

# BCVIG 单晶的布里渊散射

张 鹏 翔 庞 玉 璋

(中国科学院物理研究所)

G. GÜNTHERODT R. MOCK

(II Physikalisches Institut, Universität zu Köln, FRG)

1986 年 6 月 26 日收到

## 提 要

用布里渊散射技术测量了 BCVIG ( $\text{Bi}_{3-2x}\text{Ca}_{2x}\text{Fe}_{3-x}\text{V}_x\text{O}_{12}$ ) 单晶的磁振子散射谱, 同 Sandercock, Wettling<sup>[1]</sup> 对 YIG 以及刘玉龙等人<sup>[2]</sup>对 Bi-YIG 单晶的测量相比, 我们得到了除主峰之外的连续谱带. 按照偶极-交换自旋波理论讨论了测到的自旋波谱. 测量还表明 BCVIG 单晶的自旋波劲度系数  $D$  比 YIG 和 Bi-YIG 单晶大得多. 讨论了  $D$  增大的原因. 研究了  $D$  与入射激光功率的关系.

## 一、引 言

自旋波区分为静磁波(亦称偶极自旋波)、交换自旋波和偶极-交换自旋波<sup>[3]</sup>. 静磁波的能量主要由磁偶极能决定, 交换作用可以忽略. 理论上比较容易处理, 实验上用铁磁共振<sup>[4]</sup>和静磁波法<sup>[5]</sup>可以研究这种波的性质. 大量实验和理论的一致, 使人们对这类波有了较深入的理解, 例如对磁表面波的非互易性、慢波性等. 在此基础上这类波也获得了技术上的广泛应用<sup>[6]</sup>. 交换自旋波是交换作用能占主导, 偶极能可以忽略的自旋波激发范围. 由于波长短, 波矢大 ( $k > 10^6 \text{ cm}^{-1}$ ), 理论处理也比较简单, 实验上多用中子非弹性散射研究. 虽然结果不很多, 但也使人们对这种波有了一定的理解. 介于这两种波之间的便是偶极-交换自旋波. 由于必须同时考虑偶极作用、交换作用, 理论分析往往遇到困难, 而实验上则缺乏能检测相应波矢 ( $10^4 < k < 10^6 \text{ cm}^{-1}$ ) 自旋波的手段. 因此, 迄今人们对这类波的研究、了解都很不充分<sup>[7]</sup>.

近十余年来迅速发展起来的光散射技术, 尤其是布里渊散射, 为自旋波的直接测量开拓出新的途径<sup>[8,9]</sup>.

早在 1973 年 Sandercock 和 Wettling 就用三通布里渊谱仪测量了 YIG 单晶中的体自旋波<sup>[1]</sup>. 在考虑偶极作用时引入交换作用修正, 他们解释了实验测量的主峰(磁体波)的色散关系. 在此基础上还推算出材料的磁性参数, 第一次用光散射法测量了 YIG 的自旋波劲度系数  $D$ . 但是在这一实验中, 由于只测到了磁体波, 没有发现偶极-交换区自旋波与静磁波的明显差别. 后来许多人的兴趣转向了金属材料, 陆续在金属 Fe、Ni<sup>[10]</sup>、非晶磁性合金<sup>[11,12]</sup>、双层磁膜<sup>[13,14]</sup>、成份调制膜<sup>[15,16]</sup>上取得一些重要结果. 这些材料中光透入

的深度很小(约  $100-200 \text{ \AA}$ ),测到的信号主要是表面自旋波,体波多成为一定分布的背景.偶极作用、交换作用共同的影响也没有充分表现出来.这样,对偶极-交换自旋波的了解便仍然停留在原有水平上.

本文报道我们对 BCVIG 单晶的布里渊散射研究结果.由于样品中含有能增强磁光耦合的  $\text{Bi}^{3+}$  离子,以及采用了灵敏度、对比度都更高的串联多通布里渊散射谱仪,我们得到了与 YIG, Bi-YIG 单晶不同的散射谱,除主峰之外观察到一个从主峰起向低频边延伸的自旋波带,该谱带到低频的确定频率处突然截止.我们测量了该谱带的磁场、入射功率、入射角度关系.根据偶极-交换自旋波理论,讨论了自旋波带的性质,并指出这是偶极-交换自旋波的特点的反映.

