

РЕЗОНАНСНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ В ШИРОКОЩЕЛЕВЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ LiH И LiD

В.Г.Плеханов, А.А.О'Коннель-Бронин

Обнаружено резонансное комбинационное рассеяние света в кубических кристаллах LiH и LiD, интенсивность второго порядка которого проявляет аномальное температурное поведение.

Резонансное комбинационное рассеяние света (РКРС) является наиболее распространенным и удобным спектроскопическим методом исследования элементарных возбуждений и их взаимодействия между собой в конденсированных средах [1 - 3]. Применение этого метода привело к большому успеху в физике элементарных возбуждений полупроводниковых кристаллов ($E_g \lesssim 3$ эв). Благодаря лазерному возбуждению исследовано не только разрешенное, но и "запрещенное" РКРС, обусловленное внутризонным фрелиховским механизмом рассеяния, который является основным для ионных кристаллов.

Нами впервые зарегистрировано и исследовано многофононное (включая четвертый порядок) РКРС на свободных экситонах в ионных (решетка типа NaCl) кристаллах LiH и LiD, ширина запрещенных энергий $E_g = 4,985$ и $5,090$ эв, соответственно. Для этих кристаллов характерно наличие экситонов большого радиуса [4]. Близость энергии возбуждающих квантов к максимуму линии экситонного поглощения приводит к достаточно большой интенсивности рассеянного света. Благодаря этому появляется возможность исследовать с высоким разрешением спектр комбинационного рассеяния от линии, выделяемой монохроматором из сплошного спектра дейтериевой лампы. Измерения проводились в геометрии рассеяния назад или под прямым углом к возбуждающему свету в интервале температур 2 - 250 К.

При возбуждении светом выше края собственного поглощения спектр излучения экситонов в кристаллах LiH (аналогично и LiD) состоит (рис. 1, кривая а, $E_{\text{возб}} = 5,5$ эв) из почти резонансной с поглощением ($E_0 = 4,948$ эв) линии излучения ($4,942$ эв) и ее четырех LO повторений. В случае более длинноволнового возбуждения (кривая б, $E_{\text{возб}} = 4,977$ эв), кроме указанных линий излучения (на рис. 1 воспроизведена только линия 2 LO повторения), в коротковолновой области от линии 2 LO излучения наблюдается слабая линия, отстоящая от линии возбуждения на удвоенную энергию LO фонона¹⁾. Названная линия при дальнейшем увеличении длины волны возбуждающего света (кривая в, $E_{\text{возб}} = 4,886$ эв) испытывает сдвиг одновременно с линией возбуждения, при этом энергетическая разность между ними постоянна и равна удвоенной энергии LO фонона.

¹⁾ Точное значение энергии LO фонона $\hbar\omega_{LO} = 140 \pm 1$ мэв измерено при возбуждении линией $\lambda = 253,7$ нм ртутной лампы.

Зависимость интенсивности РКРС второго порядка (аналогично и для LiD) от частоты возбуждающего света (без поправки на поглощение) представлена на рис. 1, *г*. Для проверки закона $\sim \omega^4$ использовалась

