

ЛОКАЛЬНЫЙ БИФОНОН В КРИСТАЛЛЕ  $\text{NH}_4\text{Br}$ 

М.В.Белоусов, Б.Е.Вольф, Е.А.Иванова, Д.Е.Погарев

Впервые экспериментально обнаружено, что фонов-фононное взаимодействие может приводить к связыванию на примеси двух фононов, каждый из которых в отдельности на ней не локализуется.

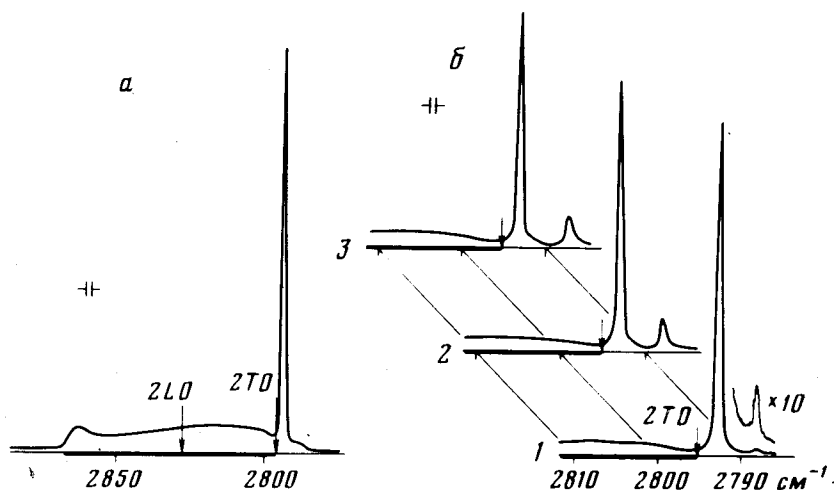
В формировании спектра оберточных или составных переходов мелкой изотопической примеси основной вклад вносят три типа взаимодействия: фонов-фононное, стремящееся связать два фонона в бифонон; фонов-примесное, стремящееся локализовать фонон, и резонансное, приводящее к делокализации возбуждений. В общем случае задача о спектре двухчастичных состояний кристалла с примесью приводит к задаче трех тел. Простейшая ситуация имеет место для одиночной примеси и точечного взаимодействия квазичастиц (экситоны Френкеля, внутримолекулярные фононы). Однако даже в этом случае точное решение было получено<sup>1</sup> только если одна из квазичастиц обладает бесконечно большой эффективной массой, т.е. неподвижна. Развита в<sup>1</sup> теория хорошо согласуется с экспериментом<sup>2,3</sup> и позволяет получить существенно новую информацию о взаимодействии квазичастиц и плотности их состояний<sup>3</sup>. Для двух подвижных квазичастиц задача резко усложняется<sup>4</sup>. Как было отмечено в<sup>5</sup>, при сильном фонов-фононном взаимодействии, приводящем к возникновению бифонона, локальное состояние в двухфононном спектре образуется, даже если фонов-примесное взаимодействие недостаточно для образования локального состояния в однофононном спектре<sup>5</sup>. В данной работе впервые сообщается об экспериментальном исследовании этой ситуации.

Экспериментально изучены спектры комбинационного рассеяния света (КРС) внутреннего колебания  $\omega_4$  и его обертона в низкотемпературной  $\delta$ -фазе кристалла  $\text{NH}_4\text{Br}$  с примесью изотопа  $^{15}\text{N}$  (симметрия  $T_d^1$ ). Спектры КРС возбуждались аргоновым лазером ( $\lambda = 514,5 \text{ нм}$ , мощность до 1 Вт) и регистрировались спектрометром Spex Ramalog. Все спектры получены при  $T = 77 \text{ К}$ .

В кристалле с естественным содержанием изотопа  $^{15}\text{N}$  в области однофононных  $\omega_4$  ( $k \cong 0$ ) переходов наблюдаются две узкие (с шириной не более  $0,2 \text{ см}^{-1}$ ) линии, соответствующие  $TO$  ( $1397,5 \text{ см}^{-1}$ ) и  $LO$  ( $1413,5 \text{ см}^{-1}$ ) фононам. В изотопосмешанном кристалле  $^{15}\text{N}_x^{14}\text{N}_{1-x}\text{N}_4\text{Br}$  ( $x = 0,05$  и  $0,3$ ) происходит незначительное уширение и сдвиг этих линий. Отсутствие локального колебания и типично одномодовое поведение спектра объясняются тем, что фонов-примесное взаимодействие, характеризуемое изотопическим сдвигом  $\Delta_4 = -6 \text{ см}^{-1}$ <sup>6</sup>, в исследуемом случае мало по сравнению с резонансным взаимодействием.

ем, характеризуемым шириной однофононной зоны  $T_4 = 36 \text{ см}^{-1}$  (оценка из ширины  $\omega_4(k) + \omega_4(-k)$  полосы).