## 二、样品和实验安排

实验所用的 BCVIG 单晶是用助熔剂法生长的<sup>[17]</sup>.样品是从大块单晶上切下的小片,经磨、抛后尺寸约为  $0.5 \times 6 \times 10 \text{ mm}^3$ .样品表面的最后抛光用  $0.05 \mu\text{m}$  粒度的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  研磨膏,以达到好的光洁度,利于光散射实验.

BCVIG 与 YIG 一样,为立方石榴石结构,属  $O_h^9$  空间群.与 YIG 不同之处在于十二面体心由  $\text{Bi}^{3+}$  和  $\text{Ca}^{2+}$  离子代换了 YIG 的  $\text{Y}^{3+}$ ,四面体心的  $\text{Fe}^{3+}$  也部份地被  $\text{V}^{5+}$  所代换.其结果是饱和磁化强度大大降低,但居里点减少不多.这类材料除有优良的微波磁性之外,也有大的磁光旋转和磁光优值<sup>[18]</sup>.实验表明,Bi 的代入造成石榴石晶体在  $4700 \text{ \AA}$  附近磁光旋转的增强.是什么机制造成这一增强尽管还没有统一见解,但是可以预计,磁振子的光散射强度会因磁光耦合的增加而增强.我们希望通过光散射测量给出这些离子对交换作用的影响,并提供观察偶极-交换自旋波特点的机会.

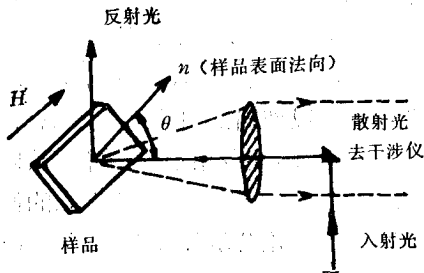


图1 散射实验的几何安排

光散射实验是在串联多通法布里-珀罗干涉仪上进行的.该谱仪的特点已在文献[19]中讨论过.这里仅描述我们的实验安排,这对后面结果分析是必要的.选  $\text{Ar}^+$  激光器的  $5145 \text{ \AA}$  线为入射光,入射功率在  $5-50 \text{ mW}$  间.实验采取背散射安排.片状样品放在磁场中,沿面内磁化.入射光与磁场方向(磁化强度)垂直,而与样品表面法向成不同角度(见图1).通过改变外加磁场、入射和散射光的偏振,可以判明测到的信号的性质(声子还是磁振子).

通过改变外加磁场、入射和散射光的偏振,可以判明测到的信号的性质(声子还是磁振子).

## 三、结果分析和讨论

图2是从 BCVIG 单晶上得到的典型布里渊谱及其外加磁场关系.容易看出,当外加磁场较低时,我们得到一个较强的散射峰 ( $M_1$ ),这与以前在 YIG<sup>[1]</sup> 和 Bi-YIG<sup>[2]</sup> 中的测量结果相同.该峰也依外加磁场强度的增加而移向高频.按 Sandercock 和 Wettling 的观

