

# 中子非弹性散射对 $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ 和 $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ 旋声性的研究<sup>1)</sup>

陶 昉                      张 泰 永                      牛世文 勾 成  
(中国科学院物理研究所) (中国科学技术大学物理系)                      (中国科学院原子能研究所)

施 仲 坚                      林 泉  
(中国科学院声学研究所)                      (中国科学院物理研究所)

1985年3月7日收到

## 提 要

通过用中子非弹性散射测量旋声晶体高对称方向的横声学支声子色散曲线的劈裂,从三个方面研究了同构异质晶体  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  和  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  的旋声特性。值得注意的是,沿 $\langle 111 \rangle$ 方向传播的左旋、右旋圆偏振声子具有不同的衰减,其中传播速度快的圆偏振声子衰减较大,该结论为这两种晶体所证实。这是在晶体旋声性研究中首次观察到的现象。实验还直接确定了衰减较大的这支声子的寿命约为  $2 \times 10^{-11}$ s。

## 一、引 言

1968年 Portugal 和 Burstein<sup>[1]</sup> 首先预言,在某些晶体中会具有类似于旋光效应的旋声效应。不久, Pine<sup>[2]</sup> 用 Brillouin 散射、超声测量的实验结果证明了这种效应的存在。实验是在  $\alpha$ -石英上做的。

晶体的旋光性是人们所熟知的现象。它的主要特征是沿光学轴传播的光的偏振面会发生旋转。这一旋转的起因是,在晶体中沿光学轴传播的线偏振光分解为左旋和右旋圆偏振光,两者在晶体中以不同的速度相干地传播,这样,它们在光路上任一点的叠加就形成了不同偏角的线偏振光。

Portugal 等人<sup>[1]</sup>指出,同样的考虑应当适用于横声波。即在一些不具某种对称元素的晶体中,可以期待,晶体对于左旋和右旋圆偏振声波有不同的响应,因而可以预期,一个线偏振的横声波沿声学轴传播时,其偏振面也会发生旋转。这里的声学轴或光学轴均指晶体中的三次轴或更高次轴。类似于旋光性,这一现象被称为“旋声性”。作者还提出一个基于一级空间色散效应的唯象理论解释晶体旋声性的起因。这样,在具有旋声性的晶体中,与无旋声性的晶体相反,沿声学轴传播的横向声子不再简并,这些非简并态是以左旋和右旋圆偏振声波所表征。与光波情况相似,它们沿声学轴传播时具有不同的速度。从声子的

1) 该文部分结果以摘要形式带到第十三届国际晶体学会议。

色散关系曲线,即这类玻色粒子的能量-动量关系角度来看,在无旋声性晶体中,相应于沿声学轴的横声子的一支色散曲线,在旋声晶体中变为两支.一般说来这两支相距很近而称为色散曲线的“劈裂”.

1980年, Joffrin 等人<sup>[3]</sup>用中子非弹性散射成功地测量了这种“劈裂”.与 Brillouin 散射不同,中子非弹性散射可以在 Brillouin 区的很宽范围内研究声子的色散曲线,因而这一方法也把旋声性的研究的波矢范围扩大两个量级以上而具有开拓的意义.这是迄今唯一发表的以中子非弹性散射研究旋声性的实验结果.

与大量的旋光性实验研究情况相反,晶体旋声性的研究,特别是借助于中子非弹性散射的研究工作才刚刚开始,系统的工作仅限于  $\alpha$ -石英和  $\text{NaClO}_3$  两种晶体.因此,旋声性的规律有待于通过更多晶体的定量研究来进一步揭示.

## 二、样品与实验条件

同构晶体锗酸铋 ( $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ ) 和硅酸铋 ( $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ) 属点群  $T-23$  和空间群  $T^h-I23$ . 晶格常数  $a_0$  分别为  $10.15 \text{ \AA}$  和  $10.11 \text{ \AA}$ . 这是 1967 年以后出现的人工合成的压电晶体.主要用作甚高频和超高频声学器件中的延迟线及高频换能器和高频声学介质.其旋光性已被广泛研究.

