

РЕЗОНАНСНОЕ ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА
НА ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНАХ

Ю.Н.Поливанов, Р.Ш.Саяхов

Сообщается о первом экспериментальном наблюдении резонансного гиперкомбинационного рассеяния света на оптических фононах.

Гиперкомбинационное рассеяние (ГКР) света представляет собой трехфотонный процесс, при котором один квант рассеянного излучения $\hbar\omega_s$ рождается за счет двух квантов возбуждающего излучения $\hbar\omega_l$: $\omega_s = 2\omega_l \pm \omega$, где ω — частота рассеивающего возбуждения среды (см., например, обзор [1] и ссылки в нем). В последнее время ГКР привлекает все большее внимание исследователей. Это связано с новыми спектроскопическими возможностями ГКР. С помощью ГКР, например, можно исследовать возбуждения неактивные в обычном комбинационном рассеянии (КР), а также возбуждения неактивные как в КР, так и в ИК спектрах. В частности, ГКР позволяет исследовать поляритонные возбуждения в centrosymmetric средах.

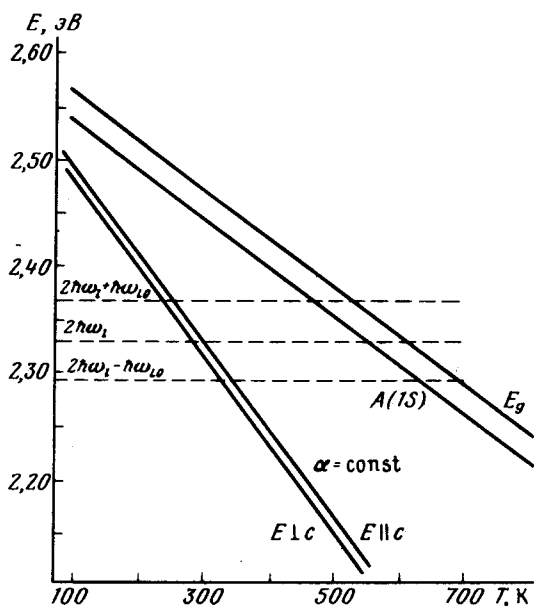


Рис. 1. Зависимости ширины запрещенной зоны E_g , положения $A(1s)$ экситона и уровня постоянного поглощения $\alpha \approx 1 \text{ см}^{-1}$ для двух различных поляризаций ($E \parallel c$ и $E \perp c$; c — направление оптической оси) от температуры для кристалла CdS; $\nu = \omega/2\pi c$

В данной работе сообщается о первом экспериментальном наблюдении резонансного ГКР света на оптических фононах. Экспериментальное исследование проводилось на установке, описанной в работе [2]. Возбуждение рассеяния осуществлялось с помощью лазера на иттрий-алюминиевом гранате с неодимом ($\lambda_l = 1,064 \text{ мкм}$), работающего в одной поперечной моде в импульсном режиме с модуляцией добротности при частоте следования импульсов 50 Гц. Регистрация рассеянного

света осуществлялась с помощью стробируемого и охлаждаемого ФЭУ-79, работающего в режиме счета фотонов. ГКР наблюдалось под 90° по отношению к направлению распространения возбуждающего излучения и выделялось монохроматором МДР-2. В качестве объекта исследования нами был выбран кристалл CdS, так как в данном случае при использовании лазера на иттрий-алюминиевом гранате для возбуждения ГКР частота рассеянного света попадает в область близкую к резонансу (краю поглощения этого кристалла) и условия резонанса можно варьировать изменением температуры образца, поскольку ширина запрещенной зоны E_g существенно зависит от температуры кристалла. На рис. 1 представлены температурные зависимости ширины запрещенной зоны E_g , положения экситонной $A(1s)$ линии [3] и уровня постоянного поглощения $\alpha = \text{const}$ (для двух направлений поляризации света) кристалла CdS. Зависимости уровня постоянного поглощения $\alpha = \text{const}$ от температуры были сняты нами на том же образце, на котором проводились исследования ГКР. Пунктирными линиями показаны удвоенная энергия кванта излучения возбуждающего лазера ($2\hbar\omega_l = 2,33$ эВ) и энергии квантов стоксового и антистоксового излучений.

