

ПРАВИЛА ОТБОРА ДЛЯ ДВУХФОНОННЫХ ОПТИЧЕСКИХ ПЕРЕХОДОВ В КРИСТАЛЛАХ TlInS₂

Т.Д.ИБРАГИМОВ

*Институт Физики НАН Азербайджана
AZ 1143, г.Баку, пр. Г.Джавида, 33*

Определены критические точки зоны Бриллюэна кристалла TlInS₂. Установлены правила отбора для двухфононных оптических переходов в этих точках.

Если рассматривать динамику колебаний решетки кристалла не только в гармоническом приближении, то кроме фундаментальных колебаний в спектрах наблюдаются полосы, соответствующие двухфононным и многофононным состояниям. При этом ограничения, накладываемые на волновые векторы фононов, смягчаются. В частности, в многофононных процессах могут участвовать фононы всей зоны Бриллюэна.

По аналогии с изоструктурным кристаллом TlGaSe₂ выберем векторы примитивной трансляции в виде [1]:

$$\mathbf{t}_1 = (a/2, b/2, 0), \quad \mathbf{t}_2 = (-a/2, b/2, 0), \quad \mathbf{t}_3 = (-c \sin(\beta\pi/2), 0, c \cos(-\beta\pi/2)), \quad (1)$$

где a, b, c - параметры решетки, β - угол между a и c осями.

Базовые векторы обратной решетки будут выглядеть следующим образом

$$\mathbf{b}_1 = 2\pi (1/a, 1/b, (1/a) \operatorname{tg}(-\beta\pi/2)), \quad \mathbf{b}_2 = 2\pi (-1/a, 1/b, -(1/a) \operatorname{tg}(-\beta\pi/2)), \quad (2)$$

$$\mathbf{b}_3 = 2\pi (0, 0, 1/c, \cos(-\beta\pi/2))$$

и задают зону Бриллюэна, которая изображена на Рис.1. На этом же рисунке отмечены особые точки. Элементы симметрии для группы симметрии C_{2h}^6 следующие: E – идентичность, C_2 – вращение вокруг оси ou на угол π , I – инверсия, σ – плоскость отражения, перпендикулярная оси ou . Поворотные элементы симметрии C_2 и σ_h сопровождаются непримитивной трансляцией $\boldsymbol{\tau} = \mathbf{t}_3/2$.

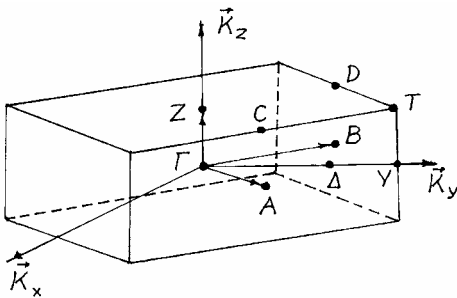


Рис.1.
Зона Бриллюэна кристалла TlInS₂.

Известно, что наибольший вклад в формирование колебательных спектров второго порядка дают фононы из так называемых критических точек, в которых плотность фононных состояний максимальна. Исследование того, существует ли критическая точка, сводится к разложению характера симметричного квадрата по характерам χ_{kv} векторного представления точечной группы F_{0k} , то есть к нахождению чисел разложения [2]:

$$n = f_k^{-1} \sum \chi [T_k^i]_2 [\chi_v^i(\mathbf{R})]^*, \quad (3)$$

где f_k -размерность представления. Если такое число равно нулю, то данная точка \mathbf{k} является симметричной критической точкой.

Проанализируем на критичность выделенные нами особые точки зоны Бриллюэна.

Точка Г. $\mathbf{k} = 0, F_{0\mathbf{k}} = C_{2h}$.

Фактор-система равна единице в этой точке, поэтому нагруженные представления совпадают с обычными представлениями точечной группы C_{2h} , характеры которых приведены в Таблице1.

Так как множитель $\exp(i\mathbf{k}\boldsymbol{\tau})=1$, то характеры малых представлений совпадают с характерами нагруженных представлений. Векторными представлениями в этой точке являются A_u и B_u . Выражение для характеров симметричных квадратов упрощается и приобретает вид:

$$\chi \{ [T_k^i(\mathbf{g})]_2 \} = 1/2 \{ [\chi^i(\mathbf{R})]^2 + \chi^i(\mathbf{R}^2) \}. \quad (4)$$

Разлагая симметричные квадраты по неприводимым представлениям точечной группы C_{2h} , получим:

$$[\Gamma_1]_2 = [\Gamma_2]_2 = [\Gamma_3]_2 = [\Gamma_4]_2 = \Gamma_1, \quad (5)$$

то есть разложение симметричных квадратов не содержит ни одного векторного представления, поэтому точка Г является симметричной критической точкой для всех ветвей дисперсионных кривых.

