

BaTiO₃ 晶体的各向异性散射

吕团孙 邱怡申 许立新

(福建师范大学 物理系, 福州 350007)

提 要

本文详细报道了对 BaTiO₃ 晶体各向异性散射的观察结果。首次观察到一种由环和双曲线组成的散射图。利用光折变四波相互作用理论较圆满地解释了所观察的现象和实验结果。

关键词: 各向异性散射, BaTiO₃ 晶体。

一、引 言

各向异性散射现象已在几种光折变晶体中观察到^[1~3]。一般认为, 这类散射是由于入射光与因晶体的缺陷而产生的随机散射(以下简称散射光)的相互作用而产生的。根据晶体的不同特性, 这种相互作用可以是光折变多波混频^[2, 3]或者是自激参量型的^[1]。

迄今据已有的文献报道, BaTiO₃ 晶体的各向异性散射只局限于一种由光折变三波相互作用产生的锥状散射^[2, 3](以下简称第一种散射)。本文所报道的对 BaTiO₃ 晶体各向异性散射的观察结果, 除了第一种散射外, 还发现另一种新的各向异性散射(以下简称第二种散射)。并利用光折变四波相互作用理论较圆满地解释了这一散射的形成、散射图形的几何形状, 散射环位置随入射光的入射角变化的规律, 并对散射光的光强分布作了初步的讨论。

二、实 验 现 象

观察晶体各向异性散射的实验装置示意图如图 1 所示。波长为 514.5 nm 的 Ar⁺ 激光束以入射角 θ'_p 照射 BaTiO₃ 晶体, 光振动方向平行于入射面。晶体尺寸为 $6 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$, c 轴位于入射面内。平行于晶体入射表面的屏 S_1 和 S_2 用于观察散射图。为了鉴别散射光的偏振特性, 将检偏器置于晶体与观察屏之间。

实验观察结果如下:

1. 泵浦光垂直入射时, 只出现一个形状近似于圆的散射环(即第一种散射), 散射光与入射光的偏振方向是正交的。散射环的外锥角约为 47.6° , 与文献[2]的观察结果很接近。

2. 泵浦光倾斜入射时, 第一种散射在屏上近似呈椭圆分布(见图 2(a) 照片中的散射环 I)。更有趣的是, 入射角在相当大的范围内, 观察到一种由一支双曲线和一圆环组成的新的各向异性散射(见图 2(a) 照片中的散射环 II₁ 和 II₂)。该散射光与入射光的偏振方向也是

正交的。

3. 如果将泵浦光改为寻常光, 则第一种散射不复存在, 而第二种散射仍然存在(如图 2(b)的照片所示), 散射光为非寻常光。

4. 各向异性散射在前向和后向同时发生。

5. 各向异性散射的光强分布是与 $x-z$ 面对称的。所有散射环在屏与包含 c 轴的 $x-z$ 面相交处都出现间断点, 这表明各向异性散射在 $x-z$ 平面是被禁止的。在间断点两侧有两个对称的极大位置。

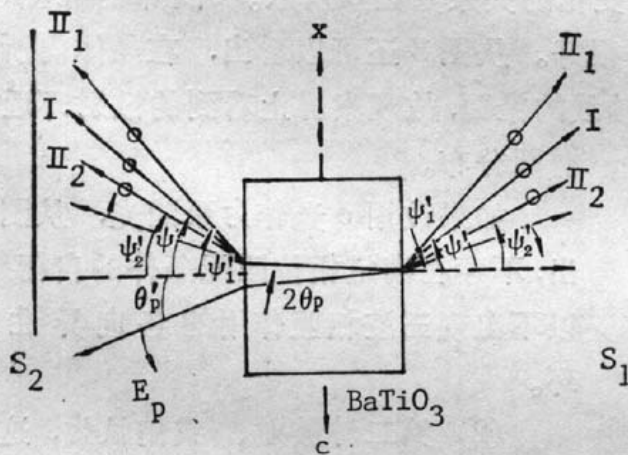
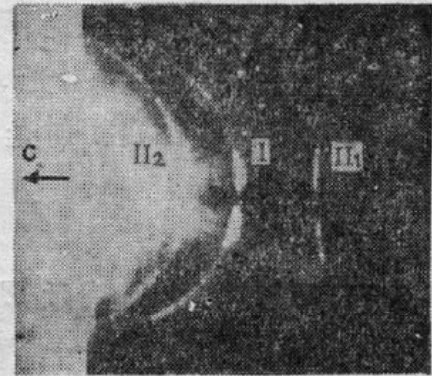
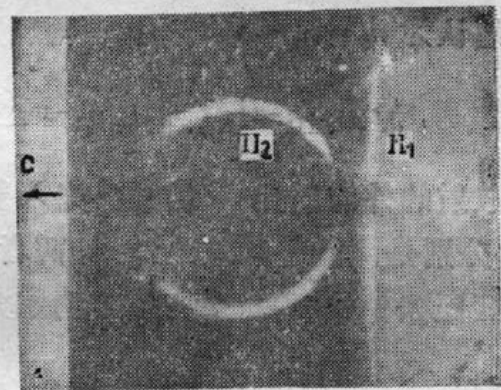


