

声子的实验探测

郑奇靖

中国科学技术大学，物理系

zqj@ustc.edu.cn

[<http://staff.ustc.edu.cn/~zqj/teaching/>](http://staff.ustc.edu.cn/~zqj/teaching/)

2025 年 6 月 30 日

[Ver. 20250630100800]

1 声子探测技术一般描述

2 光学手段

3 非弹性中子散射

4 非弹性电子隧穿

一般描述

- 外部探针 (external probe) 与晶格振动交换能量 (吸收/发射一个或多个声子), 通过测量探针的能量和方向的改变, 就有可能得到声子色散关系 $\omega_\nu(\mathbf{q})$ 及态密度 $\rho(\omega)$ 。

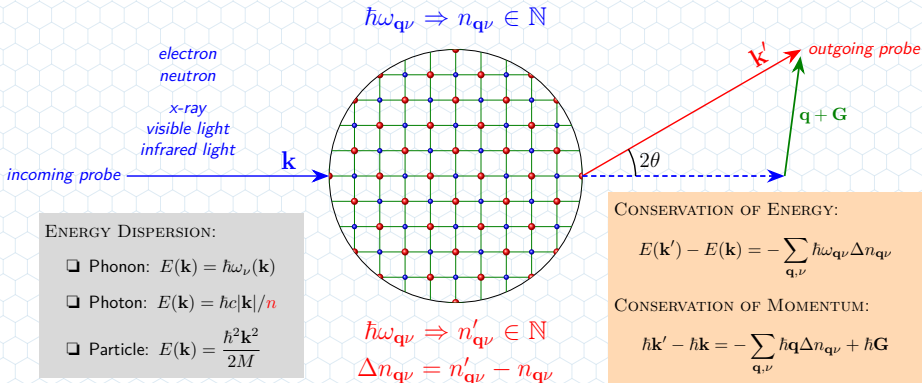


图 - 声子色散 $\omega_\nu(\mathbf{q})$ 实验探测基本原理示意图。

- 弹性散射情况, 即 $\Delta n_{\mathbf{q}\nu} = 0$, 则准动量守恒要求:

$$\mathbf{k}' - \mathbf{k} = \mathbf{G} \quad \Rightarrow$$

$$\text{LAUE EQUATION}$$

$$(1)$$

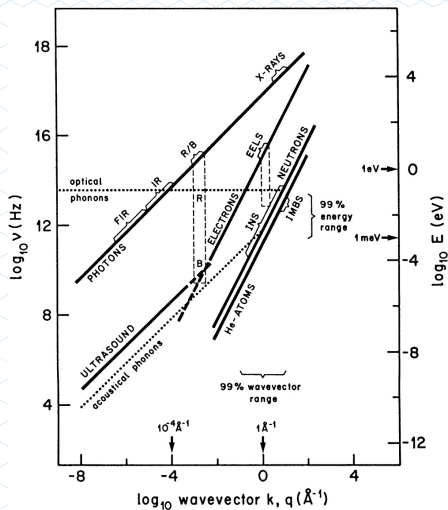


图 - 声子色散探测实验中用到的各种探针的能量色散关系。¹

¹Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

✿ 根据探针的不同，大致可以分为以下几种：

PROBE		EXPERIMENTAL TECHNIQUE
Electromagnetic Wave	(Far-)Infrared Light	Infrared Spectroscopy
	Visible Light	Raman Spectroscopy (Optical Phonon)
	Visible Light	Brillouin Spectroscopy (Acoustic Phonon)
	x-ray	inelastic x-ray scattering
Neutron		Inelastic neutron scattering
Electron		Inelastic electron tunnelling spectroscopy