Таблица1.

Характеры неприводимых представлений точечной группы C_{2h} .

C_{2h}		E	C_2	I	σ_h
A_g	Γ_1	1	1	1	1
B_g	Γ_2	1	-1	1	-1
A_u	Γ_3	1	1	-1	-1
B_u	Γ_4	1	-1	-1	1

Точка Y. $\mathbf{k} = (\mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2)/2, F_{0\mathbf{k}} = C_{2h}$.

Так как волновой вектор \mathbf{k} в этой точке перпендикулярен непримитивной трансляции $\boldsymbol{\tau}$, то как нагрузка так и множитель $\exp(i\mathbf{k}\boldsymbol{\tau})$ равны единице, поэтому характеры малых представлений совпадают с характерами точечной группы $F_{0\mathbf{k}}$. Разложения симметричных квадратов дают единичное представление:

$$[Y_1]_2 = [Y_2]_2 = [Y_3]_2 = [Y_4]_2 = Y_1. \quad (6)$$

Таким образом, в этой точке разложения симметричных квадратов не содержат векторного представления и, поэтому точка Y является симметричной критической точкой.

Линия Δ. $\mathbf{k}_\Delta = \mu (\mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2)$, где $\mu < 1/2$. $F_{0\mathbf{k}} = C_2$.

Эта линия соединяет точки Г и Y, и ее точки являются внутренними точками зоны Бриллюэна. В этом случае вектор $(R_1^{-1}\mathbf{k}-\mathbf{k})=0$ и нагруженные представления совпадают с обычными представлениями точечной группы C_2 , характеры которых приведены в Таблице2.

Таблица 2.

Характеры неприводимых представлений точечной группы C_2 .

Δ	E	C_2
Δ_1	1	1
Δ_2	1	-1

Характеры малых представлений совпадают с характерами точечной группы, так как волновой вектор перпендикулярен непримитивной трансляции. Разложения симметричных квадратов содержат только единичное представление, то есть

$$[\Delta_1]_2 = [\Delta_2]_2 = \Delta_1. \quad (7)$$

Таким образом, на линии Δ существует, по крайней мере одна точка, которая является критической симметричной точкой.

Точки А, В, С и D. $\mathbf{k}_A = \mathbf{b}_1/2$, $\mathbf{k}_B = \mathbf{b}_2/2$, $\mathbf{k}_C = (\mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_3)/2$, $\mathbf{k}_D = (\mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2 + \mathbf{b}_3)/2$, $F_{0k} = C_i$.

Точки А и С принадлежат одной звезде, а точки В и D - другой звезде, поэтому за особые точки можно принять одни из них. Кроме того, волновые векторы точек А и С перпендикулярны непримитивной трансляции, поэтому нагруженные представления совпадают с обычными представлениями точечной группы C_i , характеры которой приведены в Таблице 3.

Таблица 3.

Таблица характеров неприводимых представлений точечной группы C_i .

A, B, C, D	E	I
A ₁	1	1
A ₂	1	-1

Малые представления в этих точках совпадают с представлениями точечной группы, так как они не содержат элементов симметрии, сопровождаемых непримитивной трансляцией. Разложения симметричных квадратов в этих точках представляют собой полносимметричные представления, то есть не содержат векторного представления:

$$[A_1]_2 = [A_2]_2 = A_1 \quad (8)$$

$$[B_1]_2 = [B_2]_2 = B_1 \quad (9)$$

$$[C_1]_2 = [C_2]_2 = C_1 \quad (10)$$

$$[D_1]_2 = [D_2]_2 = D_1 \quad (11)$$

Таким образом, точки А, В, С и D являются симметричными критическими точками.

Точки Z и T. $\mathbf{k}_Z = \mathbf{t}_3/2$, $\mathbf{k}_T = (\mathbf{t}_2 + \mathbf{t}_3 - \mathbf{t}_1) / 2$; $F_{0k} = C_{2h}$.

