

АКАДЕМИЯ НАУК СССР
СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ
ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ИМ. Л. В. КИРЯКОВА

Препринт ИАФО - 168 Ф

А.Н.Ботвич, В.Г.Лодолригора, А.Н.Вяурин,
Н.П.Шестанов, В.Ф.Шабанов

АБСОЛЮТНАЯ ИНТЕНСИВНОСТЬ ЛИНИИ ИР
ФОНОННЫХ
СЛЕНГТОВ МОЛЕКУЛЯРНЫХ КРИСТАЛЛОВ

Иркутск
1981

ВВЕДЕНИЕ

Выведена развернутая формула для определения интенсивности линий ИР фононных спектров молекулярных кристаллов. Показана экспериментальная возможность выделения в спектрах ИР продольных и поперечных колебаний. Выделен вклад в интенсивность линий, связанный с электростатическим взаимодействием поля световой волны с упругими колебаниями кристаллической решетки.

Ответственный за выпуск Н.П.Шестаков

© Институт физики СО АН СССР, г. Красноярск, 1981г.

Потребности науки и техники ставят на повестку дня более глубокое проникновение в тайну строения вещества и изучение микроскопических процессов в нем. Особое место среди методов исследования структуры и свойств материи занимают спектральные методы. Давние попытки информации о свойствах электронных и колебательных переходов в атомах и молекулах, о природе межмолекулярного взаимодействия и механизмах фазовых переходов.

Одним из самых эффективных методов изучения свойств твердых и жидких тел является спектроскопия комбинационного рассеяния света (ИРС). С появлением лазеров (мощных источников монохроматического полдирозованного излучения) стали возможны полдирозованные исследования низкочастотного спектра ИР решеточных колебаний кристаллов. Изучая этот спектр, получившийся как известно, в результате взаимодействия световой возбудяющей волны с упругими колебаниями кристалла, можно получить сведения о свойствах постоянных кристаллической решетки, электростатических и прелооптических параметрах, а также разделить продольные и поперечные колебания фононов.

Однако сдерживающим фактором развития спектроскопии ИР являлось отсутствие теории интенсивности линий для сложных молекулярных кристаллов, обладающих низкой симметрией. Лишь в последние время развита теория интенсивности линий фононных спектров молекулярных кристаллов на основе квантово-механического рассмотрения [1-3], для кубических кристаллов с одной молекулой в ячейке.

Для правильной интерпретации динамических процессов в веществе необходимо выделить вклад в интенсивность ИР, обусловленный различными механизмами рассеяния света на фононах. Практический интерес представляет определение вклада, связанного с не-

личными электролитическими парами, которые по-прежнему не-
 ти на интенсиности спектра IR значения величин, характеризую-
 щих, в частности, процесс генерации второй оптической гармони-
 ки. Ранее методика нахождения этого вклада из спектральных дан-
 ных в явном виде разработана /3-7/ лишь для высокочастот-
 ных кристаллов, в приближении ориентированного газа, на ос-
 нове ориентированного звучения интенсиности линий продольных
 (LO) и поперечных (TO) колебаний.

Монокристаллы кристаллы, основной объект наших исследований,
 обладают, как правило, низкой симметрией, и большой анизотропи-
 ей кристаллического поля, в связи с чем применимость полученных
 выражений неочевидно. Трудности обработки фоновых спектров ин-
 терметрических кристаллов усугубляются также наличием значитель-
 ного числа перекрывающихся линий, а это требует дополнительного
 математического обработки спектрального контура.

В настоящей работе предложен метод определения абсолютной
 интенсиности линий IR внешних решеточных колебаний кристаллов
 любой симметрии с выделением вкладов от различных механизмов
 рассеяния. Значительное внимание уделено разработке методики
 определения абсолютной интенсиности линий IR, выделенной в них
 LO и TO колебаний, а также разделения спектрального контура
 на индивидуализируемые составляющие.

§ 1. Кристаллическая среда в поле световой волны

Определим поляризацию кристалла под воздействием электро-
 магнитной волны падающего света

$$\vec{E} = E^0 (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \quad (1.1)$$

Для простоты рассмотрим область частот ω (1.1), малых
 по сравнению с частотой электронной дисперсии ω_c и больших
 по сравнению с частотой внешних колебаний молекул Ω . Тогда
 поляризация среды будет иметь чисто электронную природу и инту-

ированные дипольные моменты молекул будут безинерционно свя-
 заны с изменением поля \vec{E} , не оказывая влияния на соответ-
 ствующие колебания молекулярного осознания.

Величина индуцированного дипольного момента $\vec{P}^{(m)}$ зависит
 от поляризуемости молекулы χ и действующего на нее локаль-
 ного поля $\vec{F}^{(m)}$ (m - номер молекулы в элементарной ячейке):

$$\vec{P}^{(m)} = \chi^{(m)} \vec{F}^{(m)} \quad (1.2)$$

Конкретное поле $\vec{F}^{(m)}$ представляет собой сумму внешнего по-
 ля \vec{E} и поля $\vec{E}_1^{(m)}$, создаваемого на m -молекулу всеми
 окружающими диполями:

$$\vec{E}_1^{(m)} = \sum_{l \neq m} \nabla \nabla \left(\frac{1}{r_{lm}} \right) \cdot \vec{P}_l \quad (1.3)$$

где $\vec{r}_l = \vec{r}_l^0 + \vec{r}_l^m - \vec{r}_l^m$, т.е. \vec{r}_l^m радиус-вектор ди-
 поля, выходящего из положения l в элементарной ячейке, отно-
 сительно диполя m в "0" ячейке.

Таким образом, внутреннее поле $\vec{E}_1^{(m)}$ определяется лишь
 структурой кристалла и величиной диполей в узлах решетки.

Наиболее изощренный метод определения $\vec{E}_1^{(m)}$ был разработан
 Борном [8], который заменил суммирование в (1.3) интегрирова-
 нием, начиная с некоторого радиуса R . Однако, это рассмотре-
 ние обладает существенным недостатком - не были учтены эффекты
 запаздывания. Поэтому для длинных электромагнитных волн при
 $k \rightarrow 0$ поле диполей в точке \vec{r}_0^m определяется неоднозначно,
 знак его будет зависеть от того, справа или слева отстоит k
 нулю значение волнового вектора k .

Эту неоднозначность можно преодолеть, если перейти от ствен-
 ных к переменным во времени полям $\vec{E}(z, t)$ [9]. Тогда
 при расчете внутреннего поля следует учесть, что поле от каждого
 диполя $\vec{P}(\vec{r}_l^m)$ будет приходить в точку \vec{r}_0^m за время