表 – 不同的探针及相应的实验技术。

声子探测实验技术

METHOD	ABBREVIATION	MEASUREMENT OF	MAIN INFORMATION
Far-infrared & infrared spectroscopy	FIR IR	the intensity of transmitted or reflected light as a function of frequency	Infrared dielectric properties of insulators and semiconductors; optical phonons at $\mathbf{q} \approx 0$
Raman spectroscopy	R	the intensity of scattered light as a function of frequency	Optical phonons at $\mathbf{q} \approx 0$, Polaritons
Brillouin spectroscopy	B	as for Raman spectroscopy	Acoustic modes at small wave vectors $\mathbf{q}$
Diffusive x-ray scattering		the intensity of scattered X-rays as a function of momentum transfer	Limited information about phonon dispersion
Inelastic neutron scattering	INS	the intensity of scattered neutrons as a function of energy and momentum transfer	Phonon dispersions, density of states (DOS)
Ultrasonic methods	US	the velocity and attenuation of ultrasonic pulses	Sound velocities, phonon-phonon interaction
Inelastic electron tunneling spectroscopy	IETS	current voltage characteristics of metal-insulator-metal tunneling junctions	Vibrational properties of thin films and adsorbates

表 – 声子探测实验技术举例。²

²Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

1 声子探测技术一般描述

2 光学手段

3 非弹性中子散射

4 非弹性电子隧穿

- 光子能与声子发生非弹性散射，吸收（反斯托克斯过程）或发射（斯托克斯过程）一个声子的能量。

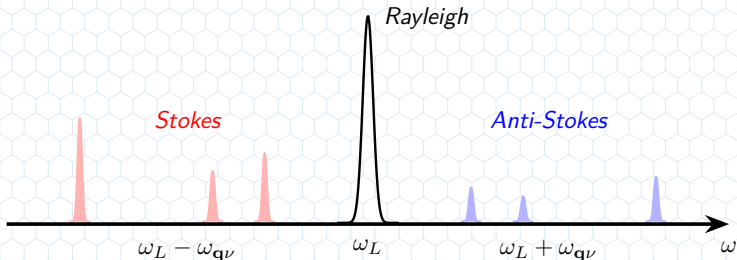


图 - 光子与声子的弹性散射（瑞利散射）、非弹性散射（斯托克斯、反斯托克斯）谱示意图。

- 斯托克斯和反斯托克斯的强度比值大致为：

$$\frac{I_s}{I_a} \propto \left[\frac{\omega_L - \omega_0}{\omega_L + \omega_o} \right]^4 \exp \left[\frac{\hbar \omega_0}{k_B T} \right] \quad (2)$$

X 射线非弹性散射

✿ X 射线的波长 $\lambda \sim 0.1 - 10 \text{ nm}$, 能量高达 $E = hc/\lambda \sim 10^4 \text{ eV}$, 晶格常数 $a \sim 1 \text{ nm}$

□ 能量和准动量守恒: 保证能量、动量转移覆盖第一布里渊区

✗ 声子能量 ($\sim 26 \text{ meV}$) 与 X 射线相差 5 个量级, 因此难以确定 X 射线频率的变化。

☞ 可以认为 $E' \approx E$, 即 $|\mathbf{k}'| \approx |\mathbf{k}|$, 考虑单声子散射过程, 根据能量和准动量守恒

$$\begin{aligned} E = \hbar c |\mathbf{k}| / n = \hbar \omega_X & \Rightarrow \begin{cases} \hbar \omega_p = E' - E \\ |\mathbf{q}| = \frac{2n\omega_X}{c} \sin \theta \end{cases} \Leftarrow (n \text{ 为折射率}) \end{aligned} \quad (3)$$

根据式(3), 改变 X 射线入射方向和散射角 2θ , 可以得到一系列 $\omega_p \sim \mathbf{q}$ 的点, 从而得到晶体的声子色散。

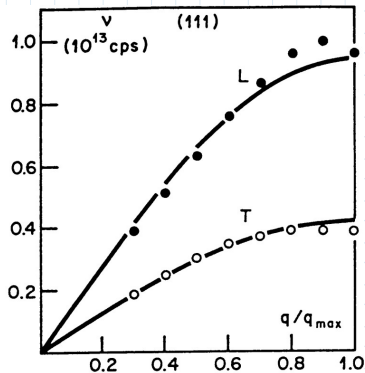
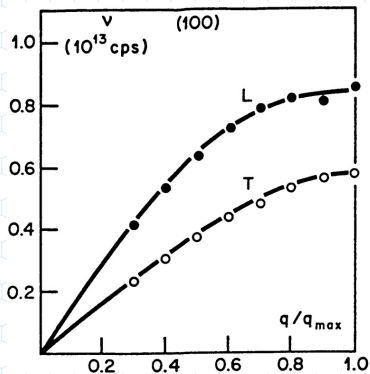


