

## РЕЗОНАНСНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ АНТРАЦЕНА

*В.Л.Броуде, А.А.Максимов, И.И.Тартаковский*

При возбуждении кристаллов антрацена ( $T = 4,2 \pm 30\text{К}$ ) перестраиваемым лазером на красителе вблизи дна нижней экситонной зоны ( $\nu_0 = 25097 \text{ см}^{-1}$ ) обнаружено резкое возрастание интенсивности комбинационного рассеяния (КР) света и не менее резкое падение его интенсивности в непосредственной близости к резонансу. Найдена чрезвычайно высокая чувствительность интенсивности КР к интенсивности возбуждающего света и к температуре кристалла. Полученные результаты обсуждаются в рамках представления о вынужденном резонансном КР света.

Исследования резонансного комбинационного рассеяния света (РКР) в кристаллах антрацена проводились на сублимированных монокристаллических образцах толщиной  $5 + 30 \text{ мкм}$  с развитой *ab*-плоскостью. Свободно смонтированные образцы помещались в оптический термостат с регулируемой температурой ( $4,2 + 100\text{К}$ ). Возбуждение РКР осуществлялось перестраиваемым лазером на красителе ВРО в диапазоне  $\nu_{\text{Возб}} = 25000 + 25100 \text{ см}^{-1}$ ; полуширина линии возбуждения составляла  $\lesssim 1,5 \text{ см}^{-1}$ . Возбуждающий свет направлялся нормально к *ab*-плоскости кристалла антрацена (вдоль оси *c\**) и был линейно поляризован ( $E_{\text{Возб}} \parallel b$ ). Наблюдение РКР осуществлялось в том же направлении и при той же поляризации (см. схему на рис. 1).

На рис. 1 приведена зависимость интенсивности  $I_R$  линии РКР при участии внутримолекулярного колебания  $1402 \text{ см}^{-1}$  кристалла антрацена ( $\sim 15 \text{ мкм}$ ) от частоты возбуждающего света  $\nu_{\text{Возб}}$  при плотности оптической накачки  $\sim 1 \text{ Вт/см}^2$  (кривая 1). Ширина линии РКР была близка к ширине линии возбуждения ( $\sim 1,5 \text{ см}^{-1}$ ). При сканировании частоты  $\nu_{\text{Возб}}$  наблюдалось одновременное изменение частоты рассеянного света  $\nu_R$  так, что  $\nu_{\text{Возб}} - \nu_R = 1402 \pm 2 \text{ см}^{-1}$ . При  $\nu_0 - \nu_{\text{Возб}} = 100 + 40 \text{ см}^{-1}$  обнаружено возрастание интенсивности  $I_R$ , после чего наблюдается резкое падение этой интенсивности при  $\nu_0 - \nu_{\text{Возб}} = 35 + 15 \text{ см}^{-1}$ . При  $\nu_{\text{Возб}} >$

$\geq 25060 \text{ см}^{-1}$  в измеряемом спектре возникала полоса собственной люминесценции кристалла с частотой  $23692 \text{ см}^{-1}$  и шириной  $\sim 5 \text{ см}^{-1}$ , которая отстояла от дна экситонной зоны на  $1404 \text{ см}^{-1}$  вне зависимости от  $\nu_{\text{возб}}$  (кривая 2 на рис. 1). Таким образом, при  $\nu_{\text{возб}} \geq 25060 \text{ см}^{-1}$  в спектре наблюдался дублет полос с переменным интервалом между ними и меняющимися относительными интенсивностями. Аналогичную картину можно было наблюдать и в области молекулярного колебания  $395 \text{ см}^{-1}$  с тем лишь отличием, что интенсивность линии РКР в этом случае была заметно ниже.