Резонансное ГКР исследовалось путем измерения интегральных интенсивностей как стоксовой, так и антистоксовой компонент рассеяния на продольных оптических фононах симметрии E_1 ($\nu_{LO} = 307$ см $^{-1}$)

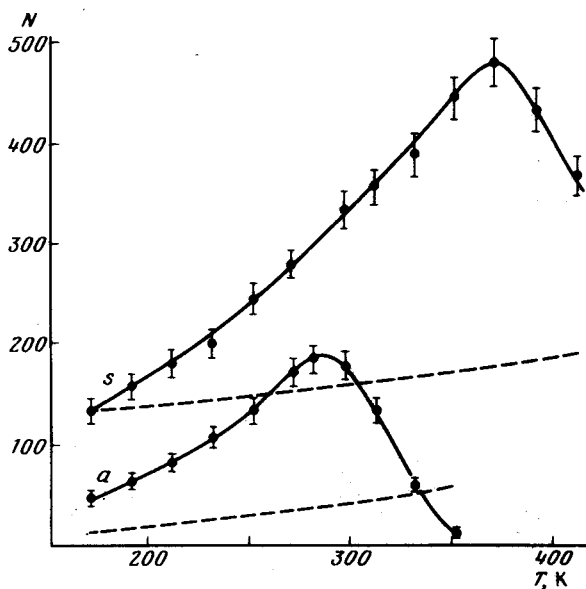


Рис. 2. Зависимость интегральной интенсивности N (числа счетов с ФЭУ) стоксовой (s) и антистоксовой (a) компонент ГКР на продольных оптических фононах симметрии E_1 от температуры

в зависимости от температуры кристалла CdS при геометрии рассеяния $x(z, z+x) y$. Результаты этих измерений представлены на рис. 2. (Сплошные кривые проведены через экспериментальные точки. Из рисунка видно, что интенсивность как стоксовой, так и антистоксовой компонент вначале увеличивается с ростом температуры, а затем резко спадает. Резкий спад обусловлен поглощением рассеянного света в образце и положения перегибов в зависимостях интенсивностей рассеяния стоксовой и антистоксовой компонент находятся в соответствии с

кривыми рис. 1. Рост интенсивности рассеяния с увеличением температуры кристалла может быть обусловлен температурной зависимостью заселенности фононной моды и изменением условий резонанса процесса рассеяния с температурой. Пунктирными кривыми показаны расчетные зависимости интенсивности рассеяния от температуры, обусловленные только изменением заселенности фононных мод. Кривые нормированы в точке, соответствующей стоксовой компоненте рассеяния при $T = 173\text{K}$. Из сравнения сплошных и пунктирных кривых рис. 2 видно, что экспериментально наблюдаемые зависимости не могут быть объяснены только изменением заселенности фононных мод, что свидетельствует о проявлении резонансных эффектов в ГКР. Более того, при ГКР на равновесных фононах в условиях вне резонанса должно выполняться следующее соотношение между интенсивностями стоксовой (s) и антистоксовой (a) компонент [2, 7]

$$I_a/I_s = [(2\omega_l + \omega)/(2\omega_l - \omega)]^4 \exp(-\hbar\omega/kT). \quad (1)$$

Однако, как следует из результатов эксперимента (рис. 2) это соотношение не выполняется (интенсивность рассеяния в антистоксовой области выше, чем это следует из соотношения (1)). Такое отклонение от соотношения (1) можно также объяснить проявлением резонансных эффектов в спектрах ГКР: антистоксова компонента испытывает "более сильный резонанс", чем стоксова, так как

$$E_g - \hbar\omega_a < E_g - \hbar\omega_s.$$

Отметим еще некоторые особенности наблюдаемого спектра ГКР кристалла CdS. Согласно правилам отбора и указанной выше геометрии рассеяния в спектре ГКР должны наблюдаться поперечные (TO) компоненты колебания A_1 ($\nu_{TO}^{A_1} = 234\text{ см}^{-1}$) и продольные (LO) и поперечные (TO) компоненты колебания E_1 ($\nu_{TO}^{E_1} = 243\text{ см}^{-1}$, $\nu_{LO}^{E_1} = 307\text{ см}^{-1}$). В полученном спектре, однако, проявляется лишь линия, соответствующая продольному оптическому (LO) фонону симметрии E_1 и линия на несмещенной частоте (т. е. с $\nu = 0\text{ см}^{-1}$)¹⁾. Нам не удалось при изменении условий резонанса обнаружить линии в спектре ГКР, соответствующие поперечным оптическим (TO) фононам (как симметрии A_1 , так и E_1), хотя экспериментальная установка позволяла надежно регистрировать линии ГКР на два порядка слабее наблюдаемой линии с $\nu = 307\text{ см}^{-1}$.

Представляет интерес сравнить полученные результаты с данными по проявлению резонансных эффектов в спектрах обычного ком-

¹⁾Обсуждение механизма рассеяния на несмещенной частоте $\nu = 0\text{ см}^{-1}$, а также возможных каскадных процессов, дающих вклад в спектр ГКР, проведено в работе [4].

бинационного рассеяния (КР) света этого же кристалла. Интенсивность КР на продольных оптических фононах как и в случае ГКР монотонно возрастает по мере приближения энергии квантов возбуждающих фотонов к энергии запрещенной зоны кристалла. Однако интенсивность КР на поперечных оптических фононах носит немонотонный характер, проходя через минимум при $E_g - \hbar\omega_s \sim 0,8$ эВ [5]. Возможно, что отсутствие линий ГКР на поперечных фононах также связано с эффектами интерференции различных вкладов в тензор рассеяния. В спектрах резонансного ГКР нам не удалось обнаружить рассеяния на удвоенной частоте продольного оптического фонона ($\nu = 2\nu_{LO}$), в то время как в спектрах резонансного КР интенсивность рассеяния на этой частоте примерно на порядок больше интенсивности рассеяния на продольных оптических фононах ($\nu = \nu_{LO}$) [6].

В заключение отметим, что для полной интерпретации наблюдаемых особенностей спектров резонансного ГКР необходимы дополнительные эксперименты с использованием перестраиваемых лазеров для возбуждения рассеяния (что даст возможность изменять условия резонанса в более широком диапазоне) и развитие теории резонансного ГКР на оптических фононах.

Авторы выражают глубокую признательность А.М. Прохорову и П.П. Пашинину за поддержку работы.

Физический институт им. П.Н. Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
24 сентября 1979 г.

Литература

- [1] С.Келих. Квантовая электроника, **4**, 2574, 1977.
- [2] Ю.Н.Поливанов, Р.Ш.Саяхов. Физика твердого тела, **20**, 2708, 1978.
- [3] R.F.Leheny, K.L.Shaklee, E.P.Ippen, R.E.Nahory, J.L.Shay. Appl. Phys. Lett., **17**, 494, 1970.
- [4] Ю.Н.Поливанов, Р.Ш.Саяхов. Краткие сообщения по физике, №8, 1979.
- [5] J.M.Ralston, R.L.Wadsack, R.K.Chang. Phys. Rev., Lett., **25**, 814, 1970.
- [6] R.C.C.Leite, J.F.Scott, T.C.Damen. Phys. Rev. Lett., **22**, 780, 1969.
- [7] H. Vogt, G. Neumann. Opt. Comm., **19**, 108, 1974.