图 - X 射线非弹性散射方法测量金属铝的声子谱。⁴

⁴Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

拉曼光谱、红外光谱

✿ 若降低光子的能量，比如可见光 ($\lambda \sim 400 - 700 \text{ nm}$)、甚至红外 (Infrared) ($\lambda \sim 700 \text{ nm} - 1 \text{ mm}$)

- 准动量守恒：只能测量 $q \sim 0$ 附近的长波声子
- 光与光学支声子散射称为拉曼散射 (Raman Scattering)，与声学支声子发生散射称为布里渊散射 (Brillouin Scattering)

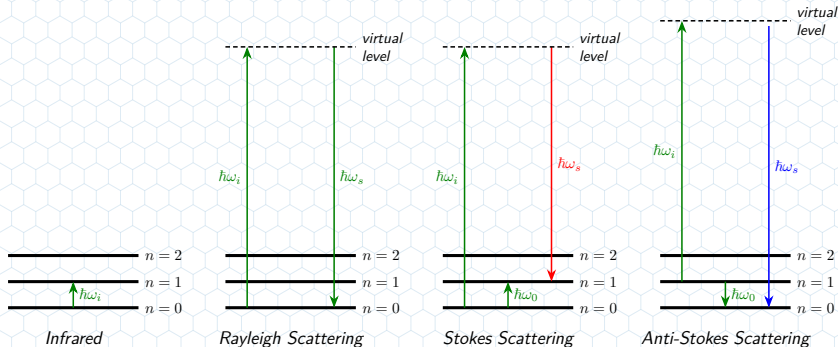


图 - 红外、瑞利散射、斯托克斯位移和反斯托克斯位移示意图。

- ✿ 光子和长波声学支声子发生布里渊散射，因长波声学支 $\omega_a \rightarrow 0$ ，远小于光子能量 $E = \hbar\omega_L$ ，

$$|\mathbf{q}| = \frac{2n\omega_L}{c} \sin \theta \xrightarrow{\omega_a = v_g |\mathbf{q}|} v_g = \frac{E' - E}{|\mathbf{q}|} \quad (4)$$

- 布里渊散射测出的声速与通常测量的不同，这里的声波不是由外部输入的，而是固体中自然存在的热激发长波声子。

- ✿ 拉曼散射是和光学支声子发生相互作用，散射光的频率位移较大

$$\omega_o \sim 10^{13} \text{ Hz}, \quad \omega_a \sim 10^{11} \text{ Hz} \quad (5)$$

- ✿ 长波光学支色散比较弱（基本不依赖 $\mathbf{q}$ ），因此拉曼散射的位移不明显依赖于散射角。
- ✿ 红外和远红外光光的能量和晶格振动光学支处于相同量级，因此它们和晶格振动的相互作用就可能变为对入射光的吸收。红外吸收一般发生在极性晶体的横光学支 ω_{TO} 。
- ✿ 在研究晶体光学支振动上，红外吸收和拉曼散射光谱相互补充、相辅相成。

极化激元色散关系

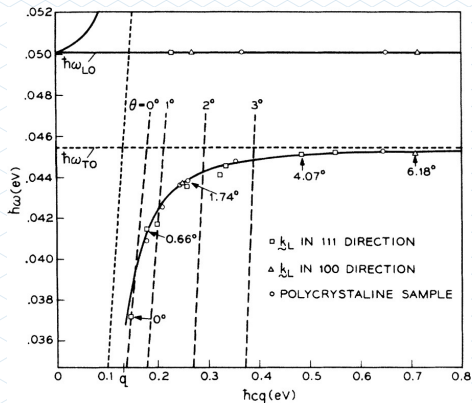


图 – Hopfield⁵在 1965 年利用拉曼散射测量的极化激元色散关系。 [*Phys. Rev. Lett.*, 15, 964 (1965)]

⁵获得 2024 年诺贝尔物理学奖, “以表彰他们在使用人工神经网络实现机器学习方面奠基性发现和发明”