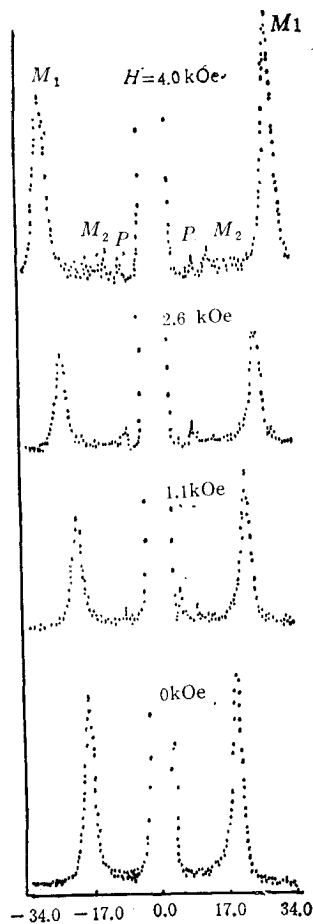


图2 BCVIG 单晶的布里渊谱及磁场关系

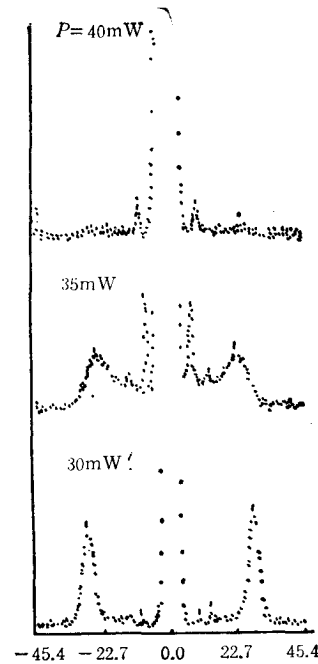


图3 不同入射激光功率下的散射谱

点, 它应是体磁振子引起的散射。当外加磁场足够高时, 我们的实验发现, 在低频端又出现两个小峰。一个小峰 ( $P$ ) 原来似乎也存在, 不过被掩盖在很强的主峰之下。该峰位置不随外加磁场强度而改变, 并且当提高入射功率, 样品局部温度因激光照射而上升时, 散射强度反而增强, 据此我们判定它是声子的散射。因为通常样品温度提高并趋于居里点时, 磁振子散射强度都明显变弱, 我们实验中的  $M_1$  峰就是如此。另一个小峰  $M_2$  也随磁场增强而向高频边移动, 初步认定也是磁振子引起的散射。关于它的本质我们将在后面讨论。一个值得注意的实验事实是在  $M_1$  和  $M_2$  之间散射信号强度并不降低到平均背景噪声水平, 形成从  $M_1$  到  $M_2$  的连续带, 这一现象在较高的人射功率下变得更为明显 (见图 3)。这是在以前铁石榴石晶体的布里渊散射中没有观测到的现象。

在金属磁性材料的光散射实验中, 由于金属电导率高, 光吸收强, 入射光仅透入样品表面的薄层内 ( $100-200 \text{ \AA}$ ), 磁表面波和光的相互作用比磁体波要强, 因此主散射峰均为磁表面波<sup>[10-12]</sup>。铁氧体材料则与此相反, 由于电阻率高, 光透入深度大, 散射强度大的应是体波<sup>[1,2]</sup>, 磁表面波则很难测到。因此我们认为在 BCVIG 单晶上得到的主散射峰是体波磁振子的散射, 进一步的确认可从磁场-频率关系证明。

片状样品面内磁化时,体波磁振子的色散关系为<sup>[1]</sup>

$$\omega_m^b = \gamma[(H + Dk^2)(H + Dk^2 + 4\pi M_s)]^{1/2} \quad (1)$$

其中  $\omega_m^b$  为体波磁振子频率,  $\gamma$  为旋磁比,  $H$  为外加磁场(这里忽略了磁晶各向异性场和退

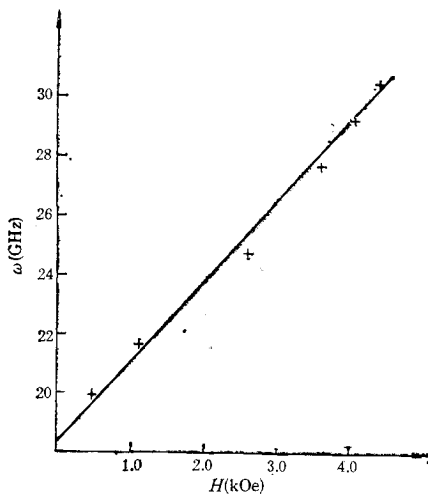


图4 测量的  $\omega_m^b-H$  和拟合曲线的比较(10mW)

磁场),  $D$  为材料的自旋波劲度系数,  $k$  为自旋波波矢,  $4\pi M_s$  为样品的饱和磁化强度. 我们取  $Dk^2$  和  $4\pi M_s$  为调整参数, 拟合 10 mW 入射功率下实验测量的  $\omega_m^b-H$  关系, 结果见图 4. 符合之好是显然的. 但是必须指出, 拟合中  $Dk^2$  项的贡献远远高出相应 YIG, Bi-YIG 的值.  $Dk^2$  项的增加可能有两方面的原因. 一个是自旋波劲度系数  $D$  的增加, 另一个是波矢  $k$  的增加. 在背散射下, 体波磁振子的波矢为

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot n \cdot 2, \quad (2)$$

其中  $\lambda$  为入射激光波长,  $n$  为介质折射率. 还没有人测过 BCVIG 单晶的折射率, 为此我们用反射法测量了 BCVIG 单晶的折射率. 波长为 5145 Å 时

BCVIG 单晶的折射率为  $n = 2.37$ , 和 YIG 相比 ( $n = 2.44$ , 5145 Å) 不但没有增加, 反而略有减小. 这样唯一的可能就是自旋波劲度系数  $D$  的增加了. 表 1 列出了我们对 BCVIG 单晶和文献中对 YIG, Bi-YIG 的  $D$  值测量结果. 我们测到的 BCVIG 单晶的  $D$  值是 YIG

