

## 不透明材料中的激光布里渊散射

张 鹏 翔

(中国科学院物理研究所)

### 一、引 言

布里渊散射是法国物理学家布里渊(L. Brillouin)于1914年、1922年间提出的声波对光的散射现象<sup>[1,2]</sup>。他计算了声波引起的介质密度涨落造成的光的散射谱,发现除了中心的瑞利(Rayleigh)线以外,还有对称分布在瑞利线两边的有频移的散射线,后来人们称之为布里渊双线。起初他的教授认为他的计算可能有错误,因为当时光散射的概念中只有无频移的瑞利散射,如果有了新的光频成分则被认为是荧光。但是布里渊坚持自己的看法,并指出:声波造成的介质疏密变化,使介质成为一块光栅,如果不动,它会象布喇格反射那样和光相互作用。但是声波在传播,光栅在运动,多普勒效应使反射光中出现了有频移的分量。布里渊的计算开始了光散射的新时期:研究光在物质中的散射时,不仅要考虑散射光的强度,还要研究散射光的频率变化。这个频率变化量,就是声波的频率,相对入射光频来说,它是很小的。因此布里渊散射实验从一开始就是很困难的。直到1930年, Gross 才在液体中成功地测到布里渊双线<sup>[3]</sup>。与此差不多同时,发现了喇曼(Raman)散射效应<sup>[4]</sup>。由于喇曼散射能提供分子、固体、液体中原子间相结合的信息,受到人们的重视, Raman 也因此获得了诺贝尔奖。但由于实验上的困难和发掘的信息有限,布里渊散射没有得到充分的发展。激光器的出现给光散射带来了革命性的变化,它的单色性、很好的方向性和高强度都使传统光源大为逊色。布里渊散射也出现了转机。尤其是固体中元激发概

念的发展和散射理论的深入,深刻地揭示了光散射这一手段的潜力。喇曼散射对研究固体中光频支声子、光频支(交换支)自旋波和其他能量较大的元激发( $10-4000\text{cm}^{-1}$ )是有力的工具,而布里渊散射则对检测固体中声频支声子、声频支自旋波和能量较小的元激发( $0.01-1.0\text{cm}^{-1}$ )是有力的工具。二者相辅相成缺一不可。半导体、铁氧体、金属等材料多数是不透明的。光透入很浅或吸收很大使散射光信号很微弱,这给光散射研究带来了许多困难。特别是布里渊散射,频移很小(常为GHz量级),瑞利线往往掩盖了这些频移小,强度弱的散射信号。然而坚持不懈的努力终于找到了解决这些难题的途径。多通法布里-珀罗干涉仪的出现使布里渊散射成为更为广泛的研究领域。对比度成数量级地提高使不透明材料,包括金属材料都在研究对象之列。新的实验结果不断发表,也给理论提出了新的课题。这里我们首先介绍布里渊散射谱仪的进展,然后概述最近对金属材料、磁性材料的实验结果。

### 二、多通法布里-珀罗干涉仪和布里渊谱仪

目前几乎所有布里渊散射都是借助法布里-珀罗(Fabry-Perot)干涉仪完成的。所谓布里渊谱仪实际上是激光器、样品及环境控制设备、法布里-珀罗干涉仪和检测记录系统组成(见图1)。而法布里-珀罗干涉仪(简记为FP)是核心部分。由于是基于多光束干涉的原理,FP的分辨率高、透过率高,特别适于 $0.01-1.0\text{cm}^{-1}$ 的能量范围频移的检测。

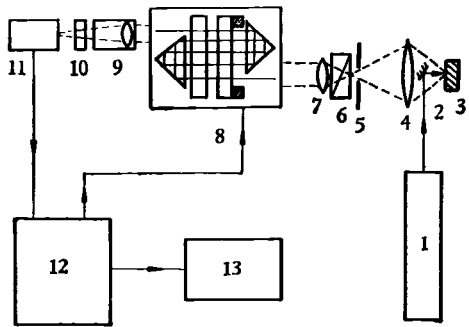


图1 布里渊散射谱仪

1.激光器; 2.小镜; 3.样品; 4.聚光透镜;  
5.针孔; 6.检偏器; 7.透镜; 8.法布里-珀  
罗干涉仪; 9.准直器; 10.干涉滤光片; 11.光  
电信增管; 12.控制和数据收集系统; 13.记录仪

