

КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ
В ОБЛАСТИ ВНУТРИМОЛЕКУЛЯРНЫХ КОЛЕБАНИЙ В ХЛОРИСТОМ АММОНИИ

Г. Г. Митин, В. С. Горелик

УДК 535.361

Исследовано комбинационное рассеяние (КР) на поляритонах в кубическом кристалле NH_4Cl при низких температурах. Обнаружено, что в области зоны двухчастичных колебательных возбуждений $\nu_4(\text{F}_2) + \nu_1(\text{F}_1)$ в поляритонном спектре имеет место разрыв. На основе полученных результатов построены дисперсионные кривые для поляритонов в обсуждаемой области спектра.

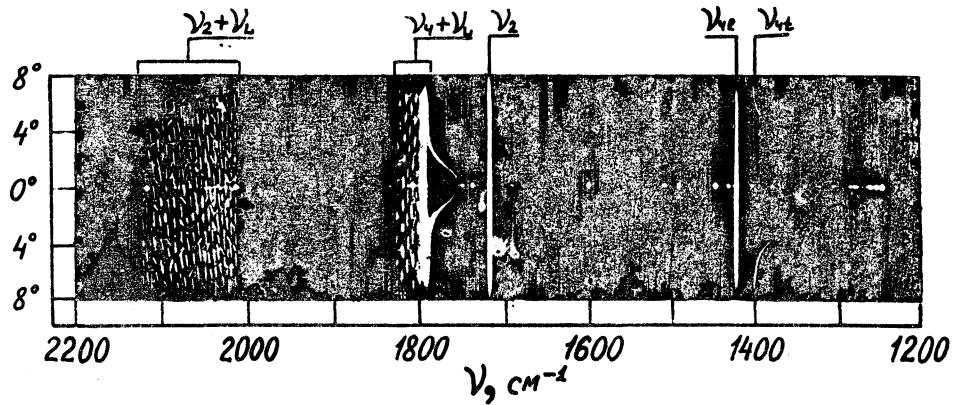
В работе /1/ исследовались особенности пересечения поляритонной ветви с зоной двухчастичных состояний в кристалле NH_4Cl в целях сопоставления с теорией /2/. При этом было обнаружено существование разрыва на поляритонной ветви в области $2\nu_4(\text{F}_2)^*$.

В настоящей работе сообщается о результатах исследования комбинационного рассеяния (КР) на поляритонах в области первого полярного колебания $\nu_4(\text{F}_2)$ и вырожденного неполярного колебания $\nu_2(\text{E})$ группы аммония в NH_4Cl .

Регистрация спектров проводилась на монокристаллах ($\sim 1\text{см}$) с гранями (100), (010) и (001). Были сделаны снимки с геометриями $y(zx)y + \Delta z$ и $y(zx,zz)y + \Delta z$. Возбуждение спектров проводилось с помощью аргонового лазера с мощностью ~ 1 вт в каждой из линий генерации ($\lambda = 4880 \text{ \AA}$ и $\lambda = 5145 \text{ \AA}$). Исследования были выполнены при температуре образца $T=80^\circ \text{K}$ (в вакуумном азотном криостате). Для фотографирования использовался спектрограф СТЭ-1.

Полученный спектр в области $1200-2200 \text{ см}^{-1}$ приведен на рис.1. В спектре присутствуют комбинационные сателлиты, обусловленные фундаментальными колебаниями $\nu_{4t}(\text{F}_2)$, $\nu_{41}(\text{F}_2)$ и $\nu_2(\text{E})$, а также две

ж) Описание колебательного спектра хлористого аммония приведено в работах /3,4/.



Р и с.1. Общий вид спектра КР под малыми углами в области $1200 + 2200 \text{ cm}^{-1}$

зоны двухчастичных состояний ^{*}, возникающие в результате комбинации либрационного колебания $\nu_L(F_1)$ группы $(NH_4)^+$ с фундаментальными колебаниями. Как было выяснено из поляризационных измерений /4/, обе обсуждаемые зоны являются дипольно-активными и, таким образом, могут приводить к искажению поляритонных ветвей.

На приведенном рисунке проявляется поляритонная ветвь вблизи $\nu_{4t}(F_2)$, а также в области зоны $\nu_4(F_2) + \nu_L(F_1)$. В то же время, как видно из рис.1, в области зоны $\nu_2(E) + \nu_L(F_1)$ КР на поляритонах не наблюдается.

На рис.2 приведена дисперсионная кривая (сплошная линия) для поляритонов в обсуждаемой области спектра, построенная на основе полученных экспериментальных результатов. На этом же рисунке пунктиром приведена соответствующая теоретическая зависимость