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup. ψ' , ψ'_1 and ψ'_2 are the external scattering angles of the ring-I, hyperbola-II₁ and ring-II₂ in $x-s$ plane, respectively.



(a)



(b)

Fig. 2 Photographs showing anisotropic scattering (a) Scattering pattern for an e -polarized incident beam with $\theta'_p=9^\circ$ and (b) for an o -polarized incident beam with $\theta'_p=24^\circ$. The ring with denotation I is caused by the first kind of scattering, and the hyperbola with denotation II₁ and ring with denotation II₂ by the second kind of scattering

三、理论解释

我们认为, 上述的各向异性散射是由光折变多波混频产生的。入射泵浦光(或泵浦光经晶体后表面反射的反射光)与其自身的光折变散射光相干涉, 在晶体中形成“噪声”光栅, 再将读出光(泵浦光或它的反射光)衍射到特定的方向, 从而产生各向异性散射。

通常光致散射必须同时满足两个条件: (1) 参与相互作用的诸光波应满足相位匹配; (2) 与光致散射有关的耦合常数有非零值。前者决定光致散射的方向, 后者决定光致散射的强度。下面我们就 BaTiO₃ 晶体的各向异性散射分别对这两个条件进行讨论, 并与所观察到的实验结果相比较。

1. 相位匹配条件

下面以前向散射为例分析两种各向异性散射的相位匹配条件。为分析简便,我们仅考虑在 $x-z$ 平面的耦合过程,虽然在这平面上的各向异性散射是被禁止的,但这并不影响对相位匹配条件的分析。

(1) 第一种散射。该种散射实际上是一种各向异性自衍射过程^[2],即波矢为 k_p 的泵浦光 E_p 与波矢为 k_s 的光折变散射光 E_s 在晶体中干涉产生“噪声”光栅,然后再由 E_p 读出,得到波矢为 k_d 的各向异性自衍射光 E_d ,见波矢图图 3。由图 3 可以得到第一种散射的相位匹配条件

$$2k_p = k_s + k_d, \quad (1)$$

若以 θ_p 表示 E_p 的折射角, θ_d 表示 E_d 与入射法线的夹角,则由式(1)可得

$$\theta_d - \theta_p = \sin^{-1}[(10n_e^2 n_o^2 - 9n_e^4 - n_o^4)^{1/2} / 4n_e n_o], \quad (2)$$

由于 BaTiO₃ 晶体的折射率很大($n_o = 2.488$, $n_e = 2.424$),故 θ_p 与 θ_d 都不太大,在推导上式时近似地认为 $n_p = n_s = n_e$ (下同)。再利用折射定律可得到在 $x-z$ 面的外散射角为

$$\psi' = \sin^{-1} \left\{ n_o \sin \left[\sin^{-1} \frac{(10n_e^2 n_o^2 - 9n_e^4 - n_o^4)^{1/2}}{4n_e n_o} + \sin^{-1}(n_e^{-1} \sin \theta_p') \right] \right\}. \quad (3)$$