通常FP由一对平行放置、非常平坦的镜片组成。依据多光束干涉原理:

$$m\lambda = 2nd \cos\theta, \quad (1)$$

$m$ 是干涉峰级数,  $\lambda$ 是光波长,  $n$ 是镜片间介质的折射率,  $d$ 是两镜片间距,  $\theta$ 是入射光和镜面法向间夹角(见图2)。对于我们要讨论的情况,空气介质,垂直入射,(1)式化简为  $m\lambda = 2d$ 。(1)式表明扫描镜片间距  $d$  可使一定波长的光依次通过FP。如果入射光是单色的,则有如

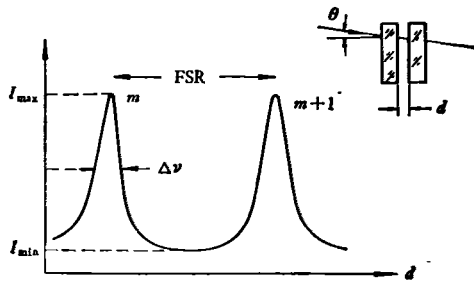


图2 通过FP的单色光光强与d的关系

图2所示的光谱分布。几个基本参数定义如下:两个相邻干涉级之间的区域称为自由光谱区(记为FSR),其大小由镜片间距决定,  $FSR = 1/2d$  ( $d$ 以cm为单位,则FSR以波数为单位);最大透过与最小透过之比叫对比度(Contrast)记为  $C$ ,  $C = \frac{I_{max}}{I_{min}}$ ;自由光谱区与瑞利峰半高宽度之比叫锐度(Finesse),记为  $F$ ,  $F = \frac{FSR}{\Delta\nu}$ 。

显然一个好的光谱仪要求对比度、锐度越高越好,这样频移小而弱的信号容易看出;自由光谱区越大越好,这样能测量能量范围更宽的元激发。为了从不透明材料、金属材料上得到散射谱,希望谱仪的对比度能达到  $10^7-10^{10}$ ,而一般的单通FP只能达到  $10^3$ 。为了提高对比度可以把几个FP串联起来,像串联几个谐振回路选频一样,串联FP的对比度是每个FP对比度的乘积。但是实验上使几个FP间距相等、同步扫描是非常困难的。一般FP的平面度为  $\lambda/100$  或  $\lambda/200$ ,以  $5000 \text{ \AA}$  波长估计,平面度为  $50-25 \text{ \AA}$ 。以这样的精度保持一对镜片平行并有确定间距已是非常困难的事,若几对镜片同时保持平行和相等的确定间距,加上要求同步扫描和长时间累积信号的稳定,简直是不可能实现的。J. R. Sandercock 解决了这一困难<sup>[5]</sup>。他用一对较大的镜片,让光束多次通过,代替串联几个FP,即实现了高对比度,又免去了上述同步扫描等困难。他还采用了电子学反馈系统控制推动镜片的压电陶瓷,使镜片保持稳定的平行扫描,锐度最佳。多次通过的实现是靠放在FP两边的角隅棱镜(corner cube)也叫折回反射镜(retroreflector)完成的。实验上可做二通、三通、四通、五通等并不甚困难。一般三通对比度可达  $10^7$ ,五通达  $10^{11}$ ,而锐度、透过率却没有显著变化。

多通FP的出现立即在实验中发挥了效益。

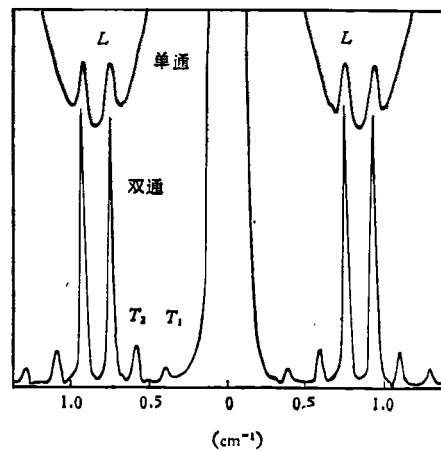


图3 用单通、双通FP得到的SbSI谱的比较

图3是 Sandercock 做的 SbSI 的散射谱。单通时两个横声波的散射被掩盖在瑞利线下，采用双通后都清楚地显示出来了。利用五通的更高对比度，人们陆续在铁氧化物<sup>[6,7]</sup>、金属<sup>[8]</sup>、非晶铁磁合金<sup>[9]</sup>、液态金属 Hg, Ga<sup>[10]</sup> 上得到了体声子、表面声子、体自旋波、表面自旋波的散射。我们在后面给出几个典型的例子。

