

ДВУХФОТОННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ ПРИ ВЫСОКИХ УРОВНЯХ ВОЗБУЖДЕНИЯ КРИСТАЛЛОВ CdS

К.Клингширн, В.Г.Лысенко, Х.Шрай

Исследована зависимость положения, формы и интенсивности двухфотонного комбинационного рассеяния в кристаллах CdS от температуры образца, энергии фотона и плотности мощности возбуждающего излучения. Экспериментальные результаты объясняются в рамках взаимодействия в системе электронно-дырочных пар высокой плотности.

В работе исследовано излучение чистых образцов CdS, помещенных в криостат с регулируемой от 4 до 80К температурой, возбуждаемых

перестраиваемым импульсным лазером на растворе 7Д4ТМК в диоксиде (полуширина линии генерации 0,25 мэВ, мощность ~ 10 кВт, длительность импульса 4 нсек). Ось С кристалла располагалась вертикально в плоскости поверхности кристалла. Волновые векторы k_{inc} лазерного излучения и k_R наблюдаемого излучения лежали в горизонтальной плоскости и составляли углы α и β с перпендикуляром к поверхности образца (рис. 1). При накачках $P \gtrsim 10^4$ Вт \cdot см $^{-2}$ в спектрах излучения CdS

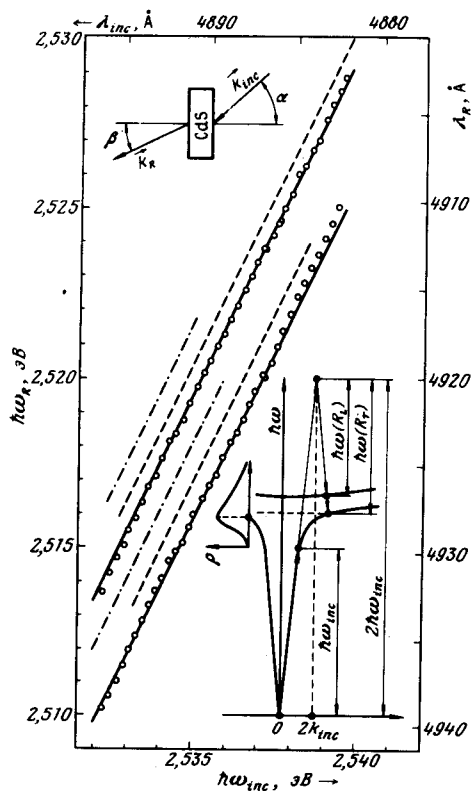


Рис. 1. Зависимость положения максимумов $\hbar\omega(R_L)$ и $\hbar\omega(R_T)$ линий двухфотонного комбинационного рассеяния (КР) от энергии фотонов $\hbar\omega_{inc}$ излучения возбуждающего лазера при углах падения $\alpha = 42^\circ$ и наблюдения $\beta = 90^\circ$ и температурах: \circ — 5, \square — 18, Δ — 27К. В правом нижнем углу схема, иллюстрирующая процесс двухфотонного КР

наряду с известными M - и P_M -полосами наблюдались две новые R_L и R_T (рис. 2) линии, поляризованные $E \perp C$, спектральное положение максимумов которых $\hbar\omega(R_L)$ и $\hbar\omega(R_T)$ не зависело от накачки, но зависело от угла падения α и наблюдения β , температуры образца T° и энергии фотона излучения лазера $\hbar\omega_{inc}$. Так, при $T^\circ = 5\text{К}$, $\alpha = 42^\circ$ и $\beta = 90^\circ$ положение максимумов этих линий (кружочки на рис. 1) удовлетворяло соотношениям (сплошные прямые на рис. 1)

$$\hbar\omega(R_L) = 2\hbar\omega_{inc} - E_L(T^\circ, k_L), \quad (1)$$

$$\hbar\omega(R_T) = 2\hbar\omega_{inc} - E_T(T^\circ, k_T), \quad (2)$$

где $E_L(T^\circ, k_L) = 2,5549$ эВ и $E_T(T^\circ, k_T) = 2,5516$ эВ — энергии продольного экситона и поперечного поляритона нижней ветви при $T^\circ = 5\text{К}$ и волновых векторах $|k_L|$, $|k_T| \approx 0,4 \cdot 10^6$ см $^{-1}$. С ростом температуры