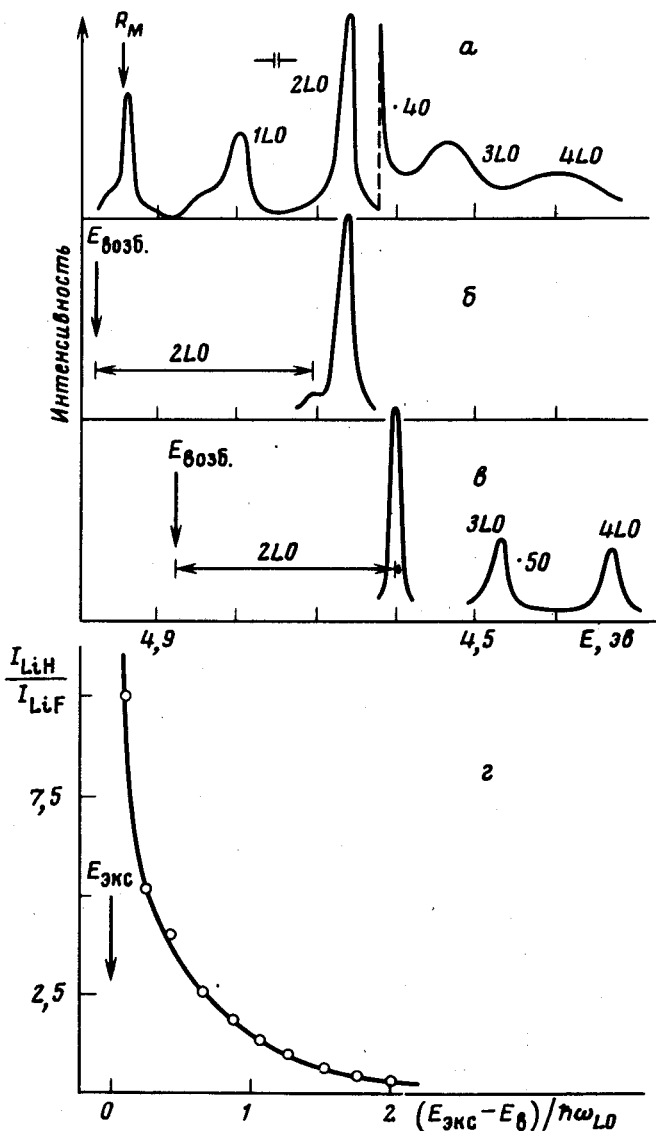


Рис. 1. Спектры излучения (*a, б*) и рассеяния (*б, в*) экситонов и зависимость интенсивности второго порядка от частоты возбуждающего света (*г*, кристаллов LiH при 4,2K. Стрелка указывает положение максимума $n = 1$ экситона в спектре отражения. Разрешение спектрального прибора указано

пластинка LiF, дисперсия коэффициента преломления которого в области $4,5 + 5,5 \text{ эВ}$ мала. Приведенная на рис. 1, *г* интенсивность второго порядка нормирована на интенсивность рассеянного света от пластинки LiF, которая измерялась на частоте $2LO$ фона. Изме-

ние энергии возбуждающих квантов света в интервале $0,15 \leq \frac{E_{\text{экс}} - E_{\text{возб}}}{\hbar\omega_{LO}} < 2$ приводит к возрастанию интенсивности рассеяния

второго порядка в двадцать пять раз²⁾.

Как видно из рис. 1 (кривые б и в), рассеяние второго порядка удастся наблюдать не только с длинноволновой, но и с коротковолновой стороны от $2LO$ линии излучения экситонов. Учитывая известное значение продольно-поперечного расщепления $\Delta E_{LT} \approx 12 \text{ мэв}$ [4], подчеркнем, что в процессах рассеяния принимают участие не только поляритоны нижней, но и верхней поляритонной ветви. Отсюда вытекает, что промежуточными состояниями в процессах рассеяния выступают экситонные состояния. В пользу такого объяснения свидетельствует также экспериментально наблюдаемое аномальное поведение интенсивности рассеяния второго порядка при изменении температуры (рис. 2).

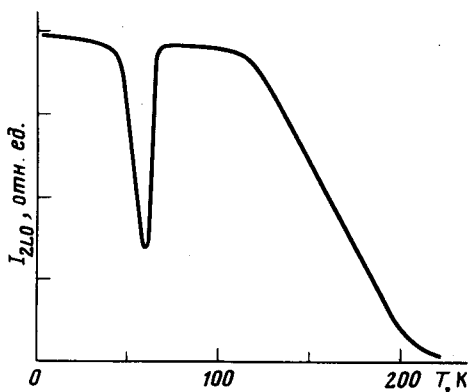


Рис. 2. Температурное поведение интенсивности рассеяния второго порядка в кристаллах LiN