- 对于**无限大晶体**，原则上只有 TO 模式与光耦合；对于**有限尺寸晶体**，LO 模式也可以被红外光激发。⁶

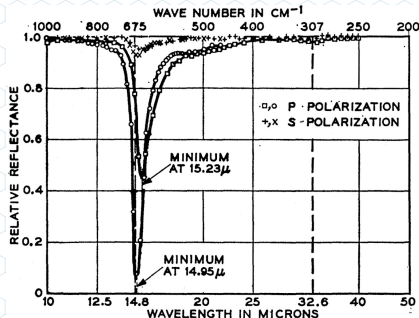
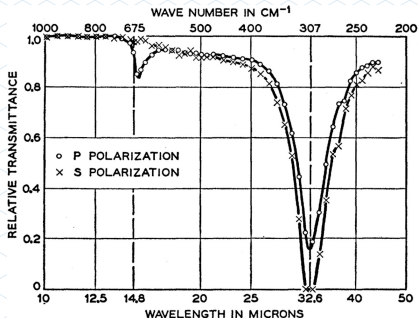


图 - LiF**薄膜**的红外反射光谱 [*Phys. Rev.* 130, 2193 (1963)]。LiF 的 TO/LO 频率分别为 $\omega_{\text{TO}} = 407 \text{ cm}^{-1}$ 和 $\omega_{\text{LO}} = 675 \text{ cm}^{-1}$ ，右图 LiF 是蒸镀在 Ag 衬底上。

⁶Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

1 声子探测技术一般描述

2 光学手段

3 非弹性中子散射

4 非弹性电子隧穿

非弹性中子散射

- ✿ 热中子能量 (~ 10 meV) 与晶格振动在同一量级, 波长 λ 与晶格常数 a 在同一量级

$$\lambda(\text{\AA}) = \frac{2\pi\hbar}{\sqrt{2M_n E}} \approx 9.04/\sqrt{E(\text{meV})} \quad (6)$$

□ 能量和准动量守恒: 保证能量、动量转移覆盖第一布里渊区

- ✿ 中子电中性, 穿透深度大; 跟原子核发生相互作用; 中子带自旋, 可以用来探测磁激发; 有些元素中子散射截面较大 (B、Cd、Gd) ...

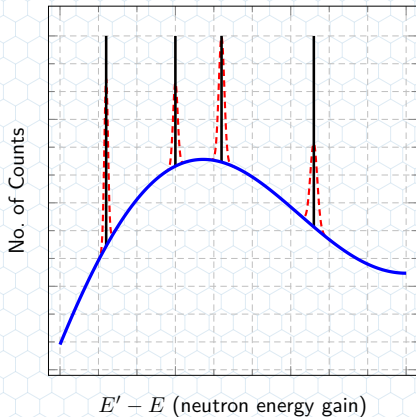
	ENERGY (meV)	TEMPERATURE (K)	WAVELENGTH (Å)	VELOCITY (m/s)
Cold Neutron	0.1–10	1.2–120	28.6–2.86	138–1383
Thermal Neutron	5–100	58–1160	4.04–0.90	978–4374
Hot Neutron	100–500	1160–5802	0.90–0.40	4374–9780

$$E = \frac{M_n v^2}{2} = \frac{\hbar^2 k^2}{2M_n}; \quad k = \frac{2\pi}{\lambda}; \quad T \sim E/k_B; \quad M_n = 1.675 \times 10^{-27} \text{ kg};$$

表 – 典型能量的中子及其对应的波长。

- ✗ 相互作用弱, 需要大样品; 中子源: 反应堆、散裂中子源...

单声子 vs 多声子过程



ONE-PHOTON PROCESS:

$$E' - E = \pm \hbar \omega_{\mathbf{q}\nu}$$

$$\mathbf{k}' - \mathbf{k} = \mathbf{q} \pm \mathbf{G}$$

$$\omega_{\nu}(\mathbf{q}) = \omega_{\nu}(\mathbf{q} \pm \mathbf{G})$$

图 - 中子散射强度与损失能量的依赖关系示意图。平滑的背景信号（蓝色曲线）是由于多声子散射过程，较尖锐且有一定展宽的信号（红色虚线）则是由单声子过程贡献。对于理想简谐晶体，单声子过程的展宽应为零（黑线）。(Ashcroft/Mermin Book, Chap. 24)

