 可改写为:

$$\alpha(\Omega) = \frac{A(\lambda)}{\lambda^4} \quad \left(\lambda = \frac{2\pi c}{\Omega}\right)_{\circ} \tag{16}$$

• 是真空光速, λ 是光波长。 $A(\lambda)$ 定义为瑞利散射系数。 图 3(a)给出了 $A(\lambda)$ 的计算曲线 (——)。以上的计算方法同样适用于 GeO₃ 玻璃。 对 GeO₂ 玻璃我们未能找到 $\left\langle \left(\frac{\Delta\hbar\omega_{es}}{\hbar\omega_{es}}\right)^{a} \right\rangle$ $\pi\left\langle \left(\frac{\Delta\omega_{r\lambda}}{\omega_{r\lambda}}\right)^{a} \right\rangle$ 的理论或实验值,但红外吸收实验表明^[227]: GeO₂ 和 SiO₂ 玻璃中主要的吸收峰 有相同的宽度,可假设 GeO₂ 和 SiO₃ 玻璃有相同的 $\langle (\Delta\hbar\omega_{es})^{a} \rangle$ 和 $\langle (\Delta\omega_{sh})^{a} \rangle$ 。 图 2 中的曲线 (b) 和图 3(b)给出 GeO₃ 玻璃中相应的计算结果,各参数已在表 1 中给出。



Fig. 2 Ratios of Rayleigh scatterings caused by disorders in transition energies and vibration frequencies of atoms to those caused by disorders in the densities of SiO_2 (a) and GeO_2 (b) glasses



Fig. 3 Rayleigh scattering coefficients A of SiO₂ (a) and GeO₂ (b) glasses, where —— the theory, $- \cdot - \cdot - \cdot \cdot$ the theory with dispersions neglected, $- - \cdot - \cdot \cdot$ FTA and - - - - the experiments^(2 23), which are determined from the Rayleigh scattering losses at $\lambda = 0.6328 \,\mu\text{m}$ by the λ^{-4} law.

四、讨 论

由以上计算,玻璃中瑞利散射的微观机制是玻璃结构无序造成的电磁耦合场量子之间的弹性散射。这可以从 $\langle G_{k,k} \rangle$ 的图展开式(8)看出:当无序为零时, $\sigma(\mathbf{k}) = 0, \langle G_{k,k} \rangle$ 等于(虚) 晶体中电磁耦合场量子 $d_{k,k}$ 的格林函数 $G_{k,k}^{(n)}$ 。 $d_{k,k}$ 的寿命无穷大,没有损耗。无序引起不同 $d_{k,k}^{+}$ 之间的弹性散射,使 Im $\sigma(\mathbf{k}) \neq 0$,发现损耗。

由图 2 的计算结果可知,在光纤通讯波段,原子跃迁能量和振动频率的无序对光散射的 贡献可以略去,瑞利散射主要来自原子密度无序。这证实了 FTA 中关于玻璃的瑞利散射起 源于高温时玻璃溶液中原子密度涨落的假设^[6]。当光波长趋于激子或光学声子 共振 区 时, 由原子跃迁能量或振动频率无序造成的散射将占主导地位。在共振区附近,σ(k)展开式(9) 中的高阶项不再可略,公式(12)需引入修正。

FTA 略去了材料色散对瑞利散射的影响,这相当于假设 $\frac{\omega_{A}}{Q}$, $\frac{d_{A}}{\omega_{a}}$ 为无穷小量。图 3 也给出了略去色散时瑞利散射系数 $A(\lambda)$ 的计算结果 (-----), 以及 FTA 的结果(-----)。 $A(\lambda)$ 为一常数,瑞利散射损耗α正比于 λ^{-4} 。当考虑材料色散时, $A(\lambda)$ 随波 长变化。 文献[24]报道了在 0.5682~0.7993 μm 之间 SiO₉ 玻璃中瑞利散射损耗随波长的 变化。在实验误差之内(约为 0.3dB/km),α正比于 λ^{-4} , $A(\lambda)$ 为一常数。利用图 3 的结果,由材料色散引起的α相对于 λ^{-4} 规律 的偏差在 0.5~0.8 μm 之间最大不超过 0.16 dB/km,与实验相一致。由图 3 可见,当波长较长时,材料色散对瑞利散射的影响较大。这 可解释如下:利用简单的微扰处理,文献[25]给出在远离共振区时瑞利散射截面为:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{e^4 \omega^4}{16\pi^2 \epsilon_0^2 \hbar^2 c^4} \left| \sum_{i} \left(\frac{\varepsilon_i \cdot D_{1i} \varepsilon \cdot D_{i1}}{\omega_i - \omega} + \frac{\varepsilon \cdot D_{1i} \varepsilon_i \cdot D_{i1}}{\omega_i + \omega} \right) \right|^2$$
(17)