第一种散射的外散射角 ψ' 随泵浦光入射角 θ_p' 变化的关系如图 5 所示。图中的标记(x)和曲线 ψ' 分别是测量值和理论结果,两者符合得很好。从图 3 还可以看出,在晶体内所有满足相位匹配条件式(2)的 k_d 近似组成以 k_p 为轴线的锥面,故观察屏上看到的散射环近似呈

椭圆分布。

如果改用 o 光作为泵浦光,从图 3 看出,不存在满足相位匹配条件的自衍射,所以不出现三波相互作用的各向异性散射环。

(2) 第二种散射。我们认为,这种散射是由泵浦波、泵浦波经晶体后表面反射的反射波及它们的光折变散射波的四波相互作用产生的。具体地说,又存在两种相互作用过程。第一种过程是波矢为 k_r 的反射光 E_r 与波矢为 k_{s1} 的自身的光折变散射光 E_{s1} 干涉形成光栅(光栅矢量 K_1),经

由波矢为 k_p 的泵浦光 E_p 读出得到波矢为 k_{d1} 的各向异性衍射光 E_{d1} 。借助波矢图图 4(a) 可得到这一过程的相位匹配条件是

$$k_{d1} - k_p = k_r - k_{s1}. \quad (4)$$

由式(4)可以导出(见附录 A),外散射角

$$\psi'_1 = \sin^{-1} \left(\frac{4 \sin^2 \theta'_p + n_o^2 - n_e^2}{4 \sin \theta'_p} \right). \quad (5)$$

从图 4(a) 很容易看出满足式(4)的衍射光线 k_{d1} 在晶体内构成一个以 z 轴为轴线、顶角为 $(180^\circ - 2\psi_1)$ 的散射锥的一部分。因此观察屏 S 截得的散射图样是一支双曲线。

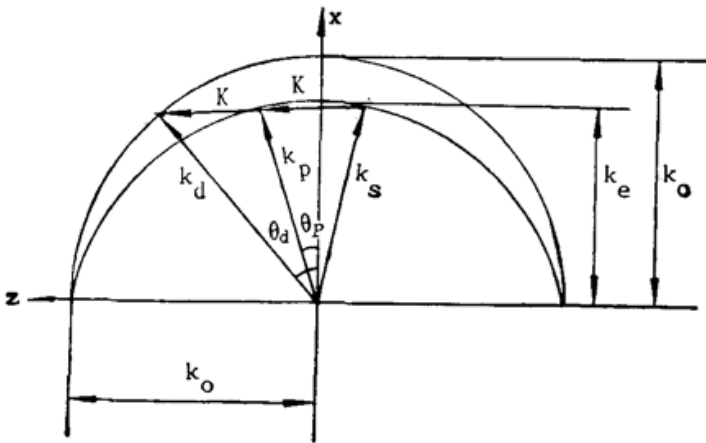


Fig. 3 Wave-vector diagram illustrating how the first kind of scattering is produced via photorefractive three-wave interaction.

另一种过程是反射光 E_r 与波矢为 k_{s2} 的自身的光折变散射光 E_{s2} 干涉形成的光栅 (光栅矢量 K_2), 再经泵浦光 E_p 读出产生的波矢为 k_{d2} 的各向异性衍射波 E_{d2} 。由图 4(a) 可知, 该过程的相位匹配条件是

$$k_{s2} - k_r = k_{d2} - k_p, \tag{6}$$

根据这一矢量关系容易求得(见附录 B)外散射角为

$$\psi'_2 = \sin^{-1} \left\{ n_o \left[1 - \frac{(3n_e^2 + n_o^2 - 4 \sin^2 \theta'_p)^2}{16n_o^2 (n_e^2 - \sin^2 \theta'_p)} \right]^{\frac{1}{2}} \right\}. \tag{7}$$

从图 4(a) 不难看出, 满足相位匹配条件式(6)的衍射光线 k_{d2} 在晶体内构成一个以 x 轴为轴线、顶角为 $2\psi_2$ 的散射锥, 因此屏上观察到的各向异性散射图样是一圆环。