目前最先进的布里渊谱仪是如图4所示的组合七通 FP 干涉仪<sup>[11]</sup>。串联两个间距不等的 FP 可使自由光谱区扩大。在喇曼散射和布里渊散射之间还有一段能谱的空白 (1.0—10cm<sup>-1</sup>)，补上这段空白可以研究许多位于该能谱范围的元激发。而扩大布里渊谱仪的自由光谱区就是朝这一方向前进的。如果有两个 FP，第一个间距为  $d_1$ ，则波长为  $\lambda_p = \frac{2d_1}{p}$  的光可通过， $p$  为整数，第二个间距为  $d_2$ ，则有  $\lambda_q = \frac{2d_2}{q}$ ， $q$  为整数。 $p, q$  是干涉级数。尽管  $d_1 \neq d_2$ ，可是却可以有  $\lambda_p = \lambda_q$ ，即让同一波长的光在两个 FP 的不同干涉级数下通过。如果在扫描过程中保持有：

$$\delta d_1 / \delta d_2 = d_1 / d_2, \quad (2)$$

则在扫描中两个 FP 也允许同一波长光穿过。这样，自由光谱区可以扩大 10—20 倍。一般情况下满足 (2) 式是困难的。但采用图4那样的安

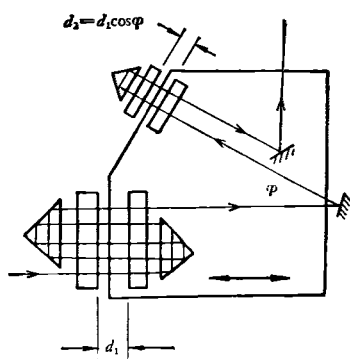


图4 五通串联二通的组合 FP 干涉仪

排这个困难被克服了。图4中两个 FP 的两块运动镜片被安装在同一运动平台上，由一块压电体推动，扫描中镜片的平行由平台下的簧片保持。两个镜片间距满足

$$d_2 = d_1 \cos \varphi, \quad (3)$$

$\varphi$  是 FP1 和 FP2 轴线之间的夹角。两块镜片被同时推动，运动方向沿 FP1 的轴向，(2) 式被自然满足。FP2 的运动镜片在移动中虽然有剪切成分，但对干涉仪工作没什么影响。FP1 是五通，FP2 是二通，组合起来的干涉仪无论对比度还是自由光谱区都大大提高了。实际上还可以把一个平面 FP 换成共焦 FP，从而进一步改善分辨率。

### 三、声子的散射

用布里渊散射研究透明、半透明材料的声频支声子已有许多报道<sup>[12,13]</sup>。这些实验多用于材料的弹性及有关性质的研究。我们这里介绍不透明材料的情况。

用单通 FP 是不可能得到金属材料表面的声子散射信号的。抛光的金属表面是光的反射镜，约 90% 的光可被反射出去，而没有和物质中的激发发生作用。其余透入的部分也只进入样品约数百埃深度。高的反射，很小的相互作用区使散射信号十分微弱。多通和稳定电子学系统的引入使人们能采集到这些微弱信号，并识别出表面声波和体声波的散射。图5是从多晶 Al 得到的结果<sup>[11]</sup>。改变波矢和偏振可以证明，图中的尖锐峰是瑞利表面波，其声速满足：

$$v_s = \frac{(0.87 + 1.12\sigma)}{(1 + \sigma)} \sqrt{\frac{E}{2\rho(1 + \sigma)}}, \quad (4)$$

其中  $v_s$  是表面声波速度， $\sigma$  是泊松比， $E$  是杨氏模量， $\rho$  是样品密度。那么体波的散射在那

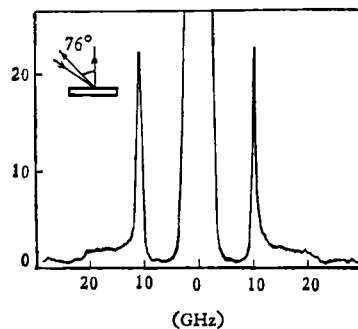


图5 多晶 Al 的布里渊散射谱

里呢？事实上尖峰脚下的连续背景就是体波的散射，这是金属中声子散射的一个特点。

不透明材料都只能做背散射。背散射中透明材料和不透明材料之间有很大不同。透明材料中入射光被折射入介质后，散射光沿原路返回(背散射)。因此，与光相作用的元激发的波矢是有确定数值的，由入射角、散射角决定(见图6)。对于不透明材料，光不可能透入很深，入射光被限制在表面的小薄层内。由测不准关系可知，对光子位置上的限制必定使动量分布

