

## ФЕРМИ-РЕЗОНАНС ПОЛЯРИТОНОВ СО СВЯЗАННЫМИ И ДИССОЦИИРОВАННЫМИ СОСТОЯНИЯМИ ФОНОНОВ

*Ю.Н.Поливанов*

Сообщается об экспериментальном наблюдении методом комбинационного рассеяния света под малыми углами поляритонного ферми-резонанса, возникающего при пересечении поляритонной ветвью области диссоциированных и связанных состояний двух оптических фононов в кристалле  $\text{NiO}_3$ .

Поляритонный ферми-резонанс возникает при пересечении поляритонной ветвью области частот обертонов или составных тонов фундаментальных колебаний кристалла. В кристаллах в отличие от изолированных молекул в области обертонов и составных тонов (в спектрах второго порядка) в общем случае должны возникать не узкие линии, а широкие полосы — зоны двухчастичных (диссоциированных) состояний, которые обусловлены трансляционной симметрией. Кроме этого, при достаточно сильном ангармонизме в области спектра второго порядка наряду с зонами двухчастичных состояний возможно также образование связанных или квазисвязанных состояний (бифононов) [1, 2]. Причем поведение спектров, например, комбинационного рассеяния света (КРС) на поляритонах в условиях ферми-резонанса со связанными и диссоциированными состояниями существенно различно. Так, например, из теории развитой в работе [3], следует, что при ферми-резонансе со связанными состояниями в дисперсионной ветви поляритонов должна возникать энергетическая щель (разрыв) и дисперсия поляритонов в области связанного состояния ведет себя также, как и в случае резонанса с фундаментальным колебанием с той лишь разницей, что сила осцил-

латора связанного состояния определяется эффектами ангармонизма. В зоне двухчастичных состояний дисперсия поляритонов может иметь немонотонный характер и должна быть уширена вследствие "включения" дополнительного канала распада поляритонов на два свободных фонона.

Ранее уже сообщалось об экспериментальном наблюдении некоторых проявлений ферми-резонанса поляритонов с зонами двухчастичных состояний (см. [4] и ссылки в этом обзоре). Однако до сих пор экспериментально не удавалось обнаружить ситуации, при которой поляритонный ферми-резонанс происходит в условиях, когда от зоны двухчастичных состояний отщепляется связанное состояние и поляритоны взаимодействуют как с диссоциированными, так и со связанными состояниями двух фононов. В данной работе сообщается о первом экспериментальном наблюдении ферми-резонанса такого типа, проявляющегося в спектрах КРС на поляритонах.

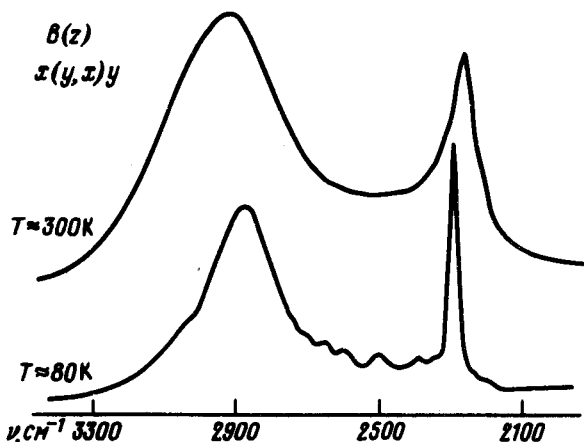


Рис. 1. Фрагменты спектров КРС на оптических фононах симметрии  $B(z)$ , полученные при температурах образца 300 и 80 К. Геометрия рассеяния  $x(y, z)y$ ;  $\nu$  — стоксов сдвиг рассеянного излучения