这里 Q 是立体角(与前文中的定义不同), ω 是入射光频率, ω, 是吸收频率, 其他各量的定义 可参阅[25]。当所有 ω,≫ω 时:

$$\frac{d\sigma}{dQ} \propto \omega^4 \propto \lambda^{-4}$$
 (18)

例如空气中各种原子的主要吸收频率 ω ,位于紫外区,所以对可见光瑞利散射很好 地 構 足 λ^{-4} 规律。而玻璃中主要的光吸收过程为: 1)电子跃迁(激子等), ω_{ee} 位于紫外; 2)晶格振 动(光学声子), ω_{ge} 位于红外。对可见光频率 ω ,有 $\omega_{ee} > \omega > \omega_{ge}$,当光波长趋向于长波方向 时,(17)式中的绝对值项将明显依赖于波长 λ (或光频率 ω),瑞利散射将偏离 λ^{-4} 规律。

在测量玻璃的瑞利散射实验中,由于当光波长较长时($\lambda > 1 \mu$ m),瑞利散射很小(对SiO₃ 玻璃 $\alpha < 0.6$ dB/km),与实验误差(约为 0.8 dB/km)有相同的数量级,实验精度较差。所以一般采用波长 λ_{exp} 较短的激光器(如 $\lambda_{exp} = 0.6328 \mu$ m),测出 λ_{exp} 处的瑞利散射损耗,然后假 设 $A(\lambda)$ 为常数,按 λ^{-4} 规律定出 A,并将 A 延拓到其他波长。图 8 中的实验结果(-----)便 是按上述方法所得。这相当于略去了材料色散对瑞利散射的影响。对工作在最小损耗波长 λ_0 附近的光纤,由于 λ_0 已接近近红区(对 SiO₃ 玻璃 $\lambda_0 = 1.6 \mu$ m, GeO₃ 玻璃 $\lambda_0 = 2.0 \mu$ m^(5b)), 材料色散对瑞利散射的影响较大,上述实验方法所产生的瑞利散射损耗误差

$$\delta = \left| \frac{A(\lambda_{exp}) - A(\lambda_0)}{A(\lambda_0)} \right|$$

对 SiO₂ 和 GeO₃ 玻璃分别为 20% 和 11%。只在不计这一误差的情况下,材料色散对瑞利 散射的影响可略。

由瑞利散射损耗 $\alpha(\Omega)$ 的表示式 (12) 可见, 瑞利散射依赖于玻璃中各种参数, 而这些参数又依赖于玻璃的不同制备条件^[26]。例如加快淬火速率将减小原子密度 V^{-1} , 并增大原子密度无序 $\left\langle \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^{s} \right\rangle$, 从而增加瑞利散射。在文献中也发现对同一玻璃的不同实验, 给出不同的瑞利散射系数^[2~4]。这些误差一部分可能来自实验误差, 但也有一部分可能是由不同的玻璃制备条件造成的。

