

ЭФФЕКТЫ ИНТЕРФЕРЕНЦИИ ПРИ ФЕРМИ-РЕЗОНАНСЕ ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ С ЗОНОЙ ДВУХЧАСТИЧНЫХ СОСТОЯНИЙ

Ю.Н.Поливанов, К.А.Прохоров

На примере кристалла формиата лития впервые показано, что в условиях ферми-резонанса возможно возникновение провалов в интенсивности света, рассеянного на двухчастичных состояниях.

Явление ферми-резонанса (ФР) в кристаллах имеет ряд особенностей по сравнению со случаем изолированных молекул [1 — 4]. Это обусловлено тем, что дисперсия фононов в зоне Бриллюэна приводит в общем случае к появлению в фоновых спектрах второго порядка широких энергетических зон двухчастичных состояний, отсутствующих в спектрах свободных молекул. Мы сообщаем об экспериментальном наблюдении новых особенностей, возникающих в кристаллах при ФР оптических фононов с зоной двухчастичных состояний и проявляющихся в спектрах комбинационного рассеяния света (КРС).

Исследовалось КРС в двуосном кристалле формиата лития моногидрата $\text{LiHCOO} \cdot \text{H}_2\text{O}$, принадлежащем точечной группе симметрии $mm2$. В кристаллах этой группы в КРС активны колебания четырех типов симметрии, три из них являются полярными. В элементарной ячейке формиата лития содержится четыре формульных единицы, что приводит к богатому фоновому спектру. В частности, реализуется ситуация, когда частоты продольной и поперечной компонент слабого полярного колебания попадают в зону двухчастичных состояний.

Для регистрации спектров КРС использовался двойной монохроматор с голографическими решетками фирмы Кодерг при спектральной ширине щели $2,5 \text{ см}^{-1}$. Возбуждение осуществлялось излучением аргонового лазера с длиной волны $514,5 \text{ нм}$.

На рисунке представлены фрагменты спектров КРС формиата лития и геометрии рассеяния, соответствующие этим спектрам.

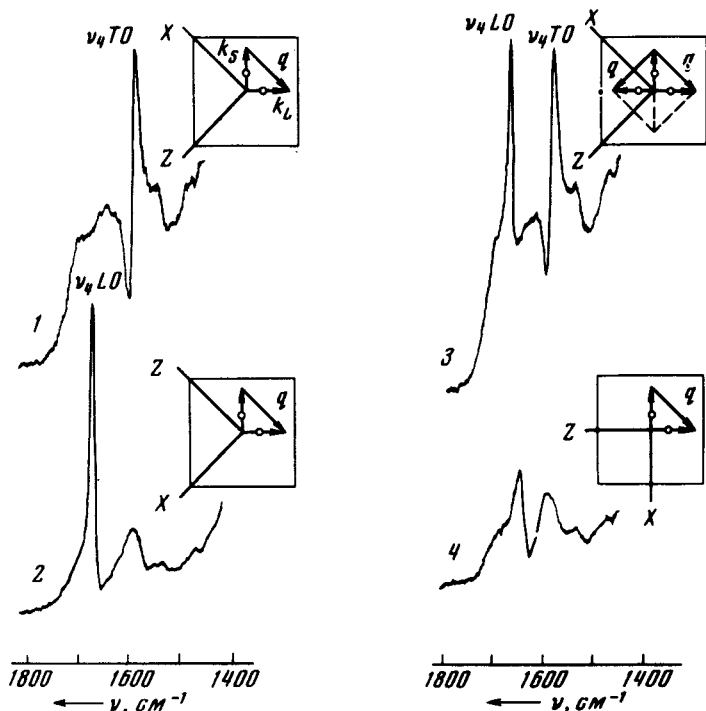
Спектр 1 получен при рассеянии света на поперечных (ТО) колебаниях симметрии $A_1(z)$. Линия $\nu_4(\text{ТО}) = 1580 \text{ см}^{-1}$ относится к ассиметричному валентному колебанию формиатного иона $(\text{O} - \text{C} - \text{O})$ [5].

Спектр 2 получен при КРС на продольных (ЛО) колебаниях симметрии $A_1(z)$. Частота продольной компоненты фундаментального колебания $\nu_4(\text{ЛО})$ равна 1665 см^{-1} .

Широкую полосу, наблюдающуюся в этих спектрах в области от 1520 до 1750 см^{-1} , мы относим к зоне двухчастичных состояний, образованной двумя оптическими фононами. В пользу такого отнесения говорят следующие соображения: а) значительная ширина полосы, лежащей в области узких внутримолекулярных колебаний (объяснение происхождения этой полосы присутствием кристаллизационной воды не подтверждается тем фактом, что такая же полоса наблюдается в спектрах исследованных нами безводных формиатов бария и стронция); б) ре-

зультаты исследования КРС формиатов [6] говорят о том, что в рассматриваемой области частот имеется только одно фундаментальное колебание (слабые линии, наблюдаемые в этой области рядом авторов [6], были отнесены к линиям второго порядка); в) особенности температурной зависимости формы и интенсивности полосы ¹⁾ свидетельствуют в пользу отнесения этой полосы к зоне двухчастичных состояний.

