

Tomasz BŁACHOWICZ, Roman BUKOWSKI,
Zygmunt KLESZCZEWSKI

UKŁAD POMIAROWY DO BADANIA ROZPRASZANIA BRILLOUINA W CIECZACH I CIAŁACH STAŁYCH

Streszczenie. W pracy przedstawiono układ pomiarowy służący do badania akustycznych fononów drgań cieplnych w obszarze hiperdźwiękowym o częstotliwościach leżących w zakresie $10^9 \text{ Hz} - 10^{11} \text{ Hz}$. Zasadniczym elementem układu jest interferometr Fabry'ego-Perota skanowany ciśnieniowo. W pomiarach zastosowano technikę zliczania pojedynczych fotonów. Przedstawiono wyniki rozpraszania w niefiltrowanym czterochlorku węgla.

EXPERIMENTAL SETUP FOR THE BRILLOUIN LIGHT SCATTERING IN LIQUIDS AND SOLID STATES

Summary. The article present the arrangement design for the Brillouin light scattering experiment used to examine thermal fonons from the $10^9 \text{ Hz} - 10^{11} \text{ Hz}$ range. The main element of the setup is the Fabry-Perot interferometer. Single photon counting method was used for data analyzing. Brillouin shift for impure carbon tetrachloride was determined.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ СИСТЕМА ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ БРИЛЛЮЭНОВСКОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА В ЖИДКОСТЯХ И ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ

Резюме. В работе представлено экспериментальную систему предназначену для исследования акустических фононов в гипергерцовом диапазоне $10^9 \text{ Гц} - 10^{11} \text{ Гц}$. Главном элементом системы является интерферометр Фабри-Перо сканируемый давлением. Применено технику считания одиночных фононов. Представлено результаты рассеяния для нефльтрованного четырехлора угля.

1. Wprowadzenie

Brillouinowskie rozpraszanie światła laserowego jest jedną z najczęściej stosowanych technik pomiarowych służących do badania akustycznych fononów termicznych w zakresie hiperdźwiękowym. W zasadzie badania te mają charakter podstawowy. Przeprowadzone pomiary umożliwiają określenie prędkości fal akustycznych i stałych sprężystych, a w ogólności badanie własności kierunkowych kryształów [1, 2, 3, 4, 5], metali [6, 7, 8], półprzewodników [9, 10, 11], cienkich warstw [12, 13, 14], struktur wielowarstwowych [15, 16] i supersieci [17, 18, 19]. Osobną grupę stanowią badania wpływu przejść fazowych w materiałach ferroelektrycznych [20, 21] na częstotliwość i czas życia fononu oraz badania substancji szklistych [22, 23, 24], a w szczególności światłowodów [25].

Technika rozpraszania brillouinowskiego posiada trzy zasadnicze zalety. Pierwsza związana jest z możliwością pomiarów akustycznych w obszarze częstotliwości, gdzie klasyczna technika ultradźwiękowa nie może być stosowana ze względu na silne tłumienie fal wytwarzanych sztucznie. Drugą zaletą jest możliwość badania materiałów o dowolnym kształcie oraz małych rozmiarach. Trzecia zaleta to możliwość badania ośrodka bez konieczności wprowadzania zewnętrznego zaburzenia akustycznego.

2. Rozpraszanie brillouinowskie. Istota zjawiska

Najbardziej charakterystyczną cechą rozpraszania brillouinowskiego jest pojawienie się w widmie światła rozproszonego oprócz centralnej linii, z reguły bardzo silnej, o długości fali światła padającego związanej ze sprężystym rozpraszaniem Rayleigha, również dodatkowych linii, których odległości od linii centralnej, w skali częstotliwości, określają częstotliwości drgań termicznych, na których zaszło rozpraszanie światła laserowego. W najbardziej skomplikowanym przypadku dwójłomnego kryształu przezroczystego o odpowiednio niskiej symetrii mogą pojawić się 24 linie brillouinowskie. W przypadku materiałów nieprzezroczystych możliwe jest badanie termicznych drgań powierzchniowych, a liczba linii wynika ze sposobu przygotowania próbki. Odnosi się to szczególnie do struktur wielowarstwowych i supersieci.