本文提出的理论稍加推广,可讨论在 SiO,玻璃中掺入 GeO。等杂质后,瑞利散射的变化。由于篇幅限制,我们将在另一篇文章中报道这一工作。

参考文献

- [1] D. A. Pinnow, T. C. Rich et al.; Appl. Phys. Lett., 1973, 22, No. 10 (May), 527.
- [2] J. Schroeder, R. Mohr et al.; J. Am. Ceram. Soc., 1973, 56, No. 10 (Oct), 510.
- [3] R. D. Maurer; Proc. IEEE, 1973, 61, No. 4 (Apr), 452.
- [4] T. C. Rich, D. A. Pinnow; Appl. Phys. Lett., 1972, 20, No. 7 (Apr), 264.
- [5] M. E. Lines; a) J. Appl. Phys., 1984, 55, No. 11 (Jun), 4052.
 - b) J. Appl. Phys., 1984, 55, No. 11 (Jun), 4058.
- [6] N. L. Laberge, V. V. Vasilescu et al.; J. Am. Ceram. Soc., 1973, 56, No. 10 (Oct), 506.
- [7] D. Marcuse; «Principles of Optical Fiber Measurements», (Academic Press, 1981), 52.
- [8] 孙 弘,庞乾骏等,《应用科学学报》,1985, 8, No. 1 (Jan), 20。
- [9] M. Behmer, R. Claus; Phys. Rev. B, 1984, 30, No. 8 (Oct), 4800.
- [10] B. K. Chakrabarti, G. K. Roy et al.; Phys. Stat. Sol. (b), 1980, 50, No. 1 (May), 297.
- [11] R. J. Elliott, J. A. Krumhansl et al.; Rev. Mod. Phys., 1974, 48, No. 3 (Jul), 465.
- [12] H. Haken; «Quantum Field Theory of Solids», (North-Holland Publishing Company, 1976), ch, 8.
- [13] B. Loudon; «The Quantum Theory of Light», (Clarendon Press Orford, 1983), 169.
- [14] 朱诗尧;《上海交通大学博士论文》, 1986, 76。
- [15] R. B. Laughlin, J. D. Joannopoulos; Phys. Bev. B, 1977, 16, No. 6 (Sep), 2942.
- [16] P. H. Gaskell, I. D. Tarrant; Phil. Mag. B, 1980, 42, No. 2 (Aug), 265.
- [17] P. M. Schneider, W. B. Fowler; Phys. Bev. Lett., 1976, 38, No. 8 (Feb), 425.
- [18] W. Y. Ching; Phys. Rev. B, 1982, 26, No. 12 (Dec), 6622.
- [19] W. Y. Ching; Phys. Bev. B, 1982, 26, No. 12 (Dec), 6610.

104	光	学	学	报	1	3	晏

- [20] S. H. Wemple; Appl. Opt., 1979, 18, No. 1 (Jan), 31.
- [21] D. E. Sayers, E. A. Stern; Phys. Rev. Lett., 1975, 35, No. 9 (Sep), 584.
- [22] F. L. Galeener, G. Lucovsky; Phys. Rev. Lett., 1976, 37, No. 22 (Nov), 1474.
- [23] R. Olshansky, G. W. Scherer; «Proc. Fifth European Optical Communications Conf.», (Amsterdam 1979), Paper 12.5.1.
- [34] 见参考文献[7], 224。
- [25] 见参考文献[13], 314。
- [26] C. R. Hammond, S. R. Norman; Opt. Quan. Electron., 1977, 9, No. 5 (Sep), 399.

Theory of polaritons in disordered materials and Rayleigh scatterings in SiO₂ and GeO₂ glasses

SUN HONG AND FENG JUNXIN (Department of Physics, Shanghai Jiotong University)

(Received 10 December 1986; revised 17 April 1987)

Abstract

A theory of polaritons in disordered materials is proposed with the help of Green functions and diagrammatic methods. Rayleigh scatterings in SiO₂ and GeO₂ glasses are calculated and the magnitudes of contributions to Rayleigh scattering from different disorder mechanisms are analysed based on the theory, which verifies the assumption in the fictive temperature approximation that Rayleigh scatterings in glasses come mainly from the density fluctuations in the glass solutions. The Rayleigh scatterings as well as the effects of polariton dispersions on the losses are calculated for SiO₂ and GeO₂ glasses. The results show that at the minimum loss wavelengths, the relative deviations of the Rayleigh scattering losses caused by the dis persion effects from the λ^{-4} law are 20% and 11% for SiO₂ and GeO₃ glasses respectively.

Key words: polaritons; glass; Rayleigh scattering.