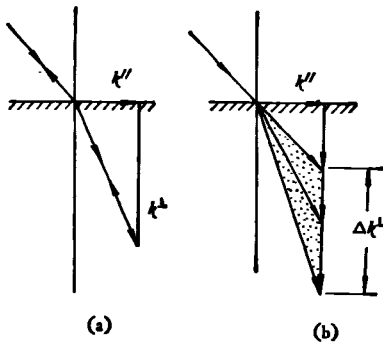


图6 透明和不透明介质中的散射波矢

变大。这样在垂直于样品表面的方向上光子动量不再是唯一值了，而有一个分布。其大小与光透入的深度成反比：

$$\Delta k^{\perp} / k^{\perp} \approx 2n_2 / n_1, \quad (5)$$

$n_2, n_1$  分别是介质折射率的虚部和实部。这样元激发和光子交换能量、动量时，就不只与一种波矢的光相互作用，而是  $\Delta k^{\perp}$  范围内的一系列，参与散射的元激发也就有连续分布的波矢了。对于声子，分布在此范围内的横波、纵波都可参与散射。由于同波矢下横波频率略高于表面波，散射信号的连续谱从表面波脚下高频端开始，延续到体纵波频率附近。表面波波矢只与入射光波矢在样品表面内的分量作用，二者都是确定的，因此表面波散射呈确定波矢下的尖锐峰。

#### 四、自旋波的散射

一般光和自旋波的耦合要比光与声子的耦

合弱得多，因此磁性材料中自旋波的光散射也是多通 FP 出现后才开始的。最初，人们在 YIG 中观察到了体自旋波的散射<sup>[6]</sup>。立方晶系、球状样品的体横波自旋波的色散关系为

$$\omega_m^2 = \gamma^2 \left( (H_0 + H_a - \frac{4\pi}{3} M_s + Dk_m^2) \times (H_0 + H_a - \frac{4\pi}{3} M_s + Dk_m^2 + 4\pi M_s) \right), \quad (6)$$

式中  $\omega_m, k_m$  是自旋波频率和波矢， $\gamma$  是旋磁比， $H_0, H_a$  是外加磁场和磁晶各向异性场， $M_s$  是饱和磁化强度， $D$  是自旋波劲度系数。(6)式表明外加磁场、晶体取向和散射波矢均影响散射自旋波频率。尤其是  $\omega_m$  与磁场有关，这与声子完全不同，它常被用做判据以区分声子和自旋波的散射。测量  $\omega_m$  与  $H_0, H_a, k_m$  的关系使我们得到材料的  $4\pi M_s, \gamma, H_a, D$  等一系列重要而基本的参数。因此，有人称布里渊散射为磁性材料测量的非传统方法。在许多方面它比铁磁共振还要优越，因而受到人们的重视。

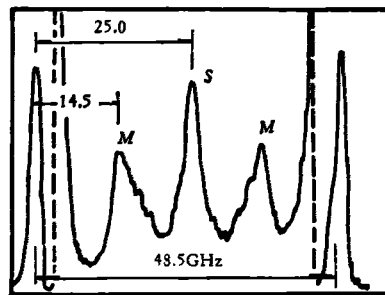


图7 非晶铁磁合金 FeB 的散射谱  
( $H_0 = 1.0 \text{ kG}, 5145 \text{ \AA}, 60 \text{ mW}$ )

图7是从 FeB 非晶铁磁合金得到的散射谱<sup>[7]</sup>。这个谱中实际上有两类峰，对称的尖锐峰(S峰)和非对称的较矮的峰(M峰)。它们的位置都依外加磁场而变化，具有磁振子(自旋波)的特征。M峰的  $\omega_m - H_0$  关系可用(6)式拟合，从中得到 FeB 合金的  $4\pi M_s, g$  因数。 $4\pi M_s$  与其他方法测量结果相符，而  $g$  因数则是首次测到。这就进一步确认M峰是体磁振子造成的散射。那么S峰是否就是表面磁振子的散射呢？表面磁振子的色散关系为

$$\omega_{SM}^2 = \gamma^2(H_i^2 + H_i 4\pi M_s) + (\gamma 4\pi M_s)^2 / [2 + 2\coth |k_m| S], \quad (7)$$

其中  $H_i$  为内磁场,  $S$  是样品厚度. 当表面磁振子波矢  $k_m$  远远小于  $S$  时, 上式化简为

$$\omega_{SM} = \gamma(H_i + 2\pi M_s),$$

$S$  峰的  $H-\omega$  关系确如上式, 因此很可能是表面自旋波的散射. 但是为什么体波正、反斯托克斯线都出现, 而  $S$  峰只有一个呢? 这实际上是表面自旋波的特征之一. Damon 和 Eshbach 曾预言<sup>[44]</sup>, 表面自旋波传播是不可逆的, 传播方向、样品表面法向和磁场方向组成右手螺旋定则. 就是说, 在确定的外磁场方向下, 只有一个方向可传播表面自旋波, 改变磁场方向, 原来的斯托克斯散射消失, 新的峰在反斯托克斯边出现. 实验完全证实了表面自旋波的不可逆性, 从而确认  $S$  峰就是磁表面波的散射. 同样, 按 (7) 式可推知材料的  $g$  因数、 $4\pi M_s$  等参数.