Korzystając z opisu kwantowego, można stwierdzić, że za wystąpienie opisanego wyżej obrazu odpowiedzialne są procesy kreacji i anihilacji fononu w oddziaływaniu z fotonem świetlnym. W pierwszym przypadku w świetle rozproszonym wystąpią fotony o niższej częstotliwości (linia stokesowska), w drugim natomiast fotony o częstotliwości wyższej (linia antystokesowska). Pomimo że opis kwantowy wydaje się być najbardziej odpowiedni, to – mając na uwadze fakt, że biorące udział w rozpraszaniu fonony należą do gałęzi akustycznej oraz że częstotliwość światła jest około 10^3 razy większa od częstotliwości drgań

cieplnych – wystarczająco dokładny staje się opis zjawiska na gruncie elektrodynamiki klasycznej.

Zgodnie z opisem klasycznym lokalne fluktuacje termiczne ośrodka rozpraszającego są przyczyną powstania lokalnych zaburzeń przenikalności dielektrycznej [26]

$$\underline{\varepsilon}(\vec{r}, t) = \underline{\varepsilon}(0) + \delta\underline{\varepsilon}(\vec{r}, t) \quad (1)$$

lub inaczej rozkład kątowy i rozkład spektralny światła rozproszonego zawierają informację o przestrzennych i czasowych fluktuacjach stałej dielektrycznej ośrodka rozpraszającego. W ogólności $\underline{\varepsilon}(\vec{r}, t)$ i zaburzenie przenikalności dielektrycznej $\delta\underline{\varepsilon}(\vec{r}, t)$ są wielkościami tensorowymi. Następnie można stwierdzić, że z zasady zachowania kwazipędu dla wektorów falowych fotonu padającego i rozproszonego oraz wektora falowego fononu, na którym zachodzi rozpraszanie

$$\vec{k}_s = \vec{k}_0 \pm \vec{q} \quad (2)$$

wynika, że

$$|\vec{q}| = 2|\vec{k}_0| \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right). \quad (3)$$

W związku z powyższym można podać istotny wniosek:

wybór kąta Θ zawartego między wektorami falowymi \vec{k}_i , \vec{k}_s oraz wybór długości fali światła padającego na badany materiał określa wielkość $\delta\underline{\varepsilon}(\vec{r}, t)$, a więc decyduje o rodzaju badanego modu drgań termicznych. Technika brillouinowskiego rozpraszania światła może zatem służyć do badania kierunkowych właściwości kryształu.

Niezależnie od rodzaju badanego materiału i konfiguracji rozproszeń istnieje kilka ogólnych, wspólnych cech i wielkości fizycznych, które są użyteczne do opisu zjawiska. Zostaną one krótko przedstawione.

Niech próbka materiału rozpraszającego będzie oświetlona przez płaską, monochromatyczną falę elektromagnetyczną o wektorze natężenia pola elektrycznego \vec{E}_0

$$\vec{E}_0 = E_0 \vec{f}_0 e^{i(\vec{k}_0 \cdot \vec{r} - \omega t)}, \quad (4)$$

gdzie \vec{f}_0 jest wektorem polaryzacji fali. Całkowite pole elektryczne w dowolnym punkcie obserwacji, określone przez wektor $\vec{E}(\vec{R}, t)$, jest sumą pola elektrycznego zarówno fali padającej \vec{E}_0 , jak i fali rozproszonej \vec{E}_1 , przy czym $|\vec{E}_1| \ll |\vec{E}_0|$ oraz

$$\vec{E} = \vec{E}_0 + \vec{E}_1. \quad (5)$$

Indukowany w ośrodku rozpraszającym wektor polaryzacji \vec{P} ma następującą postać

$$\vec{P} = \varepsilon_0(\underline{\varepsilon} - 1)\vec{E}_0 = \varepsilon_0(\underline{\varepsilon}(0) - 1)\vec{E}_0 + \delta\underline{\varepsilon}\vec{E}_0 = \vec{P}^{(0)} + \vec{P}^{(1)}(\vec{r}, t), \quad (6)$$

gdzie można wyróżnić część jednorodną $\vec{P}^{(0)}$ i niejednorodną $\vec{P}^{(1)}$ będącą źródłem światła rozproszonego. Z punktu widzenia elektrodynamiki klasycznej elementarnym źródłem

