

УДК 535.375,01

ПОЛЯРИТОННЫЙ РЕЗОНАНС ФЕРМИ И ЕГО ПРОЯВЛЕНИЕ В СПЕКТРАХ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ

B. L. Стрижевский, Г. Э. Понат и Ю. Н. Яшкир

Явление поляритонного резонанса Ферми возникает при наличии в фононном спектре кристалла достаточно близких по частоте дипольно активных фононов, которые, смешиваясь с электромагнитным полем, трансформируются в поляритоны. Теоретически исследованы проявления такого резонанса в спектрах спонтанного и вынужденного комбинационного рассеяния (СКР и ВКР). Получены общие формулы, определяющие коэффициенты усиления ВКР и сечения СКР для обеих взаимодействующих поляритонных ветвей. На конкретном примере проиллюстрированы некоторые характерные новые закономерности в спектрах рассеяния. Показано, что в окрестности более слабого колебания ω_1 возникает дублетное расщепление линий рассеяния. По мере приближения к точке ω_1 наружная относительно фононных частот $\omega_{1,2}$ компонента быстро ослабевает. Параллельно внутренняя компонента, удаляясь от ω_1 , нарастает и вскоре становится преобладающей.

Резонанс Ферми — случайная близость колебательных уровней энергии (обычно различного порядка) с одинаковой симметрией^[1] — приобретает ряд новых черт в случае инфракрасно активных кристаллических колебаний, которые, смешиваясь с электромагнитным полем, трансформируются в поляритоны. Нами теоретически исследованы некоторые характерные новые явления, которые могут возникать в спектрах вынужденного и спонтанного комбинационного рассеяния (ВКР и СКР) в нецентросимметричных кристаллах на поляритонах при наличии поляритонного резонанса Ферми. Они существуют, если разность резонирующих частот $\Delta = |\omega_2 - \omega_1|$ не превышает интервала $\Delta_2 = s_2 \omega_2 / 2\epsilon_\infty$, определяющего область влияния более сильного колебания ω_2 (s — силы осцилляторов, ϵ_∞ — высокочастотная относительно $\omega_{1,2}$ диэлектрическая проницаемость). Величина Δ_2 может составлять десятки и даже сотни обратных сантиметров, так что условия возникновения квазирезонансного взаимодействия благодаря связи с электромагнитным полем гораздо благоприятнее, чем в случае дипольно неактивных колебаний.

Коэффициент усиления интенсивности при стационарном ВКР на перечных поляритонах можно представить в виде

$$g = \frac{8\pi^2 \omega_s I_0}{c^2 n_0 n_s \cos \theta} \left[4\pi \frac{\operatorname{Re} \chi^2 - \tau \operatorname{Im} \chi^2}{\epsilon_p'' (1 + \tau^2)} - \operatorname{Im} \gamma \right], \quad \tau = \frac{\mu}{\epsilon_p''}, \quad \mu = \frac{c^2}{\omega^2} |k_0 - k_s|^2 - \epsilon_p'.$$

Здесь индексы 0, s , p относятся к накачке, стоксовой и поляритонной волнам, I_0 — заданная интенсивность накачки, $k = \frac{\omega}{c} \mathbf{n}$ — волновые вектора, θ — угол рассеяния стоксовой волны, $\epsilon_p = \epsilon_p' + i\epsilon_p''$ — надлежащее главное значение тензора ϵ на частоте ω_p ;

$$\chi = e_s^i e_p^j e_0^k \chi_{ijk} \quad (\omega_s = -\omega_p + \omega_0), \quad \gamma = e_s^i e_s^j e_0^k e_0^m \gamma_{ijkm} \quad (\omega_s = \omega_s + \omega_0 - \omega_0),$$

χ_{ijk} и γ_{ijkm} — соответствующие тензоры нелинейных восприимчивостей, e — орты поляризации. На частотах $\omega_{0,s}$ среда считается слабо анизотро-

тропной и прозрачной. Используя для ϵ , χ и γ выражения, вытекающие из микротеории, можно далее привести g к виду

$$g = \varphi \left[\frac{(a^2 - b^2) \epsilon''_p + 2\mu ab}{\mu^2 + \epsilon''_p^2} + \sum_{f=1,2} \frac{\sigma_f \omega_f \omega_p \gamma_f}{L_f Q_{fp}} \right], \quad \varphi = \frac{16\pi^2 c^2 I_0}{\hbar \omega_s^3 n_s^2 \cos \theta}. \quad (1)$$