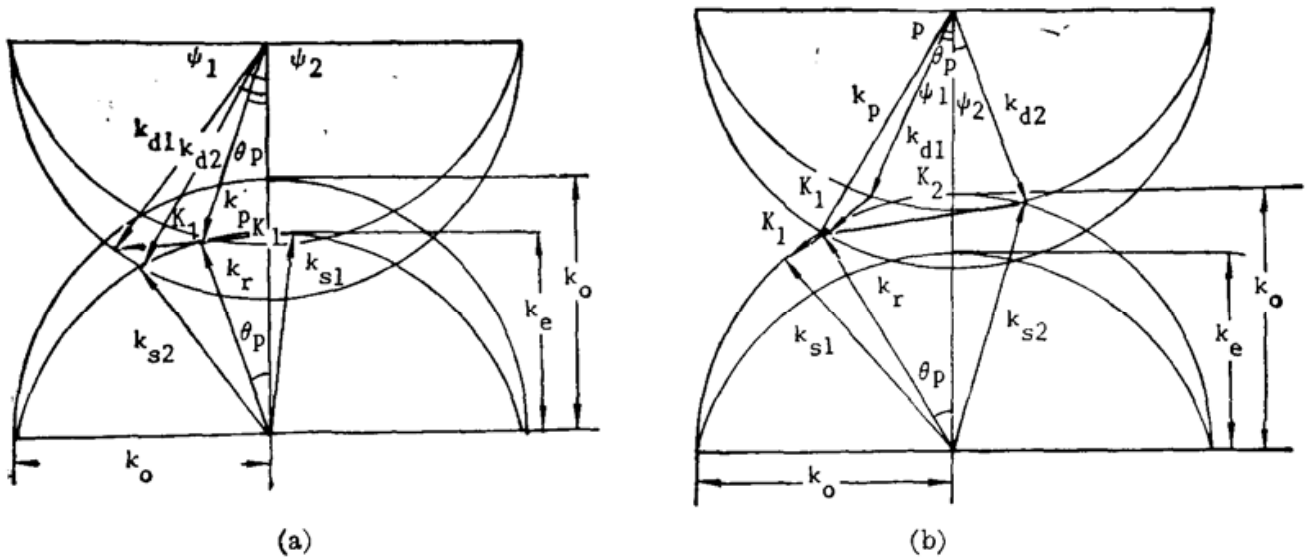


Fig. 4 Wave-vector diagrams illustrating how the second ind of scattering is produced via photorefractive four-wave interaction. (a) for incident beam with e-polarization and (b) for incident beam with o-polarization

图 5 中的标记 (○) 和 (●) 分别是 ψ'_1 和 ψ'_2 随 θ'_p 变化的测量值。实线是根据式 (5) 和式 (7) 绘制的相应的理论曲线。它表明理论分析与实验结果是相一致的。

如果用 o 光作为泵浦光, 可以借协图 4(b) 的波矢图进行类似的分析, 结果只须在式 (5) 和式 (7) 中互换 n_o 和 n_e 的位置便可得到对应的散射角公式。从图 4(b) 亦不难看出, 理论上分析得出的各向异性散射环的形状与图 2(b) 的实验结果也是一致的。

2. 各向异性散射的耦合常数及光强分布

仍然假定泵浦光的波矢为 k_p , 振幅为 E_p , 强度为 I_p ; 光折变散射光的波矢为 k_s , 振幅为 E_s , 强度为 I_s ($s=1, 2, 3, \dots$)。略去散射光之间的耦合, 并采用慢变振幅近似, 则泵浦光与散射光的耦合方程是^[4]:

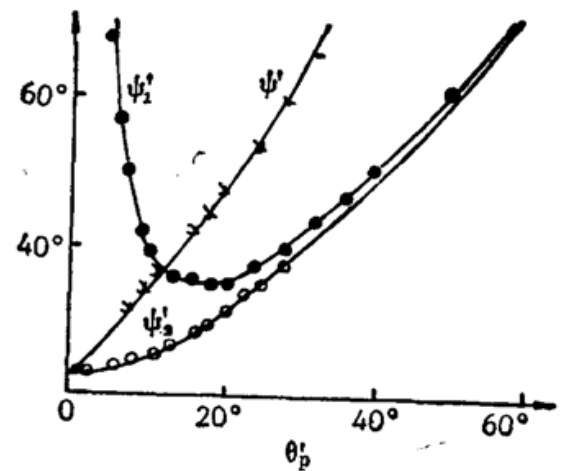


Fig. 5 The external scattering angles ψ' , ψ'_1 and ψ'_2 as a function of the incident angle θ'_p . (x), (●), (○) are the measured data. The solid lines are the calculated dependences obtained from Eq. (3), (5), and (7), respectively

$$\frac{dE_s}{dx} = -i\gamma_{sp} \frac{E_s E_p^*}{I_0}, \quad (8-a)$$

$$\frac{dE_p}{dx} = -i\gamma_{sp}^* \frac{E_s^* E_p}{I_0}, \quad (8-b)$$

式中 $I_0 = I_p + \sum_{s \neq p} I_s$, 耦合常数

$$\gamma_{sp} = \frac{1}{2} \cdot \frac{2\pi}{\lambda n_p} (\hat{e}_s \cdot \delta \hat{x} \cdot \hat{e}_p), \quad (9)$$

其中 \hat{e}_p 和 \hat{e}_s 分别是泵浦光和散射光的单位偏振矢量。 λ 是光波波长, n_p 是晶体对泵浦光的折射率。极化率张量变化

$$\delta \hat{x} = -i \frac{E_T m}{1 + E_T/E_q} [\hat{\epsilon}_\omega \cdot (\vec{K} \cdot \hat{K}) \cdot \hat{\epsilon}_\omega]. \quad (10)$$

式中 E_T 和 E_q 分别是等效扩散场和最大空间电荷场; \hat{K} 是单位“噪声”光栅矢量, 在图 6 所示的坐标系中可以一般地表示为

$$\hat{K} = \cos \theta \hat{e}_x + \sin \theta \sin \varphi \hat{e}_y + \sin \theta \cos \varphi \hat{e}_z. \quad (11)$$

在考虑到 $I_s \ll I_p$ 的情况下, 光栅调制度的大小为

$$|m| = \frac{2(I_s/I_p)^{\frac{1}{2}}}{1 + I_s/I_p} \approx 2 \left(\frac{I_s}{I_p} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (12)$$

$\hat{\epsilon}_\omega$ 是光频介电张量; \vec{R} 是线性电光张量, 其非零张量元是

$$\left. \begin{aligned} R_{xxx} = R_{yyy} = r_{13}, \\ R_{zzz} = r_{33}, \\ R_{xxz} = R_{zzx} = R_{yzy} = R_{zyy} = r_{42} \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

将式(11)和式(13)代入式(10)得

$$\delta \hat{x} = -i \frac{E_T m}{1 + E_T/E_q} \begin{pmatrix} n_o^4 \gamma_{13} \sin \theta \cos \varphi & 0 & n_o^2 n_e^2 \gamma_{42} \cos \theta \\ 0 & n_o^4 r_{13} \sin \theta \cos \varphi & n_o^2 n_e^2 r_{42} \sin \theta \sin \varphi \\ n_o^2 n_e^2 r_{42} \cos \theta & n_o^2 n_e^2 r_{42} \sin \theta \sin \varphi & n_e^4 r_{33} \sin \theta \cos \varphi \end{pmatrix} \quad (14)$$

必须指出, 式(8)不仅适用于光栅记录过程的耦合, 同样也适用于读出光与衍射光通过光栅的耦合过程。后者只须用读出光 E_R 和衍射光 E_d 分别替代式中的 E_p 和 E_s 即可。

下面首先讨论光栅矢量 \hat{K} 位于 $x-z$ 平面内的情况, 这时 $\varphi=0$, 由式(14)有 $\delta x_{12} = \delta x_{21} = \delta x_{23} = \delta x_{32} = 0$ 。根据式(9), 非寻常光($x-z$ 偏振)耦合为寻常光(y 偏振)显然是不可能的, 反之亦然。因为这时耦合常数 $\gamma_{dR} = 0$ 。由此可见, 在各种取向的“噪声”光栅中, 位于 $x-z$ 平面内的那些光栅是不能产生各向异性散射的, 因此在屏与 $x-z$ 平面相交处, 各散射环均出现强度为零的间断点。