światła jest promieniujący dipol. Po wstawieniu (5) i (6) do równania Maxwella otrzymuje się rozwiązanie dla wektora $\vec{E}_1(\vec{R}, t)$ w przybliżeniu pola dalekiego w następującej postaci [26]

$$\vec{E}_1(\vec{R}, t) = H_0 e^{-i\omega_0 t} \int \delta_{\underline{\varepsilon}}(\vec{r}, t) e^{-i\vec{q}\vec{r}} d^3r, \quad (7)$$

gdzie całkowanie przebiega po całej oświetlonej części objętości próbki, natomiast stała H_0 jest określona przez

$$H_0 = \frac{\omega_0^2 E_0}{4\pi\epsilon_0 c^2 R} \sin \Psi, \quad (8)$$

gdzie Ψ jest kątem zawartym pomiędzy wektorem falowym światła rozproszonego a wektorem polaryzacji światła padającego. Ponieważ równanie (7) przypomina swym kształtem transformatę Fouriera wielkości $\delta_{\underline{\varepsilon}}(\vec{r}, t)$, z wyjątkiem ograniczonego obszaru całkowania, to jednak ze względu na to, że $|\vec{q}|$ jest wielkością rzędu 10^7 m^{-1} , a oświetlona objętość jest wielkością rzędu 10^{-5} m^3 , z dobrym przybliżeniem możemy napisać, że

$$\vec{E}_1(\vec{q}, t) = H_0 e^{-i\omega_0 t} \sqrt{2\pi} \delta_{\underline{\varepsilon}}(\vec{q}, t). \quad (9)$$

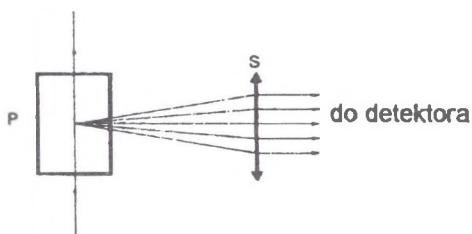
Wniosek: natężenie pola elektrycznego $\vec{E}_1(\vec{q}, t)$ w fali świetlnej rozproszonej na akustycznej fluktuacji termicznej określonej przez wektor falowy \vec{q} jest q -tą składową przestrzennej transformaty Fouriera z zaburzenia $\delta_{\underline{\varepsilon}}(\vec{q}, t)$ stałej dielektrycznej ośrodka.

Wniosek powyższy jest bardziej precyzyjnym stwierdzeniem o selektywności metody rozpraszania brillouinowskiego ze względu na własności kierunkowe, o czym nadmieniono na wstępie.

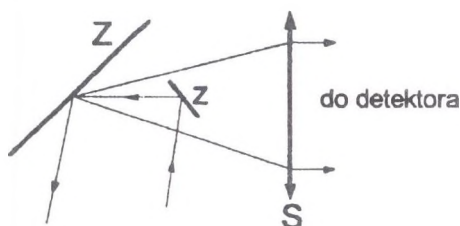
3. Opis układu pomiarowego

Istnieją zasadniczo dwa rodzaje doświadczeń rozpraszania brillouinowskiego, jeśli za kryterium podziału przyjmą sposób oświetlenia próbki przez promień laserowy, przy czym istotną przyczyną tego podziału jest przezroczystość lub nieprzezroczystość materiału badanego, a zatem badanie objętościowych lub powierzchniowych zaburzeń termicznych. Obie konfiguracje rozproszeń przedstawiono na rys. 1 i 2.