Эксперименты проводились на двуосном кристалле  $\text{NiO}_3$  (точечная группа симметрии 222). Фононный спектр первого порядка для этого кристалла полностью отнесен и может быть подразделен на четыре группы [5, 6]: 1) решеточные колебания ( $0 - 220 \text{ см}^{-1}$ ); 2) деформационные колебания группы  $\text{IO}_3$  ( $290 - 400 \text{ см}^{-1}$ ); 3) валентные колебания группы  $\text{IO}_3$  ( $600 - 845 \text{ см}^{-1}$ ); 4) колебания группы  $\text{OH}$ : неплоские деформационные (крутильные) ( $\sim 560 \text{ см}^{-1}$ ), плоские деформационные ( $\sim 1160 \text{ см}^{-1}$ ) и валентные ( $\sim 2940 \text{ см}^{-1}$ ). Таким образом, в области частот фононов с  $\nu > 1160 \text{ см}^{-1}$  в спектрах рассеяния должна наблюдаться только одна линия первого порядка с  $\nu \approx 2940 \text{ см}^{-1}$  в каждом типе симметрии колебаний ( $B(x)$ ,  $B(y)$ ,  $B(z)$  и  $A$ ). Детальное исследование КРС на оптических фононах в этой области спектра показали, что с низкочастотной стороны от колебания с  $\nu \approx 2940 \text{ см}^{-1}$  наблюдается широкая полоса в диапазоне до  $\sim 2270 \text{ см}^{-1}$ . Причем в спектрах рассеяния на полярных оптических фононах на низкочастотном краю этой полосы наблюдается также достаточно узкая линия с  $\nu = 2270 \text{ см}^{-1}$  интенсивность которой сравнима с интенсивностью линии первого порядка с  $\nu \approx 2940 \text{ см}^{-1}$  [7]. На рис. 1 в качестве примера приведен фрагмент спектра КРС на оптических фононах симметрии  $B(z)$  (рассеяние регист-

ировалось в направлении под  $90^\circ$  по отношению к распространению возбуждающего излучения), иллюстрирующий описанные выше особенности. Полоса между линией первого порядка  $2940 \text{ см}^{-1}$  и линией  $2270 \text{ см}^{-1}$  соответствует рассеянию света на двухчастичных состояниях, а линия  $2270 \text{ см}^{-1}$  — связанному состоянию [7]. Эти состояния возникли в области обертона колебания с  $\nu = 1160 \text{ см}^{-1}$ .

Возможность реализации такой ситуации в кристалле  $\text{NiO}_3$  обусловлена следующими обстоятельствами. Во-первых, колебания группы ОН обладают наиболее сильным ангармонизмом, что приводит к большей вероятности образования связанных состояний в области обертонов колебаний этой группы. Во-вторых, в данном случае особенно сильно проявляется ферми-резонанс колебания  $2940 \text{ см}^{-1}$  с обертоном колебания  $1160 \text{ см}^{-1}$ , что согласно [3], также существенно способствует образованию связанных состояний. Значительное проявление ферми-резонанса в данном случае обусловлено сильным ангармонизмом колебаний группы ОН и тем, что основной тон ( $\nu = 2940 \text{ см}^{-1}$ ) и колебание, образующее резонирующий обертон ( $2 \times 1160 \text{ см}^{-1}$ ) являются возбуждениями одной и той же группы ОН.

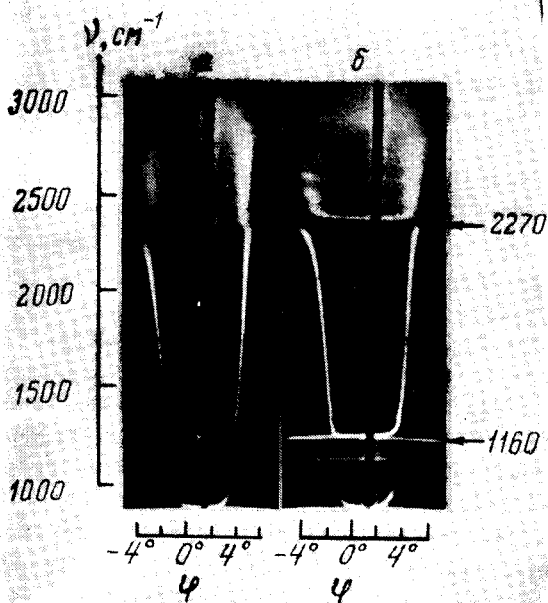


Рис. 2. Фрагменты спектров КРС на поляритонах смешанной  $B(x) + B(z)$  симметрии, полученные при температурах образца 300К (а) и 80К (б).  $\phi$  — угол рассеяния внутри кристалла