这里所用的两种单晶样品是中国科学院声学研究所提供的.晶体由提拉法生成,棕色透明、呈宝塔形.体积分别为  $4\text{cm}^3$  和  $2\text{cm}^3$ .

不同晶面给出的摇动曲线和 Bragg 峰均为很好的高斯型,表明晶体是不含孪晶的完整晶体.

由于晶体嵌镶度在测量中和分辨率校正中起重要作用,该量由双晶中子衍射法测定,两块晶体的嵌镶分布均在  $2'$  左右.

安装在中国科学院原子能研究所一〇一反应堆旁的中子散射三轴谱仪已于 1984 年初调试完成,并通过对铝单晶七支声学支色散曲线的测量进行了标样校对.这台由 MINI-6 计算机控制的全自动测量设备,是测量声子或磁子色散曲线的专门仪器.本文的实验工作是在这台仪器上完成的,温度为室温.

为获得良好的分辨率,使用三轴谱仪时采用“W”构形.非弹性散射条件取为湮灭声子,并采用所谓  $(-v, -q)$  组合.

与“劈裂”有关的测量是以  $(1\bar{1}0)$  晶面为散射发生面、倒格点  $(006)$  为散射面来进行的.所用单色器是嵌镶度为  $27' \pm 2'$  的热压锗单晶,而分析器是嵌镶度为  $24'$  的热解石墨.入射中子波长固定为  $2.5 \text{ \AA}$ ,在这种条件下对来自锗单色器(333)面反射造成的假峰给予了充分注意.

## 三、实验结果与分析

本文仅限于与晶体旋声,即色散曲线“劈裂”有关的结果.

在这两个晶体样品上,对于沿  $\langle 111 \rangle$  方向传播的横声学声子(TA 支),我们也同样成

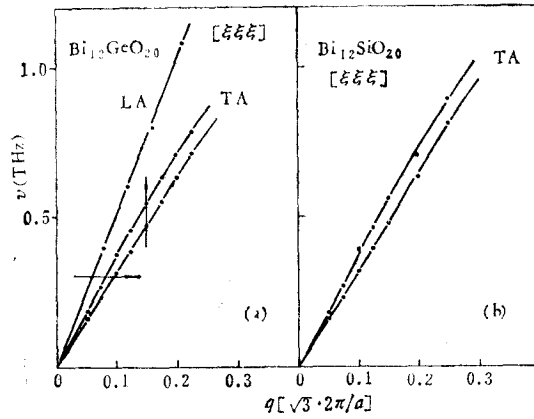


图 1

成功地测出了色散曲线因旋声效应造成的劈裂,即在声子的能量-动量空间的一次扫描中可

获得反映两个横声子同时存在的双峰.

图 1 给出  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  和  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  沿  $\langle 111 \rangle$  方向发生劈裂的横声学声子 (TA) 的色散曲线 (LA 代表纵声支). 横坐标是沿  $\langle 111 \rangle$  方向的简约波矢  $q$ . (它由  $2\pi\sqrt{3}/a$  所约化,  $a$  是以  $\text{\AA}$  为单位的晶格常数.) Brillouin 区边界的简约波矢  $q_{BZ}$  为 0.5.  $\nu$  是声子能量相应的频率, 以 THz 为单位.

我们在 Brillouin 区相当宽范围内作了常动量扫描, 即在扫描过程中保持声子的动量不变的扫描方式. 为便于理解, 将一个典型扫描示于图 1(a) 中, 由垂直箭头表示. 我们也尝试了个别常能量扫描, 即保持声子能量不变的扫描, 由图 1(a) 中水平箭头表示.

图 2 继续给出在两个晶体上这类扫描测得的  $\langle 111 \rangle$  方向横声支劈裂的典型双峰. 其中图 2(a) 和 (b) 是常动量扫描; 而图 2(c) 是范围较宽的常能量扫描, 它就是图 1(a) 水平箭头所示意的扫描, 自然依次获得对应于 LA 和 TA 的上支、下支的三个峰.