当 \vec{K} 不位于 $x-z$ 平面内, 即 $\varphi \neq 0$ 时, $\delta x_{23} = \delta x_{32} \neq 0$, 耦合常数 γ_{dR} 有非零值, 非寻常光与寻常光可以相互耦合而产生各向异性散射。

至于计算各向异性散射的光强分布, 实质上是求“噪声”光栅的衍射效率。由于两种散射的光强分布具有类似的特点, 因此可以采用相似的方法进行讨论(这点从波矢图上也可清楚地看出)。为简便起见, 我们以第一种散射(泵浦光垂直入射)为例来分析各向异性散射光

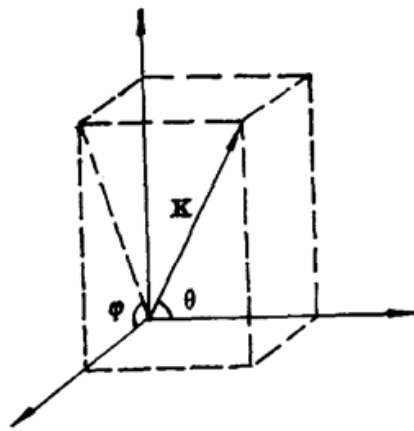


Fig. 6 The three-dimensional diagram of a certain noisy grating vectors \vec{K} . The θ and φ are measured in crystal.

强分布的特点。

根据式(8)可以求得“噪声”光栅的衍射效率($\eta \ll 1$)为^[6]:

$$\eta \propto (\Delta n)^2 \propto |\hat{e}_d \cdot \delta \vec{x} \cdot \hat{e}_p|^2. \quad (15)$$

式中 Δn 是在干涉场作用下晶体折射率的变化; $\hat{e}_p (= \hat{e}_z)$ 和 $\hat{e}_d (= \hat{e}_y)$ 分别是读出光和衍射光的单位偏振矢量。将式(12)和式(14)代入式(15)得

$$\eta \propto \left(\frac{E_T}{1 + E_T/E_q} \right)^2 \cdot \sin^2 \varphi \cdot I_{s0} \quad (16)$$

将式(9)、(10)代入式(8)求得在 $I_p \gg I_s$ 情况下的光折变散射光分布

$$I_s(L) = I_s(0) e^{\Gamma L}. \quad (17)$$

式中 ΓL 为散射光的增益长度乘积, 其中

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\lambda n_e} \cdot \frac{E_T}{1 + E_T/E_q} \{ \hat{e}_s \cdot [\vec{\varepsilon}_\omega \cdot (\vec{R} \cdot \hat{K}) \cdot \vec{\varepsilon}_\omega] \cdot \hat{e}_p \}. \quad (18)$$

参照图 6, 考虑到泵浦光垂直入射的情况, 有

$$\hat{e}_s = - \frac{\text{tg } 2\theta \cos \varphi}{(1 + \text{tg}^2 2\theta \cos^2 \varphi)^{1/2}} \hat{e}_z + \frac{1}{(1 + \text{tg}^2 2\theta \cos^2 \varphi)^{1/2}} \hat{e}_{z0} \quad (19)$$

然后由式(14)、(16)、(17)、(18)和(19)求得

$$\eta \propto \frac{\sin^2 \varphi}{(1 + E_T/E_q)^2} \cdot \exp \left[\frac{2\pi}{\lambda} \frac{E_T L}{1 + E_T/E_q} \cdot \frac{(n_e^3 r_{33} \sin \theta - n_o^2 n_e r_{42} \cos \theta \text{tg } 2\theta) \cos \varphi}{(1 + \text{tg}^2 2\theta \cos^2 \varphi)^{1/2}} \right], \quad (20)$$