Stosunek wartości sygnału odpowiadającego linii Rayleigha do wartości sygnału odpowiadającego linii brillouinowskiej zależy od rodzaju badanego materiału. Dla starannie przefiltrowanych cieczy może być wielkością rzędu 1, dla kryształów przezroczystych wynosi około 10^3 , natomiast dla struktur nieprzezroczystych osiąga wartość 10^9 . Jeśli zatem chodzi o technikę rejestracji widma brillouinowskiego, to istnieją dwie główne metody. W obu wykorzystywany jest fotonielicznik, jednak obróbka sygnału elektrycznego odbywa się metodą homodynową lub metodą zliczania pojedynczych fotonów. Prezentowany układ pomiarowy wykorzystuje drugą z metod. Idea pomiaru przedstawiona jest na rys. 3.

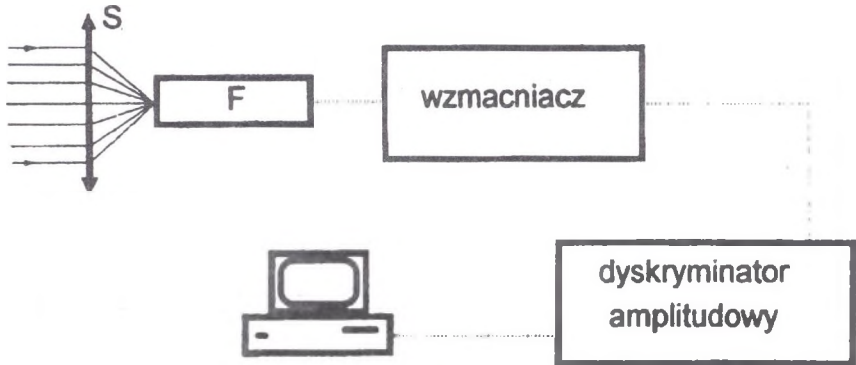


Rys. 1. Rozpraszanie Brillouina w materiale przezroczystym: S - soczewka, P - próbka
 Fig. 1. Brillouin scattering in transparent medium: S - lens, P - sample

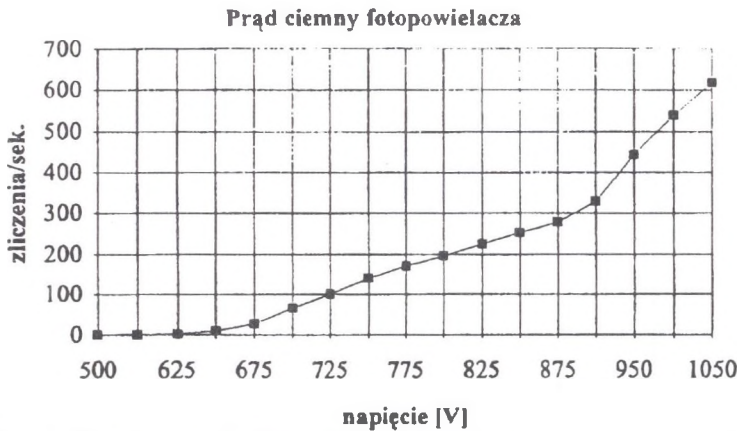


Rys. 2. Rozpraszanie w materiale nieprzezroczystym: Z - zwierciadła
 Fig. 2. Brillouin scattering in nontransparent medium: Z - mirrors

Schemat ogólny aparatury pomiarowej przedstawiono na rys. 5. Najważniejszym elementem układu jest podwójny interferometr Febry'ego-Perota o zmiennej liczbie przejść analizowanej wiązki świetlnej sterowany ciśnieniem. Doboru liczby przejść dokonuje się poprzez zmianę wzajemnych położeń pryzmatów prostokątnych zamocowanych w uchwytych obrotowych. Komora główna interferometru połączona jest z drugą komorą wyrównawczą, na której zamocowano zawór odcinający i zawór dozujący oraz połączenie z manometrem. Maksymalny czas skanowania widma wynosi 8 godzin, co jest wystarczające dla najbardziej czułych pomiarów. Typowa zdolność rozdzielcza aparatury wynosi 0.1 GHz . W układzie zastosowano zintegrowany system do pomiaru sygnału metodą zliczania pojedynczych fotonów typu 614 PMT zawierający w sobie wzmacniacz i dyskryminator. Układ ten daje na wyjściu sygnał w standardzie TTL docierający do przelicznika P-21 wykorzystywanego standardowo w fizyce jądrowej. P-21 daje na wyjściu sygnał w kodzie BCD, który po odpowiednim dopasowaniu został doprowadzony do komputera IBM PC. W układzie pomiarowym zastosowano fotopowielacz do pracy impulsowej R-928 firmy Hamamatsu, którego charakterystykę przy braku sygnału mierzonego przedstawiono na rys. 4.