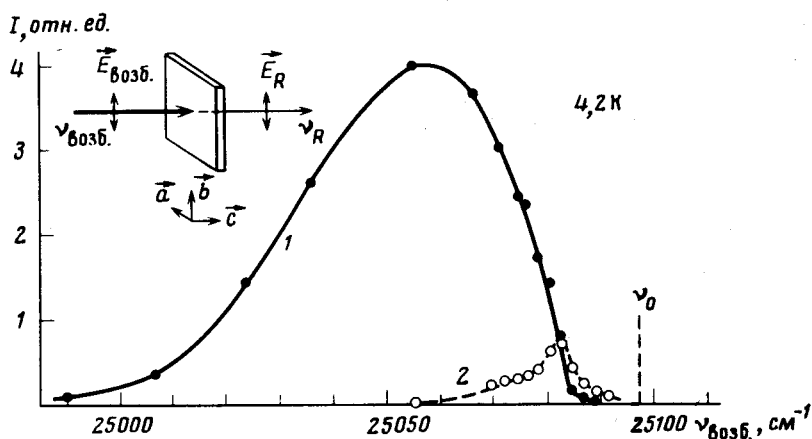


Рис. 1

Интенсивность РКР резко зависела от интенсивности возбуждающего света и при его ослаблении на  $\sim 20\%$  падала втрое. Эта нелинейная зависимость, а также аномально высокая относительная интенсивность линии  $\nu_R = \nu_{\text{возб}} - 1402 \text{ см}^{-1}$  в спектре РКР по сравнению с обычным спектром КР, свидетельствуют о том, что в данном случае имеет место вынужденное рассеяние света (ВРКР). Прямым доказательством вынужденного характера рассеяния явилось найденное сверхлинейное возрастание интенсивности рассеяния с ростом толщины образцов. Для кристаллов толщиной  $\sim 30 \text{ мм}$  при накачках  $\sim 10 \text{ Мвт/см}^2$  было получено  $20\%$ -е преобразование возбуждающего света в ВРКР. В этих условиях наблюдалась глубокая модуляция интенсивности ВРКР при изменении  $\nu_{\text{возб}}$ , имеющая периодичность  $\sim 25 \text{ см}^{-1}$ . Можно полагать, что эта модуляция связана с перестройкой генерирующих мод специфического резонатора, длина которого совпадает с толщиной образца, а обратная связь осуществляется за счет отражения света от развитых параллельных поверхностей кристалла.

Возрастание интенсивности КР при приближении к резонансу хорошо известно и в настоящее время широко исследуется. Известно также возникновение вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в достаточно протяженных рассеивающих средах. Естественно, что рост поперечника КР при приближении к резонансу должен способство-

вать переходу в режим вынужденного рассеяния даже при столь малых толщинах образцов, как в нашем случае. Однако нам не известны другие литературные данные по росту интенсивности вынужденного КР в резонансных условиях. Не отмечалось ранее и падение интенсивности рассеяния в непосредственной близости от резонанса. Мы полагаем, что наблюдаемое нами падение величины  $I_R$  при  $\nu_0 - \nu_{\text{ВОЗБ}} < 35 \text{ см}^{-1}$  связано с небольшим эффективным ослаблением интенсивности возбуждающего света за счет длинноволнового хвоста поглощения вблизи дна экситонной зоны, а также за счет роста коэффициента отражения в этом интервале частот. Благодаря высокой чувствительности ВРКР к интенсивности накачки, ее слабое уменьшение оказывает столь заметное действие на величину рассеяния. Наличие поглощения при  $\nu_0 - \nu_{\text{ВОЗБ}} < 35 \text{ см}^{-1}$  подтверждается также возникновением люминесценции при таком возбуждении (рис. 1).

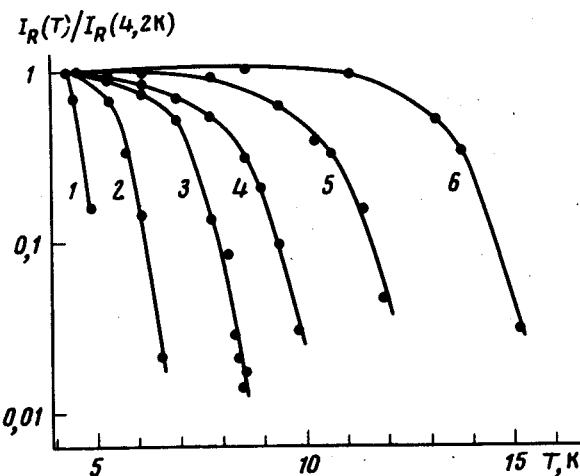


Рис. 2. Температурная зависимость относительной интенсивности  $I_R(T)/I_R(4,2\text{K})$  линии ВРКР с участием внутримолекулярного колебания  $1402 \text{ см}^{-1}$  для различных значений  $\nu_{\text{ВОЗБ}}$ : 1 —  $25085 \text{ см}^{-1}$ ; 2 —  $25078 \text{ см}^{-1}$ ; 3 —  $25072 \text{ см}^{-1}$ ; 4 —  $25066 \text{ см}^{-1}$ ; 5 —  $25053 \text{ см}^{-1}$ ; 6 —  $25041 \text{ см}^{-1}$ .

Подобная трактовка падения ВРКР вблизи резонанса нашла себе подтверждение при изучении температурной зависимости ВРКР. На рис. 2 показано влияние температуры в бане термостата на интенсивность ВРКР при различных  $\nu_{\text{ВОЗБ}}$ . Из этих данных видно, что наблюдается уникально резкая температурная зависимость интенсивности ВРКР, и она тем резче, чем ближе  $\nu_{\text{ВОЗБ}}$  к резонансу. Это, по-видимому, означает, что небольшие изменения поглощения при повышении температуры достаточны, чтобы из-за нелинейной зависимости вызвать заметное падение интенсивности рассеяния.

В заключение следует отметить, что количественные результаты измерения ВРКР существенно зависят от геометрии его наблюдения и возбуждения.