式中: $K = \frac{4\pi}{\lambda} n_e \cos \theta$; $E_T = \frac{K_B T K}{e}$;

$$E_q \approx \frac{e N_A}{\varepsilon_0 K (\varepsilon_{33} \cos^2 \varphi + \varepsilon_{11} \sin^2 \varphi)}$$

根据文献[5], 取陷阱密度 $N_A = 2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$; 电光系数 $r_{33} = 23 \times 10^{-12} \text{ m/V}$; $r_{42} = 820 \times 10^{-12} \text{ m/V}$; 介电常数 $\varepsilon_{33} = 106$; $\varepsilon_{11} = 4300$ 。并从式(2)得散射内锥角为 9.13° , 因此求得 $\theta = 85.3^\circ$ 。将这些数据代入式(20)得到光栅的衍射效率 η 、从而是第一种散射的相对光强分布 I_d 与 φ 的关系如图 7 所示。从图中可以看出, 当 $\varphi = 0$ 时, $I_d = 0$; 随着 φ 增加, I_d 迅速增大; 大约在 $\varphi = 12^\circ$ 时, 各向异性散射的光强度有极大值; 它对称地出现在散射环间断点的两侧。当 φ 继续增大, I_d 很快地衰减。这个变化规律, 与实验观察是一致的。虽然, 上面我们讨论的是第一种散射, 但不难发现, 所得到的结果同样地反映了第二种散射光强分布的基本特征。

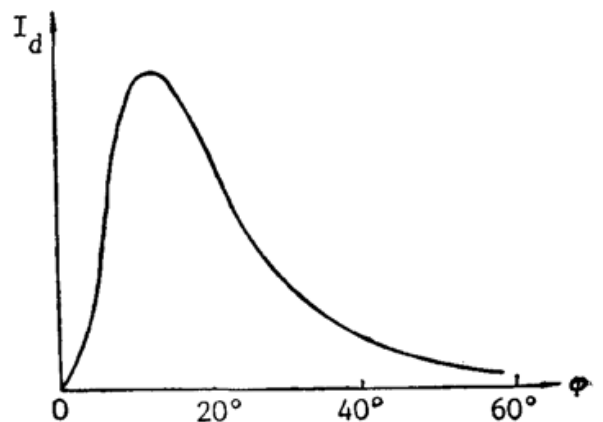


Fig. 7 The first kind of anisotropic-scattered intensity I_d as a function of the directional angle φ . The plot is obtained from Eq. (20).

四、结 论

本文已详细讨论了 BaTiO_3 晶体的各向异性散射, 尤其对一种新观察到的各向异性散射现象作较为深入的研究。实验结果和理论分析都表明, 这种新观察到的散射是由光折变四波相互作用产生的。

各向异性散射的研究对于探讨光折变晶体的光致散射机理及非线性光波混频过程都具有重要意义。

本文系福建省自然科学基金资助的项目。

参 考 文 献

- [1] S. G. Odoulov *et al.*; *Opt. Lett.*, 1985, **10**, No. 1 (Oct), 31.
- [2] D. A. Temple *et al.*; *J. O. S. A. (B)*, 1986, **3**, No. 2 (Feb), 337.
- [3] R. A. Rupp *et al.*; *Appl. Phys. B*, 1986, **39**, No. 2 (Feb), 223.
- [4] N. Kukhtarev *et al.*; *Opt. Comm.*, 1977, **23**, No. 3 (Dec), 333.
- [5] J. Feinberg *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1980, **51**, No. 3 (Mar), 1297.
- [6] H. Kogelnik; *B. S. T. J.*, 1969, **48**, No. 9 (Nov), 2909.

Anisotropic scattering in BaTiO_3 crystal

LU TUANSUN, QIU YISHEN AND XU LIXIN

(Department of Physics, Fujian Teachers University, Fuzhou 350007)

(Received 3 November 1989; revised 13 July 1990)

Abstract

The experimental results of anisotropic scattering in BaTiO_3 crystal are reported. A new kind of anisotropic scattering with ring-and-hyperbola structure is first observed to our knowledge. The analysis presented herein is based on the photorefractive four-wave interaction theory. The experimental results agree well with the theoretical analysis.

Key words: anisotropic scattering, BaTiO_3 crystal.