Rys. 3. Metoda zliczenia pojedynczych fotonów
 Fig. 3. Conception of single photon counting method



Rys. 4. Charakterystyka fotopowielacza przy zasłoniętym otworze wejściowym
 Fig. 4. The plot of photomultiplier counts without input signal

Parametry najważniejszych elementów układu pomiarowego

1) interferometr I:

- typ IT-51,
- zakres spektralny: 400 nm — 800 nm,
- współczynnik odbicia: $R = 0.87 - 0.92$,
- współczynnik transmisji: $T = 0.05 - 0.11$,

2) interferometr II:

- typ IT-51,
- zakres spektralny: $460 \text{ nm} - 550 \text{ nm}$,
- współczynnik odbicia: $R = 0.90 - 0.95$,
- współczynnik transmisji: $T = 0.079 - 0.038$,

3) moduł 614 PMT analog/digital unit:

- niestabilność temperaturowa: $0.01\%(5^\circ\text{C} - 40^\circ\text{C})$,
- dryft wzmacniacza: $0.03\%/h$,
- maksymalna szybkość zliczeń: 4 MHz ,
- zdolność rozdzielcza: 250 ns ,
- szerokość impulsu: 220 ns ,

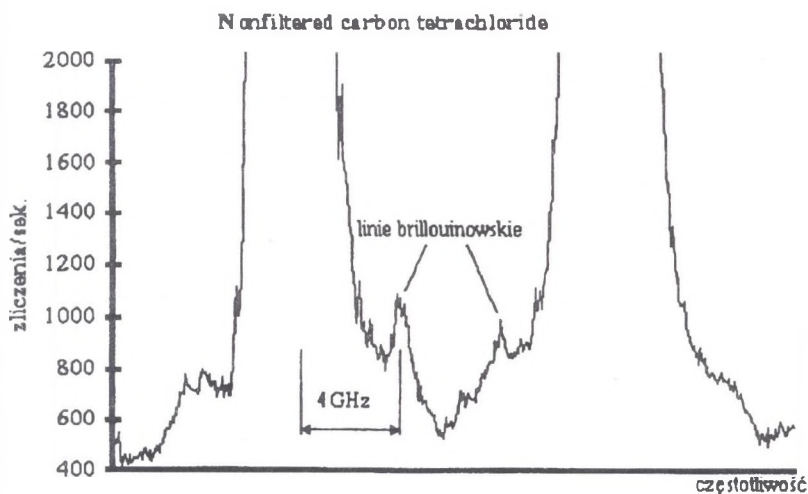
4) fotopowielacz R-928:

- zakres spektralny: $185 \text{ nm} - 850 \text{ nm}$,
- maksymalna czułość dla 400 nm .

4. Wyniki rozpraszania dla czterochlorku węgla

Na rys. 6 przedstawiono widmo brillouinowskie otrzymane dla niefiltrowanego z zanieczyszczeń czterochlorku węgla (stężenie 99.6%). Wyraźnie widać, że natężenie linii brillouinowskich jest zaburzone przez rozpraszanie na cząsteczkach kurzu. Podczas pomiaru zastosowano pojedynczy interferometr z etalonem 12 mm , co daje obszar dyspersji równy 12.5 GHz . Źródłem światła był laser argonowy pracujący wielomodowo (mody TEM_{100}) o mocy 400 mW . Długość fali wynosiła 514.5 nm .