Спектр КРС полносимметричных обертоновых переходов кристалла с естественным содержанием изотопа  $^{15}\text{N}$  (0,37%) приведен на рис. а. Полоса  $2795 \div 2867 \text{ см}^{-1}$  относится к двухчастичным переходам  $\omega_4(k) + \omega_4(-k)$ . Ее низкочастотная граница совпадает с удвоенной частотой  $2LO$  фонона  $\omega_4(k \cong 0)$ , а ширина (согласно правилам отбора) равна удвоенной ширине спектра  $\omega_4(k)$  состояний. Узкая линия  $2792,5 \text{ см}^{-1}$ , расположенная ниже области двухчастичных переходов, принадлежит одночастичному (бифононному) переходу  $\omega_{44}(k \cong 0)$ . Наличие ее в спектре свидетельствует о сильном фонон-фононном взаимодействии. Характеризующая это взаимодействие величина ангармонического сдвига  $\Delta_{44} = -30 \div -35 \text{ см}^{-1}$  (согласно оценке, приведенной в <sup>3</sup>).



Спектры КРС кристаллов  $^{15}\text{N}_x^{14}\text{N}_{1-x}\text{H}_4\text{Vl}$  в области  $\omega_4(k) + \omega_4(-k)$  переходов при  $T = 77 \text{ K}$ , геометрия  $K(XX)Y$ ; выделена область двухчастичных переходов стрелками указаны удвоенные частоты  $\omega_4(k \cong 0)$   $2O$ - и  $LO$ -фононов. а -  $x = 0,0037$ , б - 1 -  $x = 0,0037$ , 2 -  $x = 0,05$ , 3 -  $x = 0,3$

Наблюдаемый спектр и его интерпретация в целом согласуются с результатами работы <sup>7</sup>. Кроме того, в кристалле с естественным содержанием изотопа  $^{15}\text{N}$  была обнаружена дополнительная линия  $\omega'_{44} = 2788 \text{ см}^{-1}$ , интенсивность которой составляет около 1,5% от интенсивности линии бифонона (рис. б). При повышении концентрации изотопа относительная интегральная интенсивность линии  $\omega'_{44}$  возрастает (приблизительно до 15% при  $x = 0,05$  и 33% при  $x = 0,3$ ). Следовательно, эта линия соответствует связанному на примеси двухфононному состоянию (локальному бифонону).

Обратим внимание на следующие особенности наблюдаемой картины. 1) Расстояние между линиями бифонона и локального бифонона  $\omega_{44}(k \cong 0) - \omega'_{44} = 4,5 \text{ см}^{-1}$  существенно меньше, чем изотопический сдвиг обертона в изолированном ионе  $2\Delta_4 = -12 \text{ см}^{-1}$  <sup>6</sup>. Этот факт, по-видимому, можно объяснить неполным связыванием обертонового возбуждения, о чем также свидетельствует малое отщепление бифонона от спектра двухчастичных переходов и значительная интенсивность последнего.

2) В кристалле с естественным содержанием изотопа отношение интенсивностей линий локального и основного бифононов почти в четыре раза превышает относительное содержание примеси. Учитывая, что отщепление локального бифонона меньше изотопического сдвига, усиление его линии можно объяснить проявлением в спектрах второго порядка эффекта Рашба <sup>8</sup>. До настоящего времени усиление примесной полосы наблюдалось только в спектрах

основных переходов (электронных<sup>8</sup> и фононных<sup>3</sup>). Полученные здесь результаты показывают, что при наличии связанного состояния эффект Рашба возможен и в двухфононных спектрах.

3) Увеличение концентрации примеси приводит к низкочастотному сдвигу линии  $\omega'_{44}$  (на  $1 \text{ см}^{-1}$  при  $x = 0,3$ ), ее уширению (до  $1,8 \text{ см}^{-1}$  при  $x = 0,3$ ) и появлению у нее низкочастотного крыла (рис. б'). Спектры  $\omega_{44}(k) + \omega_{44}(-k)$  и  $\omega_{44}(k \cong 0)$  при этом практически не меняются. Причины такого концентрационного поведения спектров требуют дополнительного теоретического рассмотрения.

#### Литература

1. Рашба Э.И. ЖЭТФ, 1966, 50, 1064.
2. Белоусов М.В., Погарев Д.Е., Шултин А.А. ФТТ, 1976, 18, 521.
3. Белоусов М.В., Погарев Д.Е., Погарев С.В. В сб. "Колебания окисных решеток", Л.: Наука, 1980, стр. 249.
4. Агранович В.М., Дубовский О.А. ФТТ, 1981, 23, 2197.
5. Агранович В.М., Лозовик Ю.Е., Мехтиев М.А. ЖЭТФ, 1970, 59, 246.
6. Pine W.G., Sherman W.F., Wilkinson G.R. Proc. Royal Soc., (London), 1960, 255, 5.
7. Митин Г.Г., Горелик В.С., Сушинский М.М. ФТТ, 1974, 16, 2956.
8. Бродде В.Л., Рашба Э.И., Шека Е.Ф. Спектроскопия молекулярных экситонов. М.: Энергоиздат, 1981.

Институт физики  
Ленинградского государственного университета  
им. А.А.Жданова

Поступила в редакцию  
25 марта 1982 г.