$$\nu = \frac{K}{2\pi\sqrt{\epsilon(\nu)}} \quad (I)$$

где

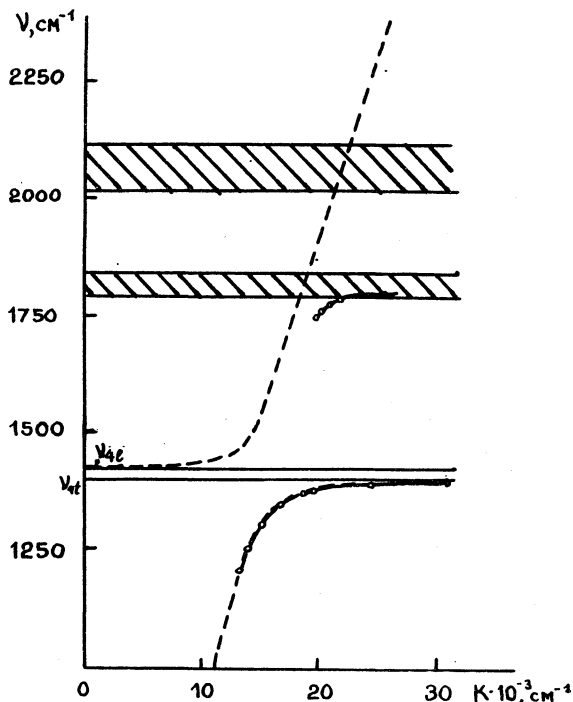
$$\epsilon(\nu) = \epsilon_\infty \prod_j \frac{\nu_{jt}^2 - \nu^2}{\nu_{jt}^2 - \nu^2}$$

$\nu_{jt} = 188, 1400, 3052, 3122 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_{j1} = 275, 1418, 3070, 3159 \text{ см}^{-1}$ в соответствии с данными /3/.

Как видно из рис.2, наблюдается хорошее согласие между обеими кривыми в области фундаментального колебания $\nu_4(F_2)$. В то же время в области составного тона $\nu_4(F_2) + \nu_L(F_1)$ обсуждаемые кривые существенно различаются: на экспериментальной кривой образуется сильное искривление, свидетельствующее об образовании разрыва в поляритонном спектре на этом участке. Такой факт, по-видимому, обусловлен сильным взаимодействием световых волн с двухчастичными механическими возбуждениями в этой области спектра. Это подтверждается также данными работы /5/ по спектрам пропускания, полученными для тонких пленок NH_4Cl при низких температурах. В этой работе было обнаружено, что в области $\nu_4(F_2) + \nu_L(F_1)$ имеет место сильное поглощение света (в максимуме соответствующей полосы коэффициент пропускания для пленки толщиной 3,5 мкм составляет около 10%).

^{*} В работе /4/ на основе поляризационных измерений было установлено, что связанные состояния в области обсуждаемых зон не возникают.

В области второй зоны $\nu_2(E) + \nu_L(F_1)$ КР на поляритонах не наблюдается. Это свидетельствует о том, что на этом участке поляритонного спектра разрыв или вообще отсутствует, или является



Р и с.2. Дисперсионные кривые для поляритонов, полученные без учета (пунктирная прямая) и с учетом (сплошная кривая) двухчастичных состояний

ничтожно малым. Таким образом, можно полагать, что поляритонная ветвь без существенных искажений пересекает обсуждаемую зону двухчастичных состояний. В инфракрасном спектре /5/ в области $\nu_2(E) + \nu_L(F_1)$ пропускание оказывается существенно большим, чем для полосы $\nu_4(F_2) + \nu_L(F_1)$ (в максимуме полосы пленка толщиной 3,5 мкм пропускает около 70%). Это свидетельствует об уменьшении эффективности взаимодействия световых волн с механическими колебаниями в данном случае.

Отметим также, что разрыв поляритонной ветви в области зон двухчастичных состояний $\nu_4(F_2) + \nu_L(F_1)$ существенно отличается по своей природе от разрывов, обусловленных дипольно-активными фундаментальными колебаниями. В последнем случае спектральная область разрыва характеризуется сильным коэффициентом отражения (излучение не проникает вглубь кристалла вследствие отражения). В случае же разрыва, обусловленного зоной двухчастичных состояний, имеет место сильное поглощение, сопровождающееся распадом квантов света на диссоциированные механические возбуждения кристалла. При этом длина свободного пробега фотонов в образце, как следует из данных по пропусканию /5/, оказывается очень малой (~ 1 мкм).

Таким образом, следует сделать вывод о том, что в области зоны дипольно-активных двухчастичных возбуждений возможны как небольшие изменения в поляритонном спектре КР в соответствии с /2/, так и радикальная перестройка закона дисперсии с образованием разрыва на поляритонном участке в спектре КР. В последнем случае реальная дисперсионная кривая может сильно отличаться от теоретической зависимости (I), полученной без учета двухчастичных состояний.

В заключение, хотим выразить свою признательность В. М. Аграновичу за обсуждение полученных результатов и ценные замечания.

Поступила в редакцию
7 мая 1975 г.

Л и т е р а т у р а

1. Г. Г. Митин, В. С. Горелик, Л. А. Кулевский, Ю. Н. Поливанов, М. М. Сушинский. ЖЭТФ, 68, 1757 (1975).
2. В. М. Агранович. "Дополнение" в книге А. Пуле, Ж. П. Матье "Колебательные спектры и симметрия кристаллов" изд. "Мир", М, 1973 г., стр. 408.
3. Г. Г. Митин, В. С. Горелик, М. М. Сушинский. ФТТ, 16, 2956 (1974).
4. Г. Г. Митин, В. С. Горелик, М. М. Сушинский, А. А. Халезов. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 10, 8 (1974).
5. N. E. Schumaker and C. W. Garland. The Journ. of Chem. Phys., 52, 392 (1970).