Odczytane z wykresu przesunięcie brillouinowskie wynosi 4 GHz , co po podstawieniu do wzoru (3) (dla Θ równego 90°) i podstawieniu bezwzględnego współczynnika załamania równego $n = 1.4579$ [27] daje prędkość fali akustycznej wynoszącą 997.5 m/s . Porównanie z pracą [27], gdzie dla podobnych warunków eksperymentu podano wartość 998 m/s , nasuwa wniosek, że same zanieczyszczenia nie mają wpływu na prędkość zaburzenia akustycznego, a jedynie powodują znaczne zwiększenie przekroju czynnego na rozpraszanie elastyczne. Pomiar pozwala więc pośrednio wnioskować o stopniu zanieczyszczenia substancji.



Rys. 6. Rozpraszanie Brillouina w nieodfiltrowanym z zanieczyszczeń czterochlorku węgla
 Fig. 6. Brillouin light scattering in nonfiltered carbon tetrachloride

Literatura

- [1] G. B. Benedek, K. Fritsch, *Brillouin scattering in cubic crystals*, Phys. Rev. **149**, 2 (1966), 647-662.
- [2] R. A. McLaren, H. Kiefte, D. Landheer, B. P. Stoicheff, *Elastic constants of neon single crystals determined by Brillouin scattering*, Phys. Rev. **B11**, 4 (1975), 1705-1717.
- [3] A. I. Rimus, N. S. Roslik, Yu. M. Wysoczanskij, *Mandelsztam-Brillouinowskoje ras-siejaniye swieta w kristalle $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ pri fazowom pierichodie*, Fiz. Tw. Tielu **27**, 7 (1985), 2225-2228.
- [4] P. E. Ngoepe, J. D. Comins, *Measurement of elastic constants in super-ionic $\text{Ba}_{1-x}\text{La}_x\text{F}_{2+x}$* , J. Phys. C: Solid St. Phys. **19** (1986), L267-L271.
- [5] B. Mróz, H. Kiefte, M. J. Clouter, J. A. Tuszynski, *Brillouin scattering studies of the ferroelastic phase transition in LiCsSO_4* , Phys. Rev. **B36**, 7 (1987), 3745-3754.
- [6] J. G. Dil, É. M. Brody, *Brillouin scattering from isotropic metals*, Phys. Rev. **B14**, 12 (1976), 5218-5225.
- [7] J. R. Sandercock, *Light scattering from surface acoustic phonons in metals and se-miconductors*, Solid St. Comm. **26**, 8 (1978), 547-551.

- [8] R. E. Camley, P. Grunberg, C. M. Mayr, *Stokes-anti-Stokes asymmetry in Brillouin scattering from magnons in thin ferromagnetic films*, Phys. Rev. **B26**, 5 (1982), 2609-2614.
- [9] J. Gutowski, J. Schott, I. Broser, *Resonant Brillouin scattering at bound-excitation states in CdS*, Phys. Stat. Sol. **138** (1986), 673-683.
- [10] T. S. Wieliczka, A. M. Diakonow, W. W. Aleksandrow, I. A. Jakowlew, *Spektry Mandelsztama Brillouina pri akustoelektronnom wzajemodziejstwiu w monokryształach CdS*, Fiz. Tw. Tiela **28** (1986), 55-62.
- [11] X. Z. Lu, M. Dutta, H. Z. Cummins, *Direct observation of three-branch polariton dispersion in the A excitation of CdS by resonant Brillouin scattering*, Phys. Rev. **B33**, 4 (1986), 2945-2948.
- [12] J. R. Sandercock, *Structure in the Brillouin spectra of thin films*, Phys. Rev. Lett. **29**, 26 (1972), 1735-1738.
- [13] D. B. Cavanaugh, C. H. Wang, *Studies of elastic constants of oriented poly (ethylene terephthalate) films using Brillouin scattering*, J. Appl. Phys. **52**, 10 (1981), 5998-6002.
- [14] G. Guntherodt, S. Blumenroder, B. Hillebrands, R. Mock, E. Zirngiebl, *Light scattering in metallic compounds and thin supported layers*, Z. Phys. **B**, 60 (1985), 423-432.
- [15] G. Rupp, W. Wettling, W. Jatz, R. Krishnan, *Brillouin scattering study of multilayer cobalt-niobium films*, Appl. Phys. **A**, 37 (1985), 73-82.
- [16] P. Baumgart, B. Hillebrands, R. Mock, A. Boufelfel, C. M. Falco, *Localized phonon modes in Fe-Pd multilayer structures*, Phys. Rev. **B34**, 12 (1986), 9004-9007.
- [17] J. Sapriel, J. C. Mitchel, J. C. Toledano, R. Vacher, J. Kervarec, A. Regreny, *Light scattering from vibrational modes in GaSb-Ga_{1-x}Al_xAs superlattices and related alloys*, Phys. Rev. **B28**, 4 (1983), 2007-2016.
- [18] A. Kueny, M. K. Khan, I. K. Schuller, M. Grimsditch, *Magnons in superlattices: Alight scattering study*, Phys. Rev. **B28**, 6 (1984), 2879-2883.
- [19] R. Danner, R. P. Huebener, C. S. L. Chun, M. Grimsditch, I. K. Schuller, *Surface acoustic waves in NI/V superlattices*, Phys. Rev. **B33**, 6 (1986), 3696-3701.
- [20] W. T. Schranz, K. Parliński, H. Warhanek, K. Żabińska, *Elastic constant behaviour of NH₄LiSO₄ above 460K*, J. Phys. C: Solid. St. Phys. **20** (1987), 5045-5050.