Колебательные состояния в этих точках описываются одним двумерным неприводимым представлением, характеры преобразований которого приведены в Таблице 4.

Таблица 4.

Таблица характеров неприводимого представления в точках Z и T.

Z и T	E	C ₂	I	σ_h
Z ₁ и T ₁	2	0	-2	0

Очевидно что данное представление является векторным, поэтому соответствующие точки не являются критическими.

Правила отбора для двухфононных процессов основываются на условии сохранения квазиимпульса, который можно представить в следующем виде[3]

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{R} \mathbf{k}_2 \equiv 0, \quad (14)$$

где \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 - волновые векторы фононов, участвующих в процессе, \mathbf{R} – некоторый элемент F_0 , знак \equiv означает выполнение равенства с точностью до вектора обратной решетки. Условие (14) может выполняться в следующих случаях: - $\mathbf{k}_1 \equiv -\mathbf{k}_2 = \mathbf{k}$.

Тогда коэффициенты редукции n , то есть числа единичных представлений в симметричных квадратах и прямых произведениях для обертоновых n^{ov} и составных переходов n^{com} , можно найти следующим образом

$$n_i^{ov} = (2f_k)^{-1} \sum \{[\chi_k^p(g)]^2 + \chi_k^p(g^2)\} [\chi_i(R)]^*, \quad (15)$$

$$n_i^{com} = f_k^{-1} \sum \chi_k^p(g) \chi_k^q(g) [\chi_i(R)]^*, \quad (16)$$

где p и q - различные номера однофононных ветвей.

Таблица 5.

 Коэффициенты редукции симметричных квадратов и прямых произведений неприводимых представлений группы C_{2h}^6 на неприводимые составляющие группы C_{2h} .

Активность	КР	КР	ИК	ИК
Неприводимые Представления	Γ_1 A_g	Γ_2 B_g	Γ_3 A_u	Γ_4 A_g
$[\Gamma_1]_2$	1	0	0	0
$[\Gamma_2]_2$	1	0	0	0
$[\Gamma_3]_2$	1	0	0	0
$[\Gamma_4]_2$	1	0	0	0
$\Gamma_1 \times \Gamma_1$	1	0	0	0
$\Gamma_2 \times \Gamma_2$	1	0	0	0
$\Gamma_3 \times \Gamma_3$	1	0	0	0
$\Gamma_4 \times \Gamma_4$	1	0	0	0
$\Gamma_1 \times \Gamma_2$	0	1	0	0
$\Gamma_1 \times \Gamma_3$	0	0	1	0
$\Gamma_1 \times \Gamma_4$	0	0	0	1
$\Gamma_2 \times \Gamma_3$	0	0	0	1
$\Gamma_2 \times \Gamma_4$	0	0	1	0
$\Gamma_3 \times \Gamma_4$	0	1	0	0
$[Y_1]_2$	1	0	0	0
$[Y_2]_2$	1	0	0	0
$[Y_3]_2$	1	0	0	0
$[Y_4]_2$	1	0	0	0
$Y_1 \times Y_1$	1	0	0	0
$Y_2 \times Y_2$	1	0	0	0
$Y_3 \times Y_3$	1	0	0	0
$Y_4 \times Y_4$	1	0	0	0
$Y_1 \times Y_2$	0	1	0	0
$Y_1 \times Y_3$	0	0	1	0
$Y_1 \times Y_4$	0	0	0	1
$Y_2 \times Y_3$	0	0	0	1
$Y_2 \times Y_4$	0	0	1	0
$Y_3 \times Y_4$	0	1	0	0
$[\Delta_1]_2$	1	0	1	0
$[\Delta_2]_2$	1	0	1	0
$\Delta_1 \times \Delta_1$	1	0	1	0
$\Delta_2 \times \Delta_2$	1	0	1	0
$\Delta_1 \times \Delta_2$	0	1	0	1
$[A_1]_2 [D_1]_2$	1	1	0	0
$[A_2]_2 [D_2]_2$	1	1	0	0
$A_1 \times A_1 D_1 \times D_1$	1	1	0	0
$A_2 \times A_2 D_2 \times D_2$	1	1	0	0
$A_1 \times A_2 D_1 \times D_2$	0	0	1	1

