

ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ НА ПОЛЯРИТОНАХ  
В ПЛАВЛЕНОМ КВАРЦЕ

В.Н.Денисов, Б.Н.Маврин, В.Б.Подобедов,  
Х.Е.Стерин

Сообщается о первом наблюдении объемных поляритонов в аморфном веществе — кварцевом стекле. Установлено, что в плавленом кварце пространственная протяженность оптических колебательных мод составляет не менее 1 мкм.

В настоящее время принято считать (например, [1, 2]), что оптические колебания в стеклах сильно локализованы, т.е. протяженность  $\Delta x$  возбуждаемой моды мала ( $\Delta x \sim 10 - 100 \text{ \AA}$  [3]). Именно в этом предположении и построена широко используемая теория интенсивности комбинационного рассеяния света в стеклах [3, 4]. Столь малым  $\Delta x$  соответствуют большие неопределенности значений волнового вектора  $k$  возбуждаемого колебания —  $\Delta k \approx 1/\Delta x = 10^6 \div 10^7 \text{ см}^{-1}$ , что значительно превышает значения волнового вектора  $k_i$  возбуждающих фотонов ( $k_i \sim 10^3 \text{ см}^{-1}$ ). Т.е., в стеклах не существует правил отбора по волновому вектору (нарушение закона сохранения квазиимпульса) [1 — 4]. Следствием этого было бы отсутствие заметных изменений в спектрах рассеяния стекол при уменьшении угла рассеяния  $\theta$  от  $90^\circ$  до  $0^\circ$ . Известно, что в спектрах рассеяния кристаллов при уменьшении  $\theta$  могут наблюдаться поляритонные эффекты — зависимость частоты дипольного колебания от угла  $\theta$  или от волнового вектора колебания [5]. Нетрудно видеть, что вследствие предполагаемого несохранения квазиимпульса в стеклах поляритоны наблюдались бы при любых углах  $\theta$  в виде низкочастотных крыльев линий поперечных колебаний, т.е. при любом  $\theta$  раскрывалась бы одновременно вся поляритонная область перестройки  $\omega(k)$ . Следовательно, исследование объемных поляритонов в стеклах могло бы подтвердить или отвергнуть справедливость предположений, используемых при построении как современных теорий комбинационного рассеяния света в стеклах, так и физических моделей стекла.

В настоящей работе исследовалось гиперкомбинационное рассеяние (ГКР) в плавном кварце под малыми углами  $\theta$ . Спектры ГКР регистрировались с помощью многоканального фотоэлектрического спектрометра [6]. Для наблюдения рассеянного света под малыми углами  $\theta$  использовалась та же схема с кольцевыми диафрагмами, что и в [7]. Углы сбора  $\Delta\theta$  рассеянного света, прошедшего через кольцевую диафрагму, и угол расходимости возбуждающего излучения составляли по  $\sim 1^\circ$ .

Ранее [8] мы установили, что при рассеянии под углом  $\theta = 90^\circ$  в спектрах ГКР плавного кварца наблюдаются четыре пары компонент поперечно-продольного ( $TO - LO$ ) расщепления дипольных колебаний: 470 ( $TO$ ) - 530 ( $LO$ ), 820 ( $TO$ ) - 825 ( $LO$ ),  $\sim 1180$  ( $TO$ ) -  $\sim 1180$  ( $LO$ ) и 1065 ( $TO$ ) - 1250 ( $LO$ )  $\text{см}^{-1}$  (рис.1, а). Спектр ГКР, полученный при наблюдении вперед ( $\theta = 0^\circ$ ,  $\Delta\theta \approx 14^\circ$ ) (рис.1, б), существенно отличается от спектра при  $\theta = 90^\circ$ : отсутствует линия 470  $\text{см}^{-1}$  и вместо линии  $\sim 820$   $\text{см}^{-1}$  появляется широкая полоса  $\sim 600 - 1050$   $\text{см}^{-1}$ . Эти различия спектров ГКР при изменении  $\theta$  указывают на существование зависимости интенсивности линий плавного кварца от величины волнового вектора  $k$ .

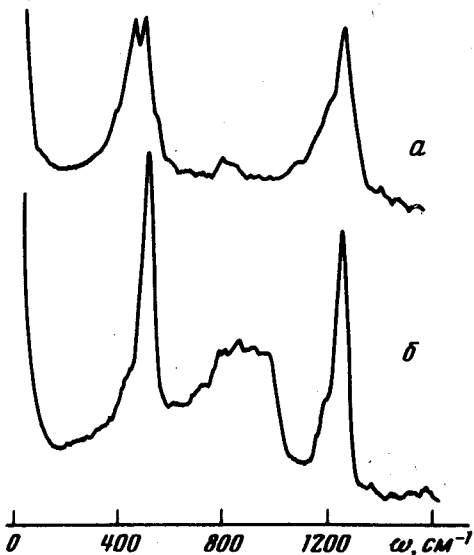


Рис.1. Спектры ГКР плавного кварца: а -  $\theta = 90^\circ$ , б - рассеяние вперед ( $\theta = 0^\circ$ ,  $\Delta\theta \approx 14^\circ$ )

На рис.2 приведены спектры ГКР для некоторых углов  $\theta$ , задаваемых кольцевыми диафрагмами с угловой шириной  $\Delta\theta \approx 1^\circ$ . Видно, что на месте широкой полосы 600 - 1050  $\text{см}^{-1}$ , наблюдаемой при  $\theta = 0^\circ$  и  $\Delta\theta \approx 14^\circ$  (рис.1, б), в каждом спектре появляются по две более узкие полосы, положение максимумов которых зависит от угла  $\theta$ . С ростом  $\theta$  частоты узких полос увеличиваются от 670 до 820  $\text{см}^{-1}$  и от 840 до 1015  $\text{см}^{-1}$  соответственно.

Заметим, что интенсивности  $LO$ -линий 530, 1250  $\text{см}^{-1}$  и обсуждаемых полос в области 600 - 1050  $\text{см}^{-1}$  по-разному зависят от угла сбора  $\Delta\theta$  рассеянного света: интенсивности  $LO$ -линий пропорциональны углу  $\Delta\theta$ , а полосы в области 600 - 1050  $\text{см}^{-1}$ , подобно поляритонным линиям в кубических кристаллах, с ростом  $\Delta\theta$  лишь уширяются.

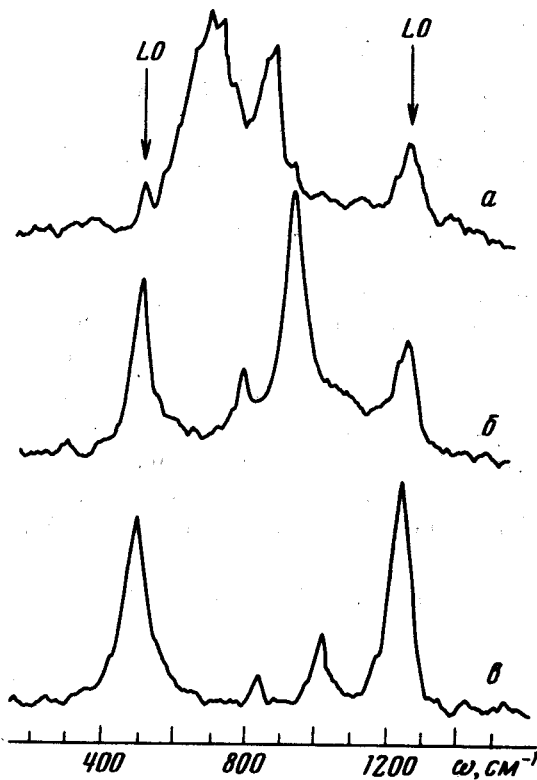


Рис.2. Поляритонные спектры ГКР плавленого кварца при некоторых углах рассеяния:  $\theta$ : а -  $1,4^\circ$ , б -  $3,3^\circ$  и в -  $6,1^\circ$

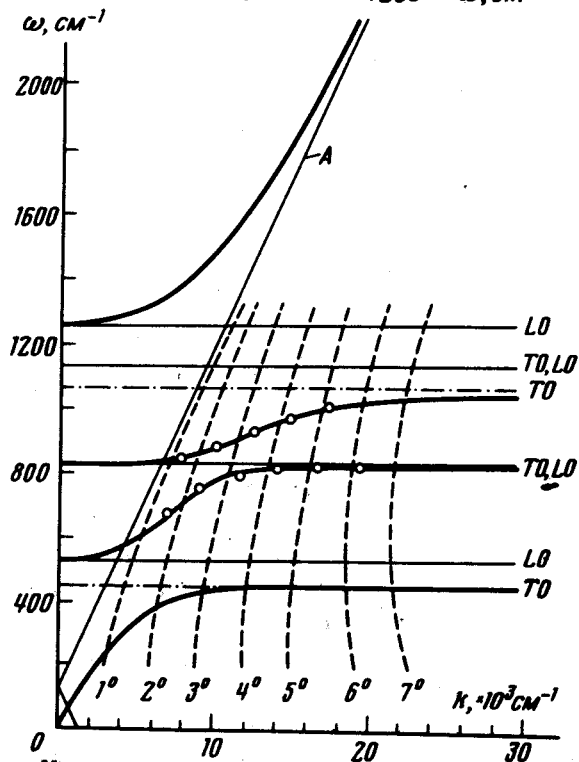


Рис.3. Дисперсионные зависимости поляритонов в плавленом кварце: сплошные линии - расчетные кривые  $\omega(k)$ , точки - экспериментальные значения  $\omega(k)$ . Линия А - зависимость  $\omega(k)$  при  $\theta = 0^\circ$  [7]. Пунктирные кривые - семейство расчетных кривых  $\omega(k)$  при других углах  $\theta_i = \text{const}$

Указанные особенности рассеяния под малыми углами позволяют утверждать, что узкие полосы в области  $600 - 1050 \text{ см}^{-1}$  соответствуют поляритонам, связанными с  $TO$ -колебаниями  $820$  и  $1065 \text{ см}^{-1}$  соответственно.