- [21] P. E. Ngoepe, J. D. Comins, *Brillouin scattering studies of stabilised zirconias at high temperature*, J. Phys. C: Solid St. Phys. **20** (1987), 2983-2994.
- [22] G. O. Karanetian, A. W. Konstantinow, L. W. Maksimow, P. W. Reznichenko, *De-konwolucja po Baiesy w spektroskopii relejewskiego i mandelsztam brillonowskiego ras-siejania w stieklach*, Fiz. Tw. Tiela (1984), 774-779.
- [23] E. Courtens, R. Vacher, Y. Dagorn, *Brillouin spectroscopy of polaruzation fluctu-ations in a $Rb_{1-x}(NH_4)_xH_2PO_4$ glass*, Phys. Rev. **B33**, **11** (1986), 7625-7636.
- [24] I. A. Grizsin, G. G. Dewiatyh, E. M. Dianow, N. I. Kisieliew, W. G. Plotniczenko, A. I. Ritus, M. F. Czurbanow, *Issledowanije opticzeskich i uprugich swoistw florid-nogo stieklta metodom MBR*, Kwan. Elektr. **14**, **2** (1987), 377-378.
- [25] P. J. Thomas, N. L. Rowell, H. M. van Driel, G. I. Stegeman, *Normal acoustic modes and Brillouin scattering in single-mode optical fibres*, Phys. Rev. **B19**, **10** (1979), 4986-4998.
- [26] R. Blinc, B. Zeks, *Selected topics in solid state physics, Vol. XIII — Soft modes in ferroelectrics and antiferroelectrics*, North-Holland Publishing Company 1974.
- [27] H. Z. Cummins, R. W. Gammon, *Rayleigh and Brillouin scattering in liquids: The Landau-Placzek ratio*, J. Chem. Phys. **44**, **7** (1966), 2785-2796.

Recenzent: Prof. dr hab. Mikołaj Labowski

Wpłynęło do redakcji 10.12.1994 r.

Abstract

In this article we have presented the tandem Fabry-Perot arrangement as a very sensitive tool to the analysis of fotons nonelastically scattered on acoustical fonons (up to 10^2 GHz) in liquids, single crystals, metals, semiconductors, thin layers, multilayers and superlattices. In spite of difficulties connected with detection of low intensity of light and thermal stabilization of the apparatus presented method seems to be not replaceably. The whole interferometric system was placed in a chamber which was connected with the small controlling chamber. Variable number of passages were assured by two rotative rectriangle prisms. The single photon counting method was used for data storing. Measurements for nonfiltered carbon tetrachloride were performed. Calculated velocity is in good agreement with earlier value achieved for pure carbon tetrachloride.