表 1 YIG, Bi-YIG, BCVIG 单晶的自旋波劲度系数

	YIG	Bi <sub>x</sub> Y <sub>3-x</sub> IG( $x = 0 - 0.54$ )	BCVIG
$D \times 10^9(\text{Oe} \cdot \text{cm}^2)$	5.4	5.4-6.7	18.9
文献	[1]	[2]	本文测量

的近四倍. 表 1 中 BCVIG 单晶的  $D$  值是在入散功率为 10 mW 时获得的. 事实上不同入射功率造成的样品表面的加热同时改变着样品的饱和磁化强度和自旋波劲度系数. 幸运的是, 我们的拟合程序可以同时给出这两个参数. 表 2 列出了不同入射功率下的测量数据及拟合结果. 随着入射激光功率的升高, 测到的磁振子频率明显降低, 以至于当入射功率高于 40 mW 时, 没有任何明显的磁振子峰(见图 3). 起初我们以为磁振子频率的下降主要是因为加热引起的饱和磁化强度下降造成的, 后来发现下降的幅度是如此之大, 以至于即使假定  $4\pi M_s = 0$  也不能得到满意的符合, 因此必须假定  $D$  值下降. 一个简单的计算机程序可以同时改变  $D$ ,  $4\pi M_s$ , 以求得实验测量和理论计算的最佳拟合, 结果列在表 2. 很明显, 在 5, 10, 20 mW 的测量中  $4\pi M_s$  的变化很小, 在拟合的误差范围之内, 而  $D$  值则变化显著. 根据  $D = 2A/M$  可知, 如果不同入射功率仅仅使样品温度改变, 那么在这一温度变化范围内交换常数  $A$  则要比饱和磁化强度对温度敏感得多. 仔细对比不同入射功率、不同样品环境温度下的实验, 可以同时提供  $D$  及  $4\pi M_s$  的温度关系, 这将是布里渊散射的很有特色的工作.

表 2 不同入射功率下测到的磁振子频率及拟合得到的自旋波劲度系数  $D$  和饱和磁化强度  $4\pi M_s$ 

$P(\text{mW}) \backslash H(\text{kOe})$	0.48	1.10	2.00	2.60	3.0	3.6	4.0	4.4	$D \times 10^8$ (Oe·cm <sup>2</sup> )	$4\pi M_s(\text{G})$
5	22.3	23.8		27.5		30.2		32.3	20.8	508
10	19.9	21.6		24.7		27.7		30.8	18.9	523
20	16.8	18.5	21.0		23.5	24.9	26.1	27.7	15.6	509

峰强度很小的  $M_2$  峰是我们这次测量的又一发现。如前所述, 在以前的石榴石样品测量中没有观察到类似的现象, 很难直接判定该峰的性质。

根据 Wolfram 和 DeWames 对偶极-交换自旋波的理论<sup>[7]</sup>, 片状样品面内磁化时, 偶极-交换自旋波的表面支色散关系为

$$\omega_m^s = \gamma[H + 2\pi M + \xi \cdot D \cdot k_y^2], \quad (3)$$

其中  $k_y$  是表面支自旋波的波矢,  $\xi$  是一系数。按 Wolfram 和 DeWames<sup>[20]</sup> 的推导,  $\xi = 2$ , Camley, Mills<sup>[21]</sup> 的数值计算得到  $\xi = 1.76$ 。同时考虑偶极作用和交换作用时磁表面波模式和磁体波模式会发生交叉和混合, 样品越厚  $Dk^2$  项比重越大, 交叉混合越厉害, 以至于最后使磁体波都带有一定的表面波特性, 而表面波也失去原来的特点。我们认为从  $M_1$  到  $M_2$  的谱带正是这种偶极-交换磁波的表现。我们根据偶极-交换作用表面自旋波的色散关系 (3) 式计算  $M_2$  峰,  $D$  值、 $4\pi M_s$  值均取同功率下体波拟合得到的值, 唯一的调整参数是  $\xi$ , 结果列入表 3。可以看出, 在假定  $\xi = 1$  的情况下可以得到较好的符合, 从而间接证明  $M_2$  峰是偶极-交换磁表面波。为了进一步确认  $M_2$  峰的表面波性质, 我们