金 (Au) 的晶格振动色散谱

✿ 金 (Au) 是立方晶系 (面心立方)，原胞只有一个原子，因此金只有三支声学支振动模式。

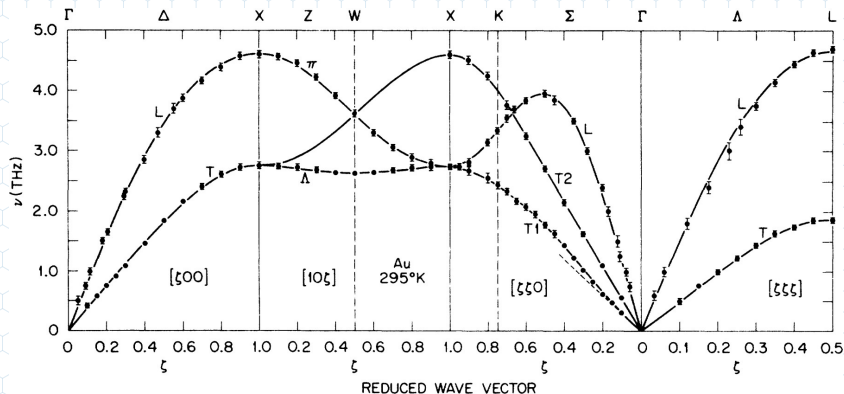


图 - 非弹性中子散射方法测量的295 K 下金 (Au) 的晶格振动色散 [*Phys. Rev. B* 8, 3493 (1973)]。

三轴光谱仪 (Triple-axis Spectrometer)

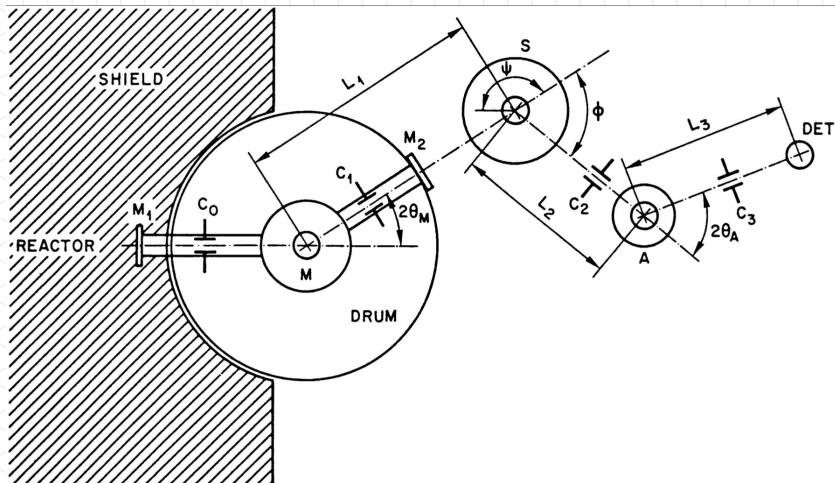


图 - 非弹性中子散射实验设备—三轴光谱仪示意图。利用单晶的单色系统 (Monochromator System, M)、样品台 (Sample Table, S) 和能量分析器 (Analyzer, A)。⁷

⁷Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

1 声子探测技术一般描述

2 光学手段

3 非弹性中子散射

4 非弹性电子隧穿

非弹性电子隧穿谱

✿ 非弹性电子隧穿谱 (*Inelastic electron tunneling spectroscopy, IETS*) 是利用扫描隧道显微技术测量振动的方法。

