Письма в ЖЭТФ, том 23, вып. 1, стр. 3 – 6 *5 января 1976 г.*

ПОРОГОВЫЕ ЯВЛЕНИЯ ПРИ КОМБИНАЦИОННОМ РАССЕЯНИИ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ

И.Б.Левинсон, И.Л.Максимов

Изучена специфика комбинационного рассеяния света на поляритонах, имеющая место в том случае, когда процесс распада поперечного оптического фонона является пороговым. С изменением угла рассеяния форма линии качественно меняется.

Ширина и форма линии комбинационного рассеяния (КР) света на поляритонах [1] обусловлена распадом длинноволнового ($\mathbf{q} \approx 0$) поперечного оптического (TO) фонона, входящего в состав поляритона. Этот распад происходит обычно на два коротковолновых акустических фонона $\omega_1(\mathbf{q}_1)$ и $\omega_2(\mathbf{q}_2)$ в почти противоположных точках зоны Бриллюэна ($\mathbf{q}_1 \approx -\mathbf{q}_2$) и определяется двухфононной плотностью состояний $\rho(\omega)$, $\omega = \omega_1 + \omega_2$, вблизи частоты TO-фонона Ω_o.

Импульс поляритона $\mathbf{k}$, участвующего в рассеянии, связан с углом рассеяния θ. Так как изменение $\mathbf{k}$ приводит к изменению доли участия фонона в поляритоне $S(k)$ и к изменению частоты самого поляритона $\Omega(k)$, то при этом характер распада меняется, а следовательно, ширина и форма линии КР тоже изменяются. Наиболее сильными эти изменения будут в том случае, когда распад TO-фонона имеет особенность, т. е. когда Ω_o находится вблизи особенности $\rho(\omega)$.

Ниже рассматривается случай, когда $\mathbf{q}_1$ и $\mathbf{q}_2$ находятся вблизи края зоны Бриллюэна, где достигается $max(\omega_1 + \omega_2) \equiv \omega_o < \Omega_o$. При этом существует такой пороговый импульс поляритона k_o, когда $\Omega(k_o) = \omega_o$. Ниже порога, $k < k_o$, распад $\Omega_o \to \omega_1 + \omega_2$ дает вклад в ширину поляритона; выше порога, $k > k_o$, такой распад невозможен. Из общей теории пороговых явлений [2] следует, что спектр поляритона должен качественно перестраиваться при $k = k_o$. Целью настоящей работы является выяснение к каким эффектам эта перестройка приведет в спектре КР.

Опуская несущественные множители, можно дифференциальное сечение КР выразить через запаздывающую функцию Грина поляритона [3]:

$$\sigma(\theta, \nu') \sim -\operatorname{Im} D(k, \Omega), \tag{1}$$

$$\Omega = \nu' - \nu, \quad c^2k^2 = \nu^2 + \nu'^2 - 2\nu\nu'\cos\theta. \tag{2}$$

Здесь ν и ν' – частоты падающего и рассеянного света, c – скорость света в среде. Далее

$$D(k, \Omega) = (2\pi)^{-1}(\Omega^2 - c^2k^2)\{[\Omega^2 - \Omega_0^2 + 2\Omega_0 \Pi(\Omega)][\Omega^2 - c^2k^2] - \Omega_p^2\Omega^2\}^{-1}, \tag{3}$$

где

$$\Omega_p^2 = \Omega_{LO}^2 - \Omega_{TO}^2 = \Omega_0^2(\epsilon_0/\epsilon_\infty - 1). \tag{4}$$

ϵ_0 и ϵ_∞ – диэлектрические проницаемости. $\Pi(\Omega)$ есть поляризационный оператор TO-фонона с $q = 0$, учитывающий фононный ангармонизм. Так как при данном k существенны только Ω близкие к частоте поляритона $\Omega(k)$, вычисленной при $\Pi = 0$, то сечение можно переписать в виде

$$- \mathrm{Im} D(k, \Omega) = (4\pi)^{-1} S^2(k)\Gamma(\Omega)/\Omega_0 \times$$
$$\times \{[\Omega - \Omega(k) + S(k)\Delta(\Omega)]^2 + [S(k)\Gamma(\Omega)]^2\}^{-1}, \tag{5}$$

где $\Delta = \mathrm{Re}\Pi$ и $\Gamma = \mathrm{Im}\Pi$. При этом, вычисляя k согласно (2), можно считать $\nu' = \nu - \Omega(k)$. Тогда k оказывается однозначно связанным с θ и независящим от ν', а форма линии при фиксированном θ определяется зависимостью D от Ω.

Если $\rho(\omega)$ не имеет особенностей, то $\Pi(\Omega)$ есть гладкая функция. Тогда Γ и Δ в (5) можно считать независящими от Ω и вычислять при $\Omega = \Omega(k)$. В этом случае линия КР оказывается Лоренцовой с шириной $S(k)\Gamma(\Omega(k))$, которая плавно меняется с изменением θ; сдвиг частоты $S(k)\Delta(\Omega(k))$ в эксперименте обнаружить трудно.

Для рассмотренного выше порогового распада $\rho(\omega)$ имеет особенность $(\omega_0 - \omega)^{1/2}$. В этом случае [2] при $\Omega > \omega_0$:

