

ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ НА ПОЛЯРИТОНАХ В ЦЕНТРОСИММЕТРИЧНОМ КРИСТАЛЛЕ SrTiO_3

В.Н.Денисов, Б.Н.Маврин, В.Б.Подобедов,
Х.Е.Стерин

Сообщается о первом наблюдении поляритонов в гиперкомбинационном рассеянии. Исследованы нижняя и верхняя ветви поляритонов в центросимметричном кристалле SrTiO_3 .

Нами экспериментально реализован новый вариант спектроскопии объемных поляритонов — спектроскопия гиперкомбинационного рассеяния на поляритонах (ГКРП). ГКРП имеет ряд важных преимуществ по сравнению с традиционной спектроскопией комбинационного рассеяния на поляритонах (КРП) [1]. Одно из главных преимуществ метода связано с возможностью исследования ГКРП в центросимметричных кристаллах (ЦСК), недоступных для КРП. Не менее важно то, что в ГКРП можно наблюдать поляритоны на верхней ветви кубических кристаллов (ЦСК и не ЦСК) [2]. Более широкие возможности имеют также исследования ГКРП в анизотропных кристаллах. Наконец, в ЦСК легко наблюдать ГКРП при угле рассеяния $\theta \approx 0^\circ$, так как частоты накачки ω_i и рассеянного света вблизи $2\omega_i \pm \Omega$ спектрально сильно разнесены. В КРП же возможность наблюдения вблизи $\theta \approx 0^\circ$ затруднена вследствие засветки от мощной возбуждающей линии ω_i .

В настоящей работе исследовалось ГКРП в кубическом центросимметричном кристалле SrTiO_3 симметрии O_h^1 . В колебательное представление кристалла входят оптические колебания $3F_{1u}$ и $1F_{2u}$, из которых только F_{1u} разрешены в спектрах ИК, а в ГКР активны все типы колебаний [3]. В КР запрещены оба типа колебаний.

Спектры ГКРП регистрировались с помощью многоканальной фотоэлектрической системы [4]. Сфокусированное возбуждающее излучение ($\lambda_i = 1060$ нм) направлялось вдоль кристаллографической оси образца. Кубическая симметрия кристалла позволяла реализовать наиболее светосильную схему сбора рассеянного света, использующую кольцевые диафрагмы [5]. Средний радиус кольца определял угол рассеяния θ , а ширина зазора кольца — угол $\Delta\theta$ сбора рассеянного света ($\Delta\theta = 0,5^\circ$). В нашем эксперименте угловое разрешение спектров ГКРП определялось, в основном углом $\Delta\phi$ расходимости возбуждающего луча в кристалле ($\Delta\phi = 1^\circ$). Многоканальность системы регистрации позволяла исследовать одновременно участок спектра, который, в зависимости от дисперсии спектрографа, составлял 1000 или 2000 см^{-1} . Поляритонные спектры верхней ветви исследованы с разрешением 30 см^{-1} , а других ветвей — с разрешением 10 см^{-1} .

В стоксовом процессе ГКРП, где принимают участие три фотона и один поляритон с волновым вектором \mathbf{q} и с частотой Ω , выполняются следующие соотношения:

$$2\omega_i = \omega_s + \Omega, \quad (1)$$

$$2k_i = k_s + q. \quad (2)$$

Здесь индексы i и s относятся к падающему и рассеянному излучению соответственно. Значения волнового вектора q зависят от угла рассеяния θ . Соотношения (1) и (2) позволяют найти поляритонную дисперсию $\Omega(q)$ по экспериментальной зависимости $\Omega(\theta)$. С другой стороны, нетрудно показать, что в ГКРП, как и в КРП [6], дисперсионная зависимость поляритонов описывается соотношением

$$q^2 = 4\pi^2 \Omega^2 \epsilon_\infty \prod_{m=1}^3 \frac{\Omega_{Lm}^2 - \Omega^2}{\Omega_{Tm}^2 - \Omega^2}, \quad (3)$$

где ϵ_∞ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость, Ω_{Lm} и Ω_{Tm} — частоты продольных и поперечных колебаний кристалла. Волновой вектор q и частоты в (3) выражены в см^{-1} . Для расчета по формуле (3) дисперсионных зависимостей различных поляритонных ветвей

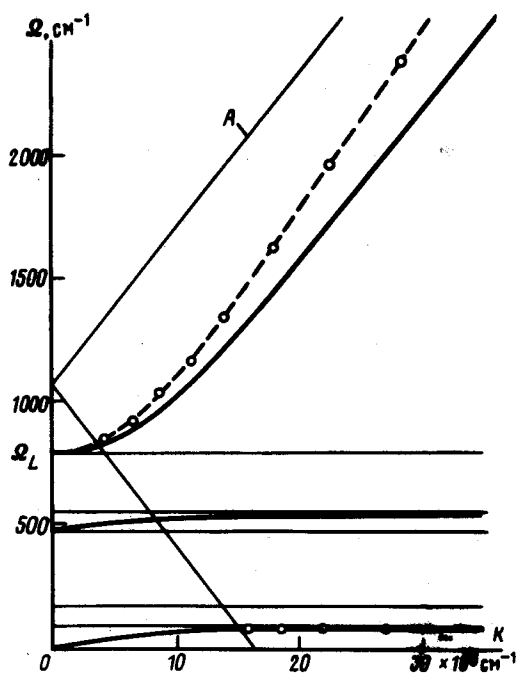


Рис. 1. Дисперсионные зависимости поляритонов в кристалле SrTiO_3 . Сплошные линии — расчетные зависимости $\Omega(q)$ при $\epsilon_\infty = 5,5$, пунктирные — при $\epsilon_\infty = 4,05$. Линия A — зависимость $q_{\min}(\Omega)$ при $\theta = 0^\circ$