Здесь

$$a = \tilde{a} + \sum_{f=1,2} \frac{N_f (\omega_f^2 - \omega_p^2) \omega_f^2}{Q_{fp}}, \quad \tilde{a} = \tilde{\chi} \frac{\omega_s^2}{c^2} \left(\frac{2\pi \hbar n_s}{n_0} \right)^{1/2}, \quad Q_{fp} = (\omega_f^2 - \omega_p^2)^2 + \gamma_f^2 \omega_p^2;$$

$$b = \sum_{f=1,2} \frac{N_f \omega_f^2 \omega_p \gamma_f}{Q_{fp}}, \quad N_f = \left(\frac{s_f \sigma_f}{\omega_f} \right)^{1/2} \operatorname{sign} \beta_f, \quad L_f = \frac{\beta_f^2}{\sum_v [\alpha^{(fv)}]^2},$$

$$\beta_f = \sum_v \alpha^{(fv)} (e_p, e_v), \quad \alpha^{(fv)} = e_s^i \alpha^{(fv)} e_0^j, \quad \sigma_f = \left(\frac{\omega_s}{c} \right)^4 \frac{n_s}{n_0 v} \beta_f^2,$$

Наконец, $\alpha^{(fv)}$ и σ_f — тензор (на одну ячейку объемом v) и сечение (на единицу объема) СКР на соответствующих фононах; индекс v нумерует взаимно вырожденные колебания с частотой $\omega_f - i\gamma_f/2$; $\tilde{\chi}$ — вклад в χ удаленных от $\omega_{1,2}$ уровней энергии. Зависимостью ω_s и n_s от f пренебрегаем. Формула (1) является окончательной.

Чтобы проиллюстрировать характер возникающих закономерностей, мы провели на основе (1) численные расчеты для гипотетического примера с реально подобранными параметрами

	ω_f (см $^{-1}$)	s_f	$\sigma_f \cdot 10^6$ (см $^{-1}$)	γ_f (см $^{-1}$)
$f=1$	375	0.2	0.05	6
$f=2$	400	5	1	4

$$\tilde{a} = 4 \cdot 10^{-12} \text{ сек.}^{1/2} \text{ см}^{-1/2},$$

$$\omega_0 = 20492 \text{ см}^{-1}, \quad \epsilon_\infty = 5,$$

$$n_s(\omega_0) = n_0 = 2,$$

$$\frac{\partial n_0}{\partial \omega} = 2.5 \cdot 10^{-5} \text{ см}, \quad L_f = \operatorname{sign} \beta_f = 1.$$

Результаты расчетов представлены на рис. 1, 2. На рис. 1 показана найденная при учете законов сохранения энергии-импульса зависимость $\omega_p(\theta)$ для поляритонов, которые рождались бы при ВКР без учета поглощения и волновой расстройки. Имеется две поляритонные ветви. Каждая из них определяет частотно-угловое положение максимума g . Предельное при $\theta=0$ значение ω_p для верхней поляритонной ветви отвечает частоте $\tilde{\omega}_1$, которая определяется соотношениями $n_p(\tilde{\omega}_1) = n_0 + \omega_0 d n_0 / d \omega$, $\tilde{\omega}_1 < \omega_2$; в данном случае $\tilde{\omega}_1 - \omega_1 = 0.9 \text{ см}^{-1}$.

Рис. 2 содержит кривые $g(\omega_p)$ (в относительных единицах) при различных θ . Как видно, в окрестности более слабого колебания ω_1 возникает дублетное расщепление линии ВКР. Длинноволновая (в данном случае наружная относительно фоновых частот $\omega_{1,2}$) компонента по мере приближения к точке $\omega_p(\theta) = \omega_1$ значительно ослабевает, и в конечном итоге

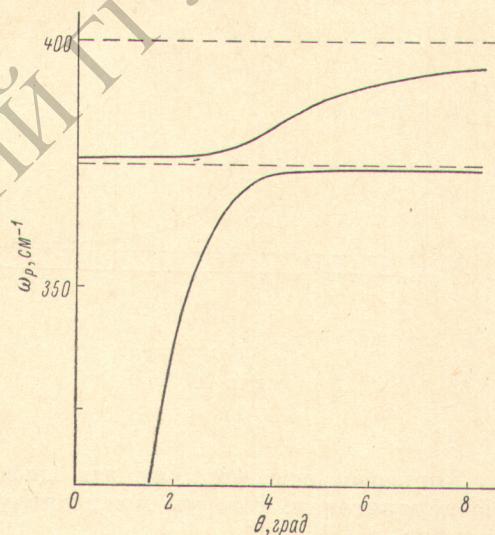


Рис. 1.