图 2 中标有 TA 并交迭在一起的双峰, 实际是两个彼此靠近的高斯型的独立单峰, 它们分别对应于左旋和右旋圆偏振声子. 这两个单峰的峰位、积分强度和峰的线宽可由双高斯峰程序来拟合实验双峰而得到.

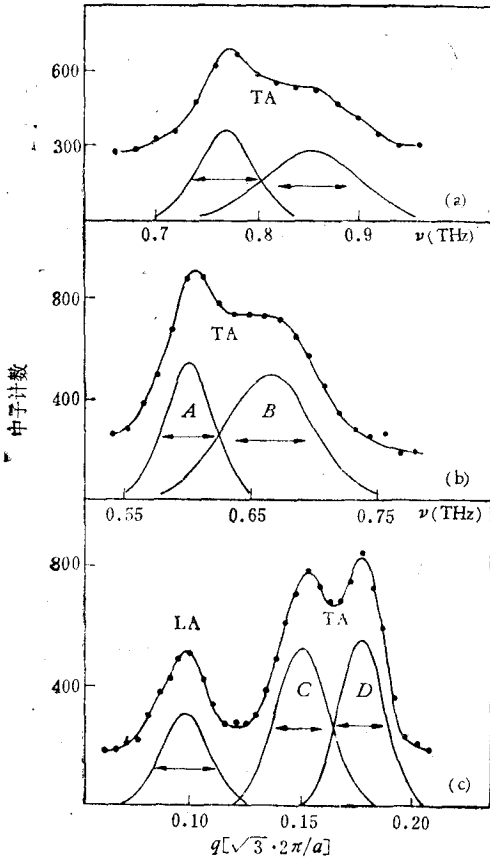


图 2

- (a)  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  常动量扫描,  $q = 0.25$ ;
- (b)  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  常动量扫描,  $q = 0.2$ ;
- (c)  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  常能量扫描,  $\nu = 0.55\text{THz}$

按这一拟合,从常动量扫描中的双峰所得到的两个单峰中心位置对应的能量之差,即旋声劈裂  $\Delta\nu$ . 它的物理意义是: 具有相同波矢  $q$  的左旋和右旋圆偏振声子有不同的能量. 同样,常能量扫描的劈裂  $\Delta q$  则表示: 具有相同能量  $h\omega$  的左旋和右旋圆偏振声子有不同的动量.

在这一物理图象基础上,我们可结合图 1 作一补充说明: 既然声子的能量和动量之比就是声子的传播速度,那么色散曲线的劈裂也表示左旋和右旋圆偏振声子具有不同的速度,上支较快,下支较慢.

现对以上给出的主要实验结果作如下进一步分析: 用双高斯峰拟合程序处理了所有的反映旋声劈裂的双峰,因而可以从三个方面,即两个单峰的峰位、积分强度、峰的线宽来研究左旋和右旋圆偏振声子的主要特性.

1. 两个晶体的旋声劈裂  $\Delta\nu$  对波矢量的平方  $q^2$  的依赖关系,明显地分为两部分.

图 3 给出两个晶体  $\Delta\nu$ - $q^2$  关系,它们是两条几乎重合的曲线. 图 3 还给出 Joffrin 等人<sup>[3]</sup>关于  $\alpha$ -石英和  $\text{NaClO}_3$  的结果,以进一步分析不同晶体这类依赖关系的异同.