В приведенном спектре 1 мы обращаем внимание на особенность наблюдаемого нами ФР, заключающуюся в интерференции между поперечным оптическим фононом и зоной двухчастичных состояний, которая приводит к возникновению в широкой зоне резкого провала на месте высокочастотного края фундаментального колебания (частота положения провала 1592 см^{-1}).



Спектры комбинационного рассеяния света в кристалле формиата лития; ν — частота стоксова сдвига. Для каждого спектра представлена геометрия рассеяния относительно кристаллографических осей X и Z. k_L , k_S и q — волновые векторы падающей, рассеянной и фононной волн соответственно. При записи спектра 2 интенсивность света уменьшена в два раза

При другом положении кристалла в спектре 2 чистого LO колебания интерференция приводит только к заметной асимметрии формы:

¹⁾ Результаты исследования температурной зависимости спектров КРС формиата лития моногидрата будут опубликованы.

линии продольного колебания. В этом спектре, в отличие от спектра 1 на частоте 1592 см^{-1} не наблюдается никакого провала и прослеживается форма линии второго порядка.

Спектр 3 соответствует геометрии рассеяния, при которой одновременно возбуждаются ТО и LO колебания (для этого падающий и рассеянный в кристалле свет отражался с помощью зеркал в обратном направлении). Хорошо видно, что характер резонансного взаимодействия не изменился. Сильная компенсация вследствие интерференции между одно- и двухчастичными состояниями наблюдается (частота 1592 см^{-1}) только на месте высокочастотного края линии поперечного колебания $\nu_4(\text{TO})$.

Нами была реализована еще одна геометрия рассеяния, при которой дипольно-активный фонon распространяется в кристалле в плоскости XZ под углом 45° к оси Z. В этом случае фонonное возбуждение отвечает смешанному колебанию $A_1(z) + B_1(x)$. Частота такого фонона должна принимать промежуточное значение между частотами чистых ТО и LO колебаний. В спектре 4, записанном при такой геометрии рассеяния, наблюдается полная компенсация линии первого порядка. Отличающееся по сравнению со спектром 1 значение частоты, при которой наблюдается провал (1620 см^{-1}), обусловлено влиянием на условие ФР пространственной анизотропии кристалла.

Явление ФР оптических фонonов с зоной двухчастичных состояний наблюдалось и ранее [7]. При этом, однако, условие ФР реализовывалось при взаимодействии мягкой моды сегнетоэлектрического кристалла с зоной, образованной двумя акустическими фонonами. Из-за слабого, по-видимому, взаимодействия оптических фонonов с зоной двух акустических фонonов в работе [7] наблюдалось лишь изменение формы линии и перераспределение интенсивности света, рассеянного на одночастичных и двухчастичных возбуждениях [4,7].

Таким образом, нами экспериментально продемонстрировано, что в кристаллах при условиях ФР в результате интерференции вкладов одночастичных и двухчастичных возбуждений возможно появление провалов (компенсации) в интенсивности рассеянного света. Это явление, согласно теории [1-3], в принципе возможно при достаточно сильном взаимодействии между одно- и двухчастичными состояниями, обусловленном эффектами ангармонизма. Аналитические выражения, описывающие интенсивность КРС в условиях ФР содержат большое число неопределенных параметров, что пока затрудняет проведение количественного сравнения результатов теории и эксперимента.

Авторы выражают благодарность И.С.Резу и Л.И.Кузнецовой за предоставление ориентированных образцов формиата лития, а также П.П.Пашину и Л.А.Кулевскому за постоянное внимание к работе.

Литература

- [1] В.М.Агранович, И.Й.Лалов. ФТТ, 13, 1032, 1971; ЖЭТФ, 61, 656, 1971.
- [2] И.Й.Лалов. ФТТ. 16, 2476, 1974.
- [3] J.Ruvalds, A.Zawadowski. Phys. Rev., B2, 1172, 1970.
- [4] J.F.Scott. Rev., Mod. Phys., 46, 83, 1974.
- [5] J.D.Donaldson, J.F.Knifton, S.D.Ross. Spectrochimica Acta, 20, 847, 1964; M.Cadene. Compt. Ren. Acad. Sc. Paris., B270, 909, 1970; R.S.Krishnan, P.S.Ramanujam. Indian J.Pure Appl. Phys., 9, 910, 1971.
- [6] K.Ito, H.J.Bernstein. Canad. J. Chem., 34, 170, 1956; A.M.Heyns. J. Mol. Structure, 18, 471, 1973.
- [7] J.F.Scott. Phys. Rev. Lett., 24, 1107, 1970.
-