Исследование КРС на поляритонах проводилось методом рассеяния под малыми углами с помощью фотографической методики [4] на спектрографе ИСП-51 при возбуждении рассеяния излучением аргонового лазера с длиной волны  $5145 \text{ \AA}$ . При этом на фотопленке непосредственно получается частотно-угловой спектр КРС на поляритонах, т.е. зависимость частоты рассеянного света  $\nu_s$  (или поляритона  $\nu$ ) от угла  $\phi$  между направлениями распространения возбуждающего и рассеянного света. Возбуждающее излучение распространялось и было поля-

ризовано в кристаллографической плоскости  $xz$ . Регистрируемое рассеянное излучение также распространялось в плоскости  $xz$  и было поляризовано вдоль оси  $y$ . Угол между направлением распространения возбуждающего излучения и осью  $z$  кристалла составлял  $45^\circ$ . Такая геометрия рассеяния была выбрана, чтобы выполнялись условия синхронизма для наблюдения поляритонов в интересующей нас области спектра.

На рис. 2 представлены частотно-угловые спектры КРС на поляритонах кристалла  $\text{NiO}_3$ , полученные при указанной выше геометрии рассеяния. Из спектра рис. 2, *a* видно, что в области частоты связанного состояния ( $2270 \text{ см}^{-1}$ ) поляритонная ветвь испытывает разрыв (расщепление), а в зоне диссоциированных состояний сильно уширяется. При этом наблюдается значительное перераспределение в интенсивности рассеяния на поляритонах, диссоциированных и связанных состояниях. Наблюдаемое поведение спектров рассеяния находится в хорошем соответствии с теорией, развитой в работе [3]. Асимметрия частотно-угловых спектров рис. 2 обусловлена тем, что рассеяние происходит на смешанных  $B(z) + B(x)$  поляритонах. Из этих спектров также следует, что сила осциллятора бифона симметрии  $B(z)$  больше силы осциллятора бифона симметрии  $B(x)$ , так как расщепление поляритонной ветви вблизи бифона в области положительных углов рассеяния меньше, чем в области отрицательных углов. Следует также отметить, что бифоны симметрии  $B(x)$  четко проявляются лишь при охлаждении кристалла [7]. Именно поэтому при комнатной температуре образца не наблюдается четкий разрыв поляритонной ветви в области положительных углов рассеяния.

При охлаждении кристалла до температуры 80К ширина линии связанного состояния (рис. 1) уменьшается гораздо сильнее, чем линии первого порядка ( $2940 \text{ см}^{-1}$ ), что обусловлено уменьшением вероятности диссоциаций бифона на два свободных фона. Кроме этого, при охлаждении кристалла в зоне двухчастичных состояний возникает структура (рис. 1), которая приводит к разрывам поляритонной ветви (рис. 2, *b*) внутри зоны. Причина появления такой структуры пока не ясна. Можно предположить, например, что она связана с критическими точками в плотности состояний, образованием квазисвязанных состояний внутри зоны, либо с интерференцией двухчастичных и трехчастичных возбуждений. Однако для однозначной интерпретации возникновения структуры внутри зоны двухчастичных состояний при охлаждении кристалла необходимы дополнительные исследования.

В заключение автор выражает глубокую признательность А.М.Прохорову и П.П.Пашину за поддержку работы и Г.Ф.Добржанскому за предоставление ориентированных образцов кристалла  $\text{NiO}_3$ .

Физический институт  
им. П.Н.Лебедева  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
27 июля 1979 г.

### Литература

- [1] J.Ruvalds, A.Zawadowski. Phys. Rev., B: 2, 1172, 1970.
- [2] В.М.Агранович. ФТТ, 12, 562, 1970.

- [3] В.М.Агранович, И.Й.Лалов. ФТТ, 13, 1032, 1971; ЖЭТФ, 61, 656, 1971.
- [4] Ю.Н.Поливанов. УФН, 126, 185, 1978.
- [5] Е.А.Попова, И.П.Петрова: "Спектроскопия диэлектриков и процессы переноса". Материалы Всесоюзной конференции "Физика диэлектриков и перспективы ее развития", т. 1, с. 45, изд. Наука, Л., 1973.
- [6] M.Krauzman, M. le Postollec, J.P.Mathieu. Phys. Stat. Sol. (b), 60, 761, 1973.
- [7] Ю.Н.Поливанов. ФТТ, 21, 1892, 1979.
-