Не исключено, что появление острого минимума в этой зависимости в области температур $\sim 50 \text{ K}$ может быть обусловлено интерференцией амплитуд рассеяния от разных промежуточных состояний [5]. При повышении температуры максимум $n = 3$ экситона (энергия связи, которого равна $\approx 5 \text{ мэв}$) попадает в резонанс с возбуждением, при этом амплитуда рассеяния с участием этого состояния имеет обратный знак по сравнению с основной амплитудой рассеяния, связанной с другими экситонными состояниями. Интерференция этих амплитуд обуславливает, по-видимому, наблюдаемый минимум. Следует отметить, что положение, форма линии и ее полуширина в области температур $2 - 200 \text{ K}$ остаются неизменными.

В заключение кратко проанализируем причины низкой интенсивности в спектрах "запрещенного" первого порядка РКРС. Согласно результатам Мартина [6], учет волнового вектора возбуждающего света, может привести к снятию запрета на рассеяние первого порядка, особен-

²⁾ Учитывая, что в указанном интервале энергий коэффициент поглощения изменяется на шесть порядков ($K \approx 10^6 \text{ см}^{-1}$), получаем, что сечение рассеяния второго порядка возрастает в $2,5 \cdot 10^7$ раз.

но для экситонов большого радиуса (см., однако [7]). Действительно, вероятность рассеяния пропорциональна квадрату волнового вектора фонона $q \sim 2\pi/r_B \sim 4 \cdot 10^7 \text{ см}^{-1}$, где r_B — радиус экситона. Волновой вектор возбуждающего света в области резонанса составляет $K \sim 9 \cdot 10^6 \text{ см}^{-1}$. В согласии с законом сохранения квазиимпульса, в первом порядке рассеиваются фононы с $q \sim 9 \cdot 10^6 \text{ см}^{-1}$, фононы же с $q \sim 4 \cdot 10^7 \text{ см}^{-1}$ актуальны в рассеянии второго и выше порядков. Отсюда следует, что интенсивность первого порядка, приблизительно в десять — пятнадцать раз должна быть меньше, чем у второго порядка. Однако, мы не наблюдали линии первого порядка при увеличении чувствительности нашей установки более чем в двадцать раз. Отметим, что четвертый порядок имеет сравнимую с третьим порядком интенсивность рассеянного света.

Таким образом, вышеприведенные экспериментальные результаты свидетельствуют о наблюдении резонансного комбинационного рассеяния света в широкощелевых диэлектриках LiH и LiD. Аномальное температурное поведение второго порядка, по-видимому, обусловлено интерференцией амплитуд рассеяния, связанных с участием в процессах рассеяния разных экситонных состояний.

Авторы благодарны В.В.Хижнякову, Г.С.Завту и В.И.Алтухову за полезные дискуссии, Ф.Ф.Гаврилову за предоставленные кристаллы.

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
13 февраля 1978 г.

Литература

- [1] Light Scattering in Solids, ed. M.Balkanski, Flammarion, Paris, 1971.
- [2] Light Scattering in Solids, eds. M.Balkanski, R.C.C. Leite, S.P.S., Porto, Flammarion, Paris, 1975.
- [3] The Theory of Light Scattering in Solids, eds. prof. V.M.Agranovich, profs. J.L.Birman. Nauka, Moscow, 1976.
- [4] В.Г.Плеханов, А.А.О'Коннель-Бронин, Т.А.Бетенекова. ФТТ, 19, 3297, 1977; 20, №7, 1978.
- [5] В.В.Хижняков. Автореферат докторской диссертации, ТГУ, Тарту, 1972.
- [6] R.M.Martin, in [1] p. 25; Phys. Rev., B4, 3676, 1971.
- [7] P.F.Williams, S.P.S. Porto. Phys. Rev., B8, 1782, 1973; S.Permogorov, A.Reznitsky. Solid. State Comm., 18, 781, 1976.