По экспериментальным зависимостям  $\omega(\theta)$  были найдены дисперсионные зависимости  $\omega(k)$  поляритонов в плавленном кварце (рис.3, точки). Представляло интерес сравнить экспериментальные зависимости  $\omega(k)$  с рассчитанными для стекла по методу, который до сих пор применялся только для кристаллов [7]. Используя приведенные выше значения  $TO$ - и  $LO$ -частот и  $\epsilon_{\infty} = 2,1$ , мы вычислили ожидаемый ход поляритонных кривых (рис.3, сплошные линии).

ГКР может происходить лишь на тех поляритонах, значения  $k$  и  $\omega$  которых лежат справа от линии  $\omega(k)|_{\theta=0}$  (линия А, рис.3). Видно, что поляритоны верхней ветви запрещены в ГКР, а на трех нижних ветвях  $TO$ -поляритонов ожидается значительный сдвиг частот. На самой нижней ветви интенсивность поляритонного рассеяния оказалась очень малой. Поэтому были исследованы лишь более высокочастотные ветви, связанные с  $TO$ -колебаниями 820 и 1065  $\text{см}^{-1}$ . Удовлетворительное совпадение экспериментальных точек  $\omega(k)$  с расчетными кривыми свидетельствует о пригодности обычно применяемого для кристаллов метода расчета  $\omega(k)$  и в случае стекол.

В процессе измерения мы могли уверенно различать по частоте объемные поляритоны, волновые векторы которых отличались на  $(2 \div 3) \times 10^3 \text{ см}^{-1}$  (рис.3, точки). Кроме того, по нашим измерениям на частоте 900  $\text{см}^{-1}$  ширина линии поляритона в  $k$ -пространстве составляет  $\sim 2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ . Следовательно, можно утверждать, что волновой вектор поляритона в плавленном кварце сохраняется по крайней мере с точностью  $\Delta k \sim 2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ . Тогда из соотношения неопределенности следует, что поляритонная мода в этом стекле локализована в объеме, линейный размер  $\Delta x$  которого не менее 1  $\mu\text{м}$ .

Этот экспериментальный результат находится в противоречии с установленной путем модельных расчетов величиной  $\Delta x \sim 10 - 100 \text{ \AA}$  [1, 3]. Он позволяет заключить, что в плавленном кварце поляритоны "не видят" неоднородностей, обусловленных характерным для стекол топологическим и угловым беспорядком, вероятно, благодаря большой длине волны поляритона по сравнению с размерами неоднородностей и, следовательно, область корреляции атомных смещений при оптических колебаниях в стекле, как и в кристалле, должна быть большой.

В заключение отметим, что исследования ГКР под малыми углами позволяют не только восстанавливать дисперсионные зависимости поляритонов в стеклах, но и выполнять отнесение линий спектра ГКР к  $TO$ - или  $LO$ -колебаниям, что невозможно сделать другими способами.

Институт спектроскопии  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
13 июня 1980 г.

### Литература

- [1] P.Dean. Rev. Mod. Phys., 44, 127, 1972.  
[2] М.Х.Бродский. Кн.: Рассеяние света в твердых телах, под ред. М.Кардоны, М., изд. Мир, 1979, стр. 239.

- [3] R.Shuker, R.W.Gamon. Кн. : Light Scattering in Solids, ed. by M.Balkanski. Paris, 1971, p.334.
- [4] R.Shuker, R.W.Gamon. Phys. Rev. Lett., 25, 222, 1970.
- [5] Ю.Н.Поливанов. УФН, 126, 185, 1978.
- [6] В.Н.Денисов, Б.Н.Маврин, В.Б.Подобедов, Х.Е.Стерин. ЖЭТФ, 75, 684, 1978.
- [7] В.Н.Денисов, Б.Н.Маврин, В.Б.Подобедов, Х.Е.Стерин. Письма в ЖЭТФ, 31, 111, 1980.
- [8] В.Н.Денисов, Б.Н.Маврин, В.Б.Подобедов, Х.Е.Стерин. ФТТ, 20, 3485, 1978.
-