磁性材料中布里渊散射的又一进展是自旋驻波的观测. 事实上在非晶铁磁合金薄带的谱中已经看出, 体自旋波的散射是不对称的, 高频边有“尾巴”. 在非晶溅射薄膜上的实验表明, 当薄膜厚度小于 2000 Å 时, “尾巴”分开为几个峰<sup>[45]</sup>. 自旋驻波的色散关系可从 (6) 式导出, 其波矢满足  $k_m = \pi/L \cdot p$  关系,  $L$  是样品厚度,  $p$  是整数. 已知膜厚  $L$ , 取不同  $p$  得到  $k_m$ , 拟合散射谱及依磁场的变化, 可求出材料的自旋波劲度系数  $D$ . 初步实验表明, 用布里渊散射法测自旋波劲度系数比低温磁性测量更方便、更准确, 是研究交换作用的有力工具.

## 五、物理模型及其他

不透明介质的光散射实验揭示了一系列与透明介质不同的特点, 吸引了理论工作者. 目前解释非磁性金属表面光散射主要有两个模型: 弹光耦合机制和表面波纹机制<sup>[46]</sup>. 弹光耦合机制就是传统的声波调制介电常数造成光散射的机制. 它在解释透明介质、体声波的散射时是成功的. 但在金属表面, 这种机制造成的散射强度常可以忽略. 因为当材料变得越来越

不透明时, 散射体积变小, 按这一机制产生的散射信号应越来越弱, 而实验上强度却不是预期的那么弱. 表面波纹机制至少部分地解释了上述矛盾. 固体的表面, 亚微观地看, 和海面一样, 热骚动造成起伏不平, 并可分解为各种波矢波的迭加. 起伏的表面在反射光时造成衍射. 一级衍射的强度  $J_1$  和零级 (反射) 强度之比为

$$J_1/J_0 = (a/\lambda)^2 = \sigma^2(\lambda_\mu/\lambda)^2, \quad (8)$$

其中  $\lambda$  为光波长,  $a$  是表面起伏的振幅,  $\sigma$  是应变,  $\lambda_\mu$  是声波长. 因为这些起伏在运动, 多普勒效应使一级衍射光有声波频率的移动. 用这一机制成功地解释了 Al, Fe, Ni 等金属表面的声子散射, 也定性地解释了液态金属 Hg, Ga 的散射<sup>[46]</sup>.

磁性介质的光散射也出现了一系列的“反常”. 首先, 在一些材料中正、反斯托克斯线强度比不服从传统的关系. 其次, 散射强度和波长的关系也不是简单的  $\omega^4$  定律<sup>[47]</sup>. 后来发现, 计算不透明材料的散射截面时, 加入耗散项对磁光耦合的作用可解释上述反常. 因为在不透明的磁介质中要得到合理的散射效率必须同时计入非耗散和耗散磁光耦合系数. 目前, 在金属磁性材料的散射中还有两个方面的理论工作要深入, 一是不同情况下自旋波的色散关系、态密度的分析. 光散射实验中涉及的自旋波波矢约  $10^5 \text{cm}^{-1}$ , 正是偶极作用、交换作用都不可忽略的区域, 理论上处理很困难<sup>[48]</sup>. 二是光与自旋波的耦合机制. 实验表明, 在金属表面表面声波, 表面自旋波的散射强度相差无几, 而一般理论认为光-声耦合要比光-磁耦合强得多, 常有几个数量级的差别, 而实验上却没有这么大.

不透明介质表面的光散射刚刚开始, 新的实验结果不断出现, 不仅涉及多种体元激发、表面元激发, 还涉及界面上的元激发. 最近人们在 Si 和 Al 的界面上检测到了 Sezawa 波, 一种界面波<sup>[49]</sup>, 就是例证.

## 参 考 文 献

- [1] L. Brillouin, *Compt. Rend.*, **158**(1914), 1331.  
[2] L. Brillouin, *Ann. Phys. (Paris)*, **17**(1922), 88.

(下转第 79 页)