表 3 10 mW 激光功率下  $M_2$  峰的测量值和计算值的比较

$H(\text{kOe})$		1.0	1.5	2.2	2.9	3.5	3.9	4.4
$\omega_m$ 测量值(GHz)		4.75	6.4	8.1	9.8	11.6	12.9	14.1
计算值	$\xi = 2$	6.70	8.10	10.1	12.0	13.7	14.8	16.2
	$\xi = 1$	5.1	6.52	8.48	10.4	12.1	13.2	14.6

还做了不同入射角度的实验(见图 5)。表面波波矢  $k_y = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot \sin \theta$ ,  $\theta$  为入射激光和样品法向的夹角,  $\theta$  的增加直接改变 (3) 式中的一项, 而背散射下体波频率则因  $k = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot n$  与  $\theta$  无关而不变。实验结果与上述预言大体是一致的。表 4 给出了磁表面波频率的测量值和计算值的比较。考虑到垂直入射时激光对表面的加热比斜入射厉害, 因而测量到的磁

表 4 偶极-交换磁表面波的频率-波矢关系

入射角 $\theta$	0	26	42	60
$Dk_y^2(\text{G})$	0	216	503	843
$\omega_m$ 计算值 (GHz)	13.1	13.7	14.5	15.4
$\omega_m$ 测量值 (GHz)	11.8	12.4	13.3	15.0

振子频率会偏低的事实，测量和计算值之间在低角度上偏差更大些是不奇怪的。同样的

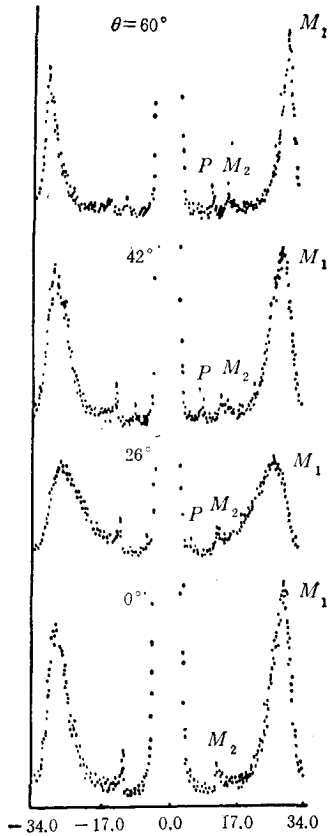


图5 散射谱的入射激光角度关系

原因也可以说明体波磁振子频率在改变入射角度时的微小变化。但无论如何，表面支的变化要明显得多，与计算的吻合进一步证实  $M_2$  峰的表面波性质。事实上  $M_2$  峰的线宽依入射光角度的变化也说明了它的磁表面波性质。依据 Wolfram 和 DeWames 的计算<sup>[20]</sup>，偶极-交换磁表面波的线宽遵守

$$\Delta H = 4\pi M \cdot |Q_1| = 4[(2H + 4\pi M) \cdot 4\pi M]^{1/2} \cdot \left(\frac{D}{4\pi}\right)^{3/2} \cdot k_y^3 \quad (4)$$

即正比于波矢  $k_y$  的三次方。这一很大的变化定性地从实验上明显地看出(见图5)。随着入射角的减小，从  $M_1$  到  $M_2$  的连续谱带截止点越来越明显，在  $\theta = 0$  时，测量中发现只用多道中的一二道，散射强度就从背景噪声水平跳到  $M_2$  的峰值，物理上这是不难理解的。由于偶极-交换作用的影响，表面波与体波逐渐交叉混合。片越厚， $Dk^2$  项贡献越大，混合也越厉害，这使得表面波能量很快转移到体波上，其寿命越来越短，因而标志寿命的线宽也变得越来越大。这种交叉、混合的另一个影响是使磁表面波逐渐失去表面波的特性，例如非互易性。这就回答了我们在测量中为什么正、反 Stokes 边都有强度大体相等的  $M_2$  峰这一问题。这一点也不同于以前对磁表面波的测量。

现在讨论为什么在以前的 YIG, Bi-YIG 实验中没能测到这些现象。我们认为主要原因有两个：一个原因是目前我们所用的谱仪在灵敏度、稳定性上都是以前实验所不能比的；另一个原因则是样品本身的不同。正如实验结果显示的，BCVIG 单晶中自旋波劲度系数  $D$  比 YIG 和 Bi-YIG 都大很多，而交换作用的影响以  $Dk^2$  的形式出现。 $D$  的增加，使 BCVIG 单晶中交换作用的影响更加突出、明显，有利于偶极-交换模式的实验测量。此外，还应指出的是样品中含有  $\text{Bi}^{3+}$ ，它引起可见光区磁光旋转的增强，加大了磁光耦合。这也使磁振子散射强度大大增强。实际上在低激光功率下磁振子的散射几率约为声子散射几率的 10 倍。这在一般磁性材料的光散射实验中是很少见的。