(при неизменных P и $\hbar\omega_{inc}$) интенсивность линий R_L и R_T резко падала до 0 при $T^\circ \approx 25\text{K}$, при этом положение максимумов линий сдвигалось в сторону больших энергий так, что по-прежнему удовлетворялись соотношения (1), (2), где теперь $E_L(T^\circ, k_L)$ и $E_T(T^\circ, k_T)$ — положения уровней энергии продольного экситона и поперечного поляритона при соответствующих температурах. На рис. 1 сплошными, штриховыми и штрих-пунктирными линиями представлены аппроксимации экспериментальных зависимостей $\hbar\omega_R = f(\hbar\omega_{inc})$ соотношениями (1) и (2) для $T^\circ = 5, 18$ и 27K соответственно. При $|\beta - \alpha| < 90^\circ$ наклон прямых $\hbar\omega_R = f(\hbar\omega_{inc})$ отличается от 2 и сильно зависит от $|\beta - \alpha|$ [1–3].

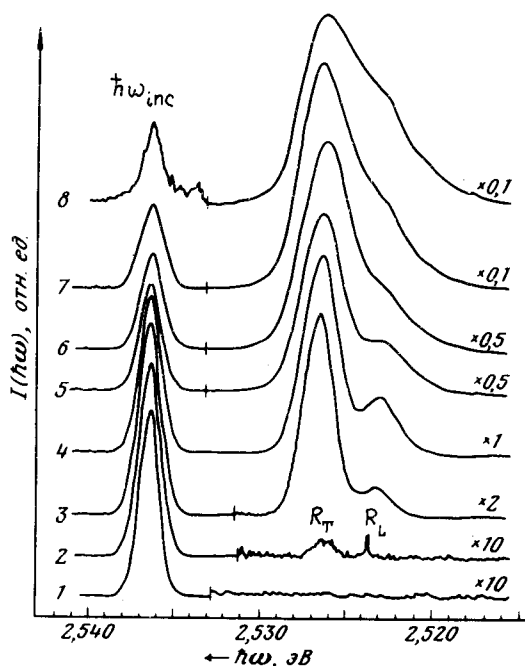


Рис. 2. Форма линий двухфотонного КР при температуре 5К, $\alpha = 57^\circ$, $\beta = 0^\circ$, $\hbar\omega_{inc} = 2,5364$ эВ и различных уровнях возбуждения образца. Кривые 1–8 отвечают плотностям мощности 1,2; 4,1; 5,3; 8,3; 11; 13 и 20 Мвт·см⁻² соответственно

Описанные результаты объясняются в рамках двухфотонного комбинационного рассеяния (КР), когда два фотона лазерного излучения с энергиями $\hbar\omega_{inc}$ и волновыми векторами k_{inc} виртуально возбуждают некоторое состояние системы электронно-дырочных (ЭД) пар высокой плотности, после чего распадаются на продольный экситон с энергией $E_L(T^\circ, k_L)$ и волновым вектором k_L (или поперечный поляритон нижней ветви с энергией $E_T(T^\circ, k_T)$ и волновым вектором k_T); и фотон с энергией $\hbar\omega(R_L)$ и волновым вектором $k(R_L)$. ($\hbar\omega(R_T)$ и $k(R_T)$, соответственно, для другой линии КР) (схема в правом углу рис. 1). Из законов сохранения энергии и импульса следует

$$2\hbar\omega_{inc} = \hbar\omega(R_L) + E_L(T^\circ, k_L),$$

$$2k_{inc} = k(R_L) + k_L.$$

Эти два соотношения и определяют спектральное положение (1) и (2), угловую и температурную зависимости линий КР при различных $\hbar\omega_{inc}$.

Полуширина линий КР (при неизменных P и $\hbar\omega_{inc}$) слабо зависит от температуры образца и углов α и β , несколько увеличиваясь с ростом T° и уменьшением $|\beta - \alpha|$. С ростом накачки линии КР значительно уширяются (рис. 2), принимая при $P \sim 10^5 - 10^7$ Вт·см⁻² форму симметричного колокольчика, а затем, при $P > 10^7$ Вт·см⁻², асимметричную форму с более пологим длинноволновым хвостом, достигая при $P \approx 2 \cdot 10^7$ Вт·см⁻² полуширины ~ 7 мЭВ.

При неизменной накачке и температуре 5К интенсивность линий КР сильно зависела от длины волны λ_{inc} лазерного излучения. При минимальных уровнях возбуждения $P < 10^5$ Вт·см⁻² интенсивность максимумов линий КР резонансно возрастала при приближении λ_{inc} к $\lambda_{inc}^{res} = 4861,2 \pm 0,3 \text{ \AA}$ [4]. С ростом накачки положение резонанса сдвигалось в сторону меньших энергий (рис. 3), резонансная кривая $I_R(\lambda_{inc})$ значительно уширялась, при этом в интервале накачек $P \sim 10^7$ Вт·см⁻² положение коротковолнового края $\lambda_R^\mu \approx 4878 \pm 2 \text{ \AA}$ кривой $I_R(\lambda_R)$ изменялось незначительно.

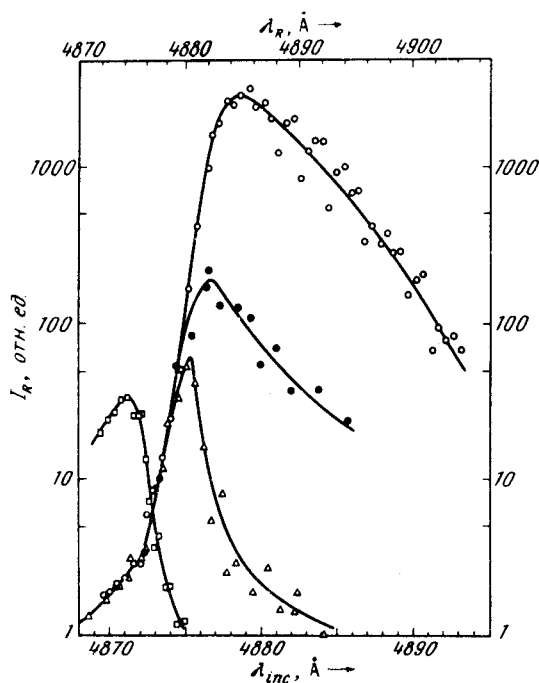


Рис. 3. Зависимость интенсивности I_R в максимуме линий двухфотонного КР от длины возбуждающего лазерного излучения λ_{inc} (нижняя шкала длин волн) или положения максимума линии двухфотонного КР λ_R (верхняя шкала длин волн) при плотностях мощности возбуждающего излучения: \square — 1,5; Δ — 8; \bullet — 13; \circ — 22 Мвт·см⁻²

Приведенные результаты связаны с взаимодействием в системе ЭД пар высокой плотности и объясняются следующим образом. При сравнительно малых уровнях возбуждения $\sim 10^4$ Вт·см⁻² экситоны и биэкситоны являются "хорошими" квазичастицами с энергиями $E_L = 2,5549$ эВ, $E_L - E_T \approx 2$ мЭВ, $E_M = 5,1012$ эВ [3, 4]. Биэкситон является нижайшим состоянием, которое можно возбудить двумя фотонами, поэтому интенсивность двухфотонного КР резонансно возрастает при приближении энергии фотона лазерного излучения к $\hbar\omega_{inc}^{res} = E_M/2$ ($\lambda_{inc}^{res} = 4861,2 \pm 0,3 \text{ \AA}$). В [5] показано, что с ростом уровня возбуждения уровни поглощения, отвечающие связанным состояниям экситона (а следовательно, и биэкситона) вследствие взаимодействия уширяют-

ся, превращаясь при достаточно высоких уровнях возбуждения в асимметричную полосу с пологим коротковолновым и более крутым длинноволновым крылом (кривая $\rho(\hbar\omega)$ в правом углу рис. 1), которая 12 — 13 мэВ ниже уровня свободного экситона переходит в широкую асимметричную полосу "отрицательного" поглощения (т. е. усиления), с коэффициентами усиления до 10^3 см^{-1} [6]. Такая трансформация энергетического спектра и определяет поведение формы и интенсивности линий КР с ростом уровня возбуждения. Действительно, вследствие уширения экситонного уровня (который является конечным состоянием в акте двухфотонного КР) преимущественно в коротковолновую сторону линии КР будут уширяться, в соответствии с (1) и (2), преимущественно в длинноволновую сторону (см. схему процесса КР в правом углу рис. 1), что видно на рис. 2.

Сдвиг резонансной кривой $I_R(\lambda_{inc})$ также связан не со сдвигом уровня биэкситона с накачкой, а с изменением коэффициентов поглощения и усиления возбужденных областей кристалла, через которых распространяется рассеянное излучение. С ростом накачки из-за уширения биэкситонного уровня минимальная энергия фотона, необходимая для возбуждения биэкситона, уменьшается, с коротковолновой от положения резонанса $\lambda_{inc}^{res} = 4861,2 \text{ \AA}$ стороны из-за расширения экситонного уровня возрастает коэффициент поглощения, а с длинноволновой стороны развивается область "отрицательного" поглощения, связанная с образованием ЭД жидкости [6]. Вследствие этих факторов резонансная кривая $I_R(\lambda_{inc})$ с ростом накачки уширяется, сдвигается в сторону меньших энергий, и наконец начинает в значительной мере определяться сложившимся в ЭД жидкости спектральным распределением коэффициента усиления [7], так как рассеянное излучение, проходя сквозь объем, занятый ЭД жидкостью, ослабляется в области длин волн, где коэффициент поглощения возрос, и усиливается в области длин волн $\lambda_R \gg 4878 \text{ \AA}$, отвечающей большим значением коэффициента усиления.

Авторы выражают признательность Л.В.Келдышу и Э.И.Рашба за обсуждение работы и DFG за поддержку работы.

Институт физики твердого тела
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
31 августа 1979 г.

Институт прикладной физики
университет Карлсруэ
ФРГ

Литература

- [1] H.Schrey, V.G.Lyssenko, C.Klingshirn. Solid. Stat. Comm., 31, 299, 1979.
- [2] F.Henneberger, K.Henneberger, J.Voigt. Phys. Stat. Sol., (b) 83, 439, 1977.
- [3] Y.Nozue, T.Itoh, M.Ueta. J. Phys. Soc. Japan, 44, 1305, 1978.
- [4] T.Itoh, Y.Nozue, M.Ueta. J. Phys. Soc. Japan, 40, 1791, 1976.

[5] В.Г.Лысенко, В.И.Ревенко. ФТТ, 20, 2144, 1978.

[6] G.O.Müller, H.H.Weber, V.G.Lyssenko, V.I.Revenko, V.B.Timofeev.
Solid Stat. Comm., 21, 217, 1977.

[7] В.Г.Лысенко, В.И.Ревенко, Т.Г.Тратас, В.Б.Тимофеев. ЖЭТФ, 68,
335, 1975.