- \mathbf{k}_1 не эквивалентен $-\mathbf{k}_2$, но существует такой элемент $\mathbf{R}_0 \in F_{0\mathbf{k}}$, $\mathbf{R}_0 \mathbf{k}_1 \equiv -\mathbf{k}_2 = \mathbf{k}$, тогда

$$n_i^{\text{ov}} = (2f_{\mathbf{k}})^{-1} \sum \{ \chi_{\mathbf{k}}^p(\mathbf{g}) \chi_{\mathbf{k}}^p(\mathbf{g}_0^{-1} \mathbf{g} \mathbf{g}_0) + \chi_{\mathbf{k}}^p(\mathbf{g}_0 \mathbf{g})^2 \} [\chi_i(\mathbf{R})]^* \quad (17)$$

$$n_i^{\text{com}} = f_{\mathbf{k}}^{-1} \sum \chi_{\mathbf{k}}^p(\mathbf{g}) \chi_{\mathbf{k}}^q(\mathbf{g}_0^{-1} \mathbf{g} \mathbf{g}_0) [\chi_i(\mathbf{R})]^*, \quad (18)$$

где $g_0=(R_0|\tau_0)$, τ_0 – непримитивная трансляция, сопровождающая поворотный элемент R_0 .

Если же волновые векторы принадлежат различным звездам, то $\mathbf{k}_1=\{\mathbf{k}\}$ и $\mathbf{k}_2=\{-\mathbf{k}\}$, и

$$n^{ov} = 0, \tag{19}$$

$$n_i^{com} = f_k^{-1} \sum \chi_k^p(g) [\chi_k^q(g)]^* [\chi_i(R)]^*. \tag{20}$$

Так как максимальный вклад в колебательные спектры второго порядка дают фононы из критических точек зоны Бриллюэна, то достаточно установить правила отбора только для этих точек. Так как для точек Γ , Y , A , B , C и D волновой вектор равен своему обратному значению с точностью до вектора обратной решетки, то для нахождения коэффициентов редукции применимы соотношения (15–16). Для точки же на линии Δ надо применять соотношения (17-18), где за R_0 принимается инверсия I . Полученные таким способом коэффициенты редукции собраны в Таблице 5. В первой строке этой таблицы указаны активности фононов соответствующих представлений в спектрах комбинационного рассеяния (КР), в спектрах инфракрасного поглощения и отражения (ИК). Отличие от нуля коэффициентов редукции означает возможность существования рассматриваемого процесса второго порядка, а равенство его нулю – запрещение этого процесса.

Таким образом, можно сделать вывод, что правила отбора второго порядка для процессов рассеяния оказываются разрешенными для всех рассматриваемых критических точек зоны Бриллюэна. Определенные ограничения накладываются на вид тензора рассеяния в связи с обращением в нуль отдельных его компонентов. Оказывается, что для обертоновых переходов процессы рассеяния всегда разрешены за счет компонентов тензора, преобразующихся по полносимметричному представлению. В соответствии с этим можно полагать, что для геометрии рассеяния, обуславливающей проявление таких компонент в экспериментальных спектрах, следует ожидать проявление всех особенностей функции плотности фононных состояний. В то же время, для составных переходов различных типов симметрии полносимметричная компонента тензора рассеяния оказывается запрещенной.

1. S.G.Abdullaeva, N.T.Mamedov, *Physica Status Solidi (b)*, **133** (1986) 171.
2. А.Пуле, Е.Матъе, *Колебательные спектры и симметрия кристаллов. Москва, Мир, (1973) 437.*
3. Г.Н.Жижин, Б.Н.Маврин, В.Ф.Шабанов, *Оптические колебательные спектры кристаллов. Москва, Наука, (1984) 232.*

TlInS₂ KRİSTALINDA İKİ FONON OPTİK KEÇİDLƏR ÜÇÜN SEÇMƏ QAYDALARI

T.C. İBRAQİMOV

TlInS₂ kristalının Brilliyen zonasının kritik nöqtələri təyin olunmuşdur. Bu nöqtələrdə ikifononlu optik keçidlər üçün seçmə qaydaları müəyyən olunmuşdur.

THE SELECTION RULES FOR TWO-PHONON OPTICAL TRANSITIONS IN TlInS₂ crystals

T.D.IBRAGIMOV

The critical points of the Brillouin zone of the TlInS₂ crystal have been determined. The selection rules for two-phonon optical transitions in these points were established.

Редактор: Ф.Гашидзе