#### 四、小 结

1. 用布里渊散射测量了 BCVIG 单晶的磁振子散射谱，获得了一个连续谱带。基于偶极-交换自旋波理论讨论了该谱带，并证明该谱带正是偶极-交换自旋波的表现。
2. 根据实验推算出了样品的自旋波劲度系数及其与入射激光功率的关系。结果说明

可以用布里渊散射研究自旋波劲度系数  $D$  及其与温度的关系, 这对研究磁性材料的交换作用是很有意义的。

### 参 考 文 献

- [ 1 ] J. R. Sandercock, W. Wettling, *Sol. State. Comm.*, **13**(1973), 1729.
- [ 2 ] 刘玉龙、张鹏翔、莫育俊、屠安, 本刊本期.
- [ 3 ] R. W. Damon and J. R. Eshbach, *J. Phys. Chem. Solid*, **19**(1960), 308.
- [ 4 ] B. Lax and K. J. Button, *Microwave Ferrites and Ferrimagnetics*, McGraw-Hill Book Company, inc., (1962).
- [ 5 ] 张鹏翔、曹克定, *物理学报*, **34**(1985), 1407.
- [ 6 ] J. -P. Castera, *J. Appl. Phys.*, **55**(1984), 2506.
- [ 7 ] T. Wolfram and R. E. De Wames, *Prog. Surf. Sci.*, **2**(1972), 233.
- [ 8 ] A. S. Borovik-Romanov and Kreines, *J. Magn. Magn. Mater.*, **15—18** (1980), 760.
- [ 9 ] 张鹏翔, *物理学进展*, **2**(1982), 323.
- [ 10 ] J. R. Sandercock, W. Wettling, *IEEE Trans. on Mag.*, **14**(1978), 442.
- [ 11 ] P. H. Chang, A. P. Malozemoff, M. Grimsditch, W. Senn and G. Winterling, *Sollid State Comm.*, **27** (1978), 617.
- [ 12 ] A. P. Malozemoff, P. H. Chang and M. Grimsditch, *J. Appl. Phys.*, **50**(1979), 5896.
- [ 13 ] P. Grunberg, *J. Appl. Phys.*, **52** (1981), 6824.
- [ 14 ] P. X. Zhang and W. Zinn, *Phys. Rev. B*, to be published.
- [ 15 ] P. Grunberg and K. Mika, *Phys. Rev.*, **B27**(1983), 2995.
- [ 16 ] M. Grimsditch, M. R. Jahn, A. Kueny and I. K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.*, **51**(1983), 498.
- [ 17 ] 中国科学院物理研究所磁性单晶组, *物理学报*, **25**(1976), 373.
- [ 18 ] 张鹏翔、刘玉龙、王焕元、庞玉璋, *物理学报*, **31**(1982), 865.
- [ 19 ] R. Mock, 硕士论文, 联邦德国科隆大学第二物理研究所, (1984).
- [ 20 ] T. Wolfram and R. E. DeWames, *Phys. Rev.*, **B1**(1970), 4358.
- [ 21 ] R. E. Camley and D. L. Mills, *Phys. Rev.*, **B18**(1978), 4821.

## BRILLOUIN SCATTERING FROM BCVIG SINGLE CRYSTALS

ZHANG PENG-XIANG PANG YU-ZHANG

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

G. GÜNTHERODT R. MOCK

(*II Physikalisches Institut, Universität Köln, 5000 Köln41, FRG*)

### ABSTRACT

Magnon spectra were measured by means of Brillouin scattering from single crystals BCVIG ( $\text{Bi}_{3-2x}\text{Ca}_{2x}\text{Fe}_{5-x}\text{V}_x\text{O}_{12}$ ). We obtained a continuous band, including the bulk magnon peak, which has been observed by Sandercock et al. in YIG, and Liu and Zhang et al. in Bi-YIG. The measured dispersion relation of the magnon band was analysed based on the theory of dipole-exchange spin waves. This measurement also show that the spin wave stiffness constant  $D$  is much larger than that of YIG and Bi-YIG. The reason of the lager  $D$  is discussed and its dependence on the incident laser power was studied.