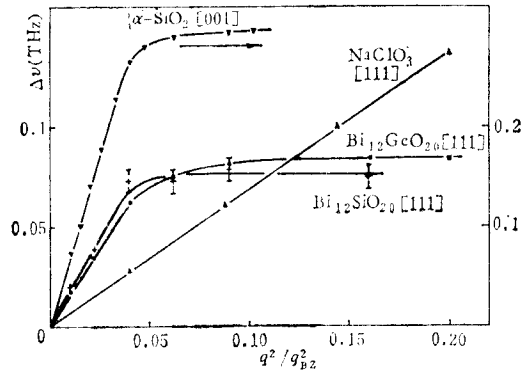


图 3  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  和  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  的旋声劈裂  $\Delta\nu$  对波矢平方  $q^2$  的依赖关系  
 $q_{Bz}$  是 Brillouin 区边界的波矢值

a) 在小  $q$  部分,  $\Delta\nu$  与  $q^2$  成正比. 这一结果是与 Pine<sup>[2]</sup> 和 Joffrin 等人<sup>[3]</sup> 在  $\alpha$ -石英和  $\text{NaClO}_3$  上所得的结果,以及 Portigal 等人<sup>[1]</sup>在唯象理论中所预言的相一致的.

为从物理上理解旋声性这一定量关系,这里引述 Portigal 唯象理论的有关要点: 该理论认为,与晶体对光波的线性响应会存在非定域情况相类似,晶体对超声的响应也会有非定域情况,即弹性常数张量  $c_{ij}$  不仅是超声频率的函数;同时也依赖于波矢量,而取  $c_{ij}(\omega, q)$  的形式. 这一情况称为弹性常数张量含有第一级空间色散贡献. 在第一级空间色散贡献和波矢量  $q$  不是很大时,弹性常数张量  $c_{ij}$  可展开为  $q$  的幂级数如下:

$$c_{ij}(\omega, q) = c_{ij}(\omega) + id_{ij,i}(\omega)q_i + c_{ij,lm}q_lq_m + \dots,$$

张量  $d_{ij,i}(\omega)$  称为旋声张量 (acoustic gyrotropic tensor), 对于沿  $\langle 111 \rangle$  方向传播的横声波,与旋声有关的系数为

$$d'_{45,3} = [3d_{15,2} - 3d_{16,3} - 2d_{45,3}]/9.$$

在简谐近似下,对高对称方向,晶格振动动力学方程可以解得

$$\omega^2/q^2 = \pm v^2 = (c' \pm d'q)/\rho.$$

在  $d'q \ll c'$  条件下,容易得到

$$\omega_+ - \omega_- = (d'/\sqrt{c'\rho})q^2.$$

这样,可得  $\Delta\nu = (d'/2\pi\sqrt{c'\rho})q^2$  的关系式,即旋声劈裂与波矢平方成正比。上述公式中的  $\nu$  是声子的相速度;  $\rho$  是晶体的密度;  $c'$  和  $d'$  分别是弹性常数张量和旋声张量的某种组合。

如前所述,Portugal 唯象理论的这一预言为迄今为止的旋声实验结果所证实。 $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  和  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  的结果可作为新的补充。顺带说明,这一结论对于衰减可以忽略的情况下的旋光也是正确的。

现在,从小  $q$  部分  $\Delta\nu \propto q^2$ , 可进一步比较图 3 的四种晶体旋声性在定量上的差异。为此,先引进一个称作旋声率的物理量  $\varphi/l$ , 这里  $\varphi$  是线偏振声波在传播距离  $l$  处的偏转角。因此旋声率的意义是单位传播距离上线偏振面的转角,它反映了晶体对声波产生旋转效果的能力,因而可以用来定量比较不同晶体的旋声特性以至旋光特性。

在小  $q$  部分,

$$\varphi/l = \frac{1}{2}(d'/c')q^2.$$

故可从小  $q$  部分导出  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  和  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  的旋声率。这里仅以列表形式与其它晶体相比而不作更多讨论。

几种晶体的旋声率和旋光率

	晶 轴	旋 声 率	旋 光 率
$\alpha$ -石英	[001]	970	21.7
$\text{NaClO}_3$	[100]	47	3.1
$\text{NaClO}_3$	[111]	75*	} 引自文献 [3]
$\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$	[111]	520	
$\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$	[111]	550	

b) 在  $q$  较大时,两个晶体的旋声劈裂均出现饱和趋势。

将这两个晶体与  $\alpha$ -石英及  $\text{NaClO}_3$  的旋声劈裂对  $q^2$  依赖的一般行为相比较时,可注意到  $\alpha$ -石英也有类似的饱和现象,而  $\text{NaClO}_3$  则一直未趋饱和。