переходит в соответствующую линию чисто фононного ВКР для колебания ω_1 . Коротковолновая же (внутренняя) компонента возникает вблизи

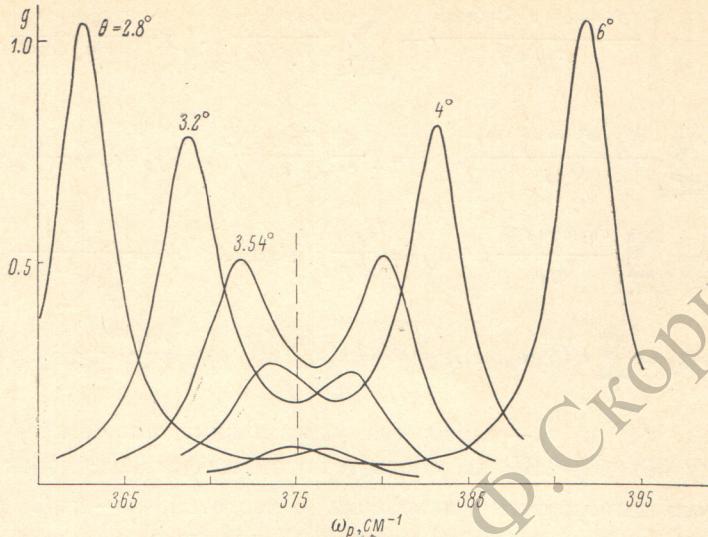


Рис. 2.

$\omega_p(\theta) = \tilde{\omega}_1$, нарастает при удалении $\omega_p(\theta)$ от $\tilde{\omega}_1$ и быстро становится преобладающей. При этом обе компоненты движутся в одну сторону.

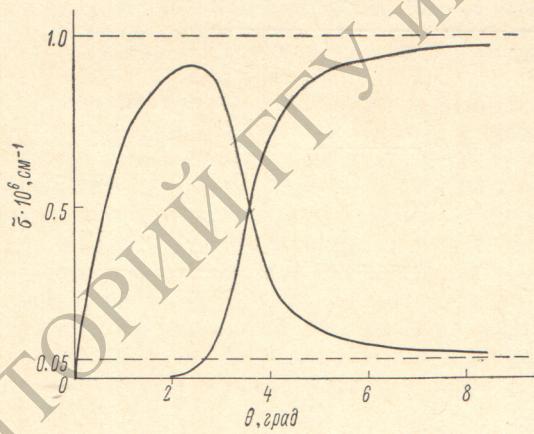


Рис. 3.

Приведем еще формулу для дифференциального поперечника СКР на поляритонах, которую можно получить, используя результаты, изложенные в [4],

$$\tilde{\sigma}(\theta) = \frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\omega_p a_1^2}{\left| n_p^2 + \frac{\omega_p}{2} \frac{\partial n_p^2}{\partial \omega_p} - \frac{c}{u_s \omega_p} (\omega_0 n_0 \cos \theta - \omega_s n_s) \right|},$$

$$n_p^2 = \varepsilon_\infty + \sum_{f=1,2} \frac{s_f a_p^2}{\omega_f^2 - \omega_p^2},$$

где a_1 — значение a при $\gamma_f = 0$, $u = |\nabla_{k_s} \omega_s|$. На рис. 3 показана построенная по этой формуле зависимость σ от θ при тех же значениях параметров

Данный эффект экспериментально пока не зарегистрирован. Следует, однако, отметить, что кривые рис. 2 качественно согласуются с экспериментальными данными работы [3], в которой взаимодействие поляритонных ветвей наблюдалось в спектрах СКР. Это неудивительно, так как интенсивность СКР, по-видимому, пропорциональна g . Отметим еще, что результаты весьма чувствительны к изменению параметра s_1 . При увеличении s_1 компоненты дублета раздвигаются и дублетная структура вырисовывается ярче. Изменение же s_1 скрывается в меньшей степени.

задачи. Полученные кривые характеризуют перераспределение интегральной интенсивности между компонентами дублета в спектре СКР.

Литература

- [1] М. В. Волькенштейн, М. А. Ельяшевич, Б. И. Степанов.
Колебания молекул. ГИТТЛ, М.—Л., 1949.
- [2] В. Л. Стрижевский, В. В. Обуховский, Г. Э. Понат.
ЖЭТФ, 61, 537, 1971.
- [3] R. Claus. Phys. Lett., 31A, 299, 1970.
- [4] V. V. Obukhovskii, H. Ponath, V. L. Strizhevskii. Phys.
Stat. Sol., 41, 837, 1970.

Поступило в Редакцию 28 января 1971 г.