в кристалле SrTiO_3 , представленных на рис. 1, значения ϵ_∞ , Ω_{Lm} и Ω_{Tm} взяты из [3, 7]. Минимальное значение q_{\min} , которое можно получить в эксперименте, определяется из формулы (2) при $\theta = 0^\circ$:

$$q_{\min} = 4\pi\omega_i (n_i - n_s) + 2\pi n_s \Omega, \quad (4)$$

где n_i , n_s — показатели преломления, и оно линейно зависит от частоты Ω (рис. 1). ГКРП происходит лишь на тех поляритонах, значения q

и Ω которых удовлетворяют соотношениям (1) — (3) и, следовательно, лежат на дисперсионных кривых справа от линии $q_{min}(\Omega)$ (рис. 1). Отметим две особенности ГКРП, которые можно ожидать для кубического кристалла SrTiO_3 (рис. 1). Первая — поляритоны практически всей верхней ветви, начиная с 825 см^{-1} и выше, могут быть активны в ГКРП; вторая — на нижних ветвях ожидается малый сдвиг частот поляритонов.

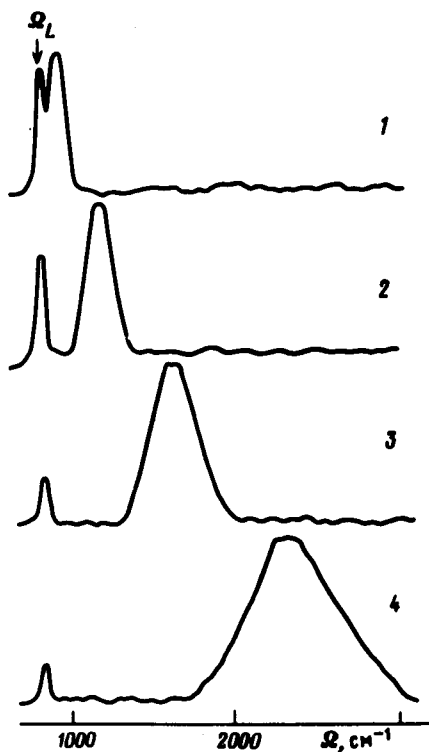


Рис. 2. Спектры ГКРП верхней ветви поляритонов кристалла SrTiO_3 при различных углах рассеяния θ : 1 — $1,3^\circ$, 2 — $2,3^\circ$, 3 — $3,3^\circ$ и 4 — $4,4^\circ$.

Спектры поляритонов верхней ветви для некоторых углов θ показаны на рис. 2. У нас спектральный интервал частот, приходящийся на аппаратную функцию $\Delta\phi + \Delta\theta$ схемы сбора рассеянного света, больше собственной ширины поляритона на верхней ветви и быстро увеличивается с ростом частоты поляритона. Поэтому в спектре ГКРП поляритон также уширяется с ростом угла рассеяния θ (рис. 2), хотя при этом собственная ширина поляритона на верхней ветви должна уменьшаться. Интенсивности поляритонов были достаточны лишь для наблюдения двух ветвей — верхней и нижней. Все экспериментальные значения $\Omega(q)$ показаны точками на рис. 1. На нижней ветви частота поляритонов уменьшается от 88 см^{-1} при $\theta = 90^\circ$ до 75 см^{-1} при $\theta = 0^\circ$. Очень большое смещение поляритона наблюдается на верхней ветви — от $\sim 830 \text{ см}^{-1}$ при $\theta = 0^\circ$ до 2370 см^{-1} при $\theta = 4,4^\circ$ внутри кристалла.

На нижней поляритонной ветви экспериментальные точки хорошо ложатся на расчетную кривую. На верхней ветви точки систематически отклоняются в одну сторону от расчетной кривой (рис. 1). Анализ возможных причин отклонения показал, что наиболее вероятной может

быть неправильное значение $\epsilon_{\infty} = -5,5$ для SrTiO_3 , которое известно из литературы [7] и принималось в расчете дисперсионных кривых по формуле (3). Если же взять $\epsilon_{\infty} = 4,1 \pm 0,1$, то экспериментальные точки хорошо ложатся на расчетную верхнюю ветвь (рис. 1, пунктирная кривая).

Наш эксперимент демонстрирует, таким образом, возможность и перспективность исследования поляритонов методом ГКР.

Институт спектроскопии
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
23 ноября 1979 г.

Литература

- [1] Ю.Н.Поливанов. УФН, 126, 185, 1978.
 - [2] Ю.Н.Поливанов, Р.Ш.Саяхов. Краткие сообщения по физике, №1, 23, 1978.
 - [3] H. Vogt, G. Neumann. Phys. Stat. Sol., 92B, 57, 1979.
 - [4] В.Н.Денисов, Б.Н.Маврин, В.Б.Подобедов, Х.Е.Стерин. ЖЭТФ, 75, 684, 1978.
 - [5] R. Claus. Rev. Sci. Instrum., 42, 341, 1971.
 - [6] В.М.Агранович, В.Л.Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. М., изд. Наука, §16, 1979.
 - [7] R. A. Cowley. Phys. Rev., 134, A981, 1964.
-