在 Portugal 文章中,晶体的旋声性与晶体点群对称性有密切关系,不为零的旋声张量  $d_{ij,i}(\omega)$  是由点群对称性所确定。但是这里,  $\text{NaClO}_3$  与  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  (及  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ) 同属一种点群  $I-23$ , 而  $\alpha$ -石英属另一类点群  $D_3$ 。故  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ ,  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  在饱和行为方面与  $\alpha$ -石英相似,而与  $\text{NaClO}_3$  不同的解释,尚不能简单归于点群的异同。

对于这个需要继续探讨的问题,我们的粗浅看法是,晶体中某些离子或离子团之间(它们的空间排列在造成旋声性方面起主要作用)的绝对间距,可能与这类饱和现象有密切关系。

2. 两个单峰的积分强度可直接给出左旋和右旋圆偏振声子对中子的散射截面。

关于线偏振声子对中子的散射截面,早已有严格表达式,并为大量实验所验证。在声子湮灭情况下,散射截面中与声子能量  $\hbar\omega$  有关的因子是  $1/\hbar\omega \cdot (e^{\hbar\omega/kT} - 1)$ 。

对于左旋和右旋圆偏振声子的中子散射截面,尚未见到讨论。我们的实验结果表明,

\* 在原文中为 750, Prof. J. Joffrin 作了改正。

圆偏振声子对中子的散射截面, 与线偏振声子完全相同. 与  $\hbar\omega$  有关的上述因子的一部分, 即  $1/(e^{\hbar\omega/kT} - 1)$  是熟知的玻色粒子的热占有数. 上述结果的物理含义十分清楚, 即能量为  $\hbar\omega$  的声子在湮灭条件下对中子的散射截面与该能量相应的声子占有数成正比. 这些再一次表明, 玻色粒子热占有数以及它在散射过程中的作用是更为普遍的规律, 与玻色粒子的具体形态, 例如是线偏振声子或圆偏振声子无关.

3. 两个单峰的线宽分析, 可给出左旋和右旋圆偏振声子的寿命及传播长度的重要信息.

双峰的拟合结果表明, 两个单峰有不同的线宽. 其中相应于速度快的那支圆偏振声子的中子峰有较宽的线宽. 现仍以图 2 的典型扫描为例加以讨论.

图 2(b), (c) 中,  $A, B$  峰和  $C, D$  峰是分别作双峰拟合后得到的两组单峰. 在峰的半高处箭头所示的长度则代表谱仪的分辨率, 它由谱仪参数和各个具体扫描方式所确定, 并由一种专门为三轴谱仪设计的三维分辨率程序给出各特定扫描的谱仪分辨率. 可以看出,  $A$  峰和  $D$  峰在实验误差范围内, 其线宽为分辨率所表示, 而  $B$  峰和  $C$  峰则相对于分辨率有明显加宽. 对照图 1(a) 用箭头所示的两种扫描方式,  $A$  和  $D$  峰均相应于被劈裂的  $\Gamma A$  支中的下支, 而  $B$  和  $C$  则相应于上支, 即速度快的那支圆偏振声子. 对于图 2(a) 所示  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  常动量扫描的结果, 也可作同样的分析.

对于线偏振声子而言, 相应的非弹性散射的中子峰在动量方面的加宽, 表示声子具有一个有限的传播长度; 在能量上的加宽, 表示声子具有一个有限的寿命. 二者是相互联系的, 或概括说, 声子有一个明显的衰减.

这一原则也应适用于圆偏振声子. 从这些峰的线宽的定量计算, 可直接获得速度较快的这支圆偏振声子的寿命约为  $2 \times 10^{-11}$ s, 其自然传播距离约为  $1000 \text{ \AA}$ . 这是在旋声性研究中首次观察到的现象.