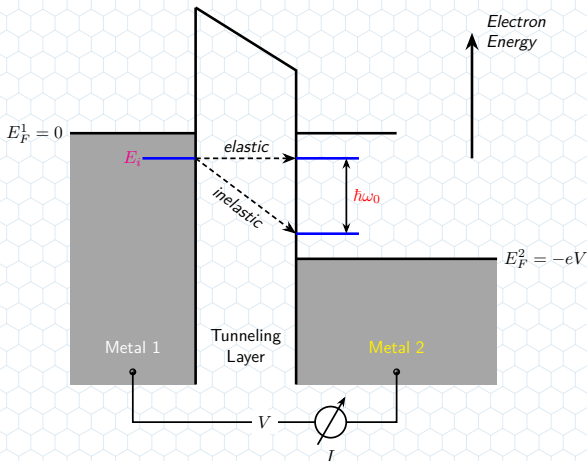


图 - 两个金属之间电子隧穿 (tunneling) 示意图, 非弹性隧穿额外增加了隧穿通道。⁸

⁸Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

✿ 根据 Brüesch 书，由非弹性隧穿贡献的电流：

$$I_i = Ck_B T \left[x \frac{e^x}{e^x - 1} \right] \quad \Leftarrow \quad x = (eV - \hbar\omega_0)/k_B T \quad (7)$$

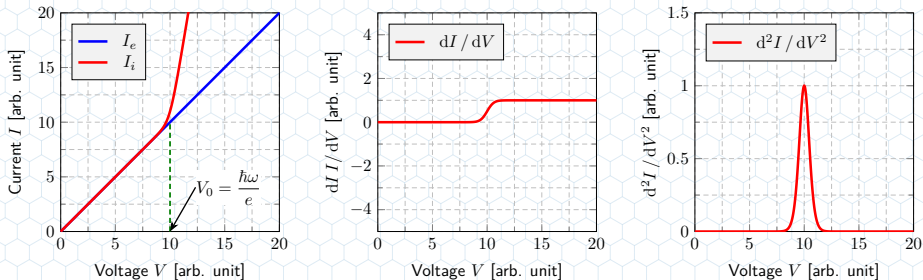


图 - 非弹性隧穿额外增加了隧穿通道，表现在电流电压 $I - V$ 曲线上斜率突然增加。⁹

✿ $I - V$ 曲线的一阶和二阶微分

$$\frac{dI_i}{dV} = eC \left[\frac{e^x(e^x - 1 - x)}{(e^x - 1)^2} \right]; \quad \frac{d^2I_i}{dV^2} = C \frac{e^2}{k_B T} \left[e^x \frac{e^x(x - 2) + x + 2}{(e^x - 1)^3} \right] \quad (8)$$

⁹Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

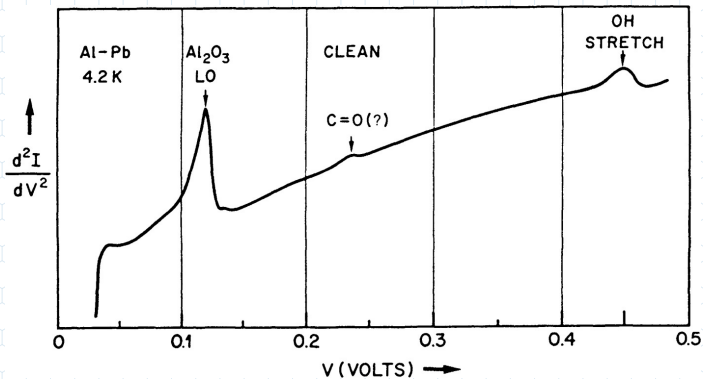


图 - 4.2 K 下 Al/Al₂O₃/Pb 结的非弹性隧穿谱。¹⁰

¹⁰Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

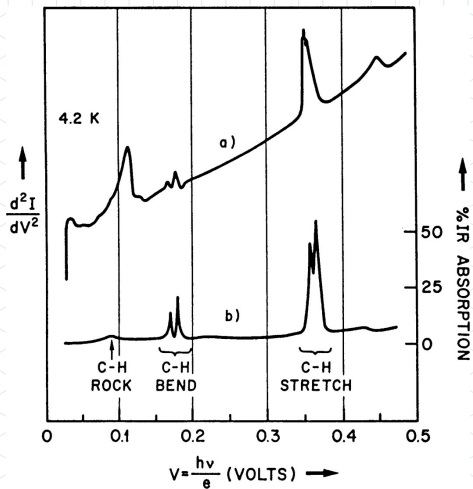


图 - Al/Al₂O₃/Pb 结的非弹性隧穿谱，其中绝缘层总蒸镀了有机分子。¹¹

¹¹Brüesch, P. (1986). "Phonons: Theory and Experiments II." Springer Berlin Heidelberg.

謝謝
Thanks