实验结果还表明, 在测量误差范围内, 这支圆偏振声子的衰减与其波矢  $q$  无明显依赖. 由此一个可能的推断是, 这种衰减的主要原因不是来自声子间的相互作用, 而可能是晶体某种本征特性.

## 四、讨 论

1. 作者认为, 由于国内条件所限, 数据测量的精度还不够高. 因此, 第三部分的分析和结果, 定性意义重于定量意义. 提高精度的关键, 是使用有冷中子源的中子三轴谱仪.

2.  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  和  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  旋声结果差别不大, 旋光方面也十分相近. 这一事实表明, 在这种同构异质晶体中  $\text{Ge}$  和  $\text{Si}$  的相互替代对晶体旋声、旋光特性没有显著影响. 在旋光研究中, 有人认为  $\text{Bi}^{+++}$  的某种类螺旋排列对该晶体旋光性有显著作用. 受此启发, 作者拟寻找对  $\text{Bi}^{+++}$  替代的同构晶体作进一步研究.

3. 关于旋声劈裂  $\Delta\nu$  随  $q^2$  增大时的饱和趋势, 中国科学院理论物理研究所的同志尝试作出说明, 除一些初步结果外, 他们还预言一些现象, 有待进一步的实验工作.

4. 圆偏振声子衰减的机理尚待研究. 但沿用 Portugal 唯象理论<sup>[1]</sup>, 仍可作进一步讨论: 在该理论中, 反映第一级空间色散效应的系数  $d_{ijl}(\omega)$  是作为实数引入的. 现将它

推广到复数这种更一般情况,其中的实部与推广前相同、决定着劈裂的大小,或者说左旋和右旋圆偏振声子速度的差别,而虚部则反映它们之间在衰减损耗上的不同。

衰减问题的深入研究有待凝聚态物理同行的关注。

贾惟义、严启伟、张泮霖、叶春堂、梅长江对实验方法和结果作了有益讨论。詹文山提供了双高斯峰拟合程序。巴黎南大学教授 J. Joffrin 建议该课题的研究。法国奥尔费堆 B. Hennion 博士提供了三轴谱仪三维分辨率程序并教授使用。法国科学家 Pepy 设计了本工作使用的三轴谱仪。中国科学院物理研究所柯永丰、孙克健、沈志工、原子能研究所杨同华参加了三轴谱仪研制。本工作作为北京中子散射三轴谱仪的第一个研究工作,一并向上述同志和朋友表示感谢。

### 参 考 文 献

- [ 1 ] D. L. Portigal and E. Burstein, *Phys. Rev.*, 170 (1968), 673.
- [ 2 ] A. S. Pine, *Phys. Rev.*, B2 (1970), 2049.
- [ 3 ] C. Joffrin, B. Dorner, J. Joffrin, *J. Physique Lettres*, 41 (1980), 391.

## INELASTIC NEUTRON SCATTERING STUDY ON ACOUSTICAL ACTIVITY OF $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ AND $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$

TAO FANG

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ZHANG TAI-YONG

(*Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei*)

NIU SHI-WEN GOU CHENG

(*Institute of Atomic Energy, Academia Sinica*)

SHI ZHONG-JIAN

(*Institute of Acoustics, Academia Sinica*)

LIN QUAN (LIN CHUAN)

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

### ABSTRACT

Acoustical activity of isomorphous crystals  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  and  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  has been studied by measuring the splitting of degeneracy of transverse acoustical waves propagating along high symmetric direction with inelastic neutron scattering. One of the interesting results is that the left and right circularly polarized modes of acoustical phonons propagating along  $\langle 111 \rangle$  direction are subjected to different attenuation. This conclusion is verified by both kinds of crystals. The experimental result is observed for the first time in the study of acoustical activity. The life-time of the phonon with larger attenuation is found to be about  $2 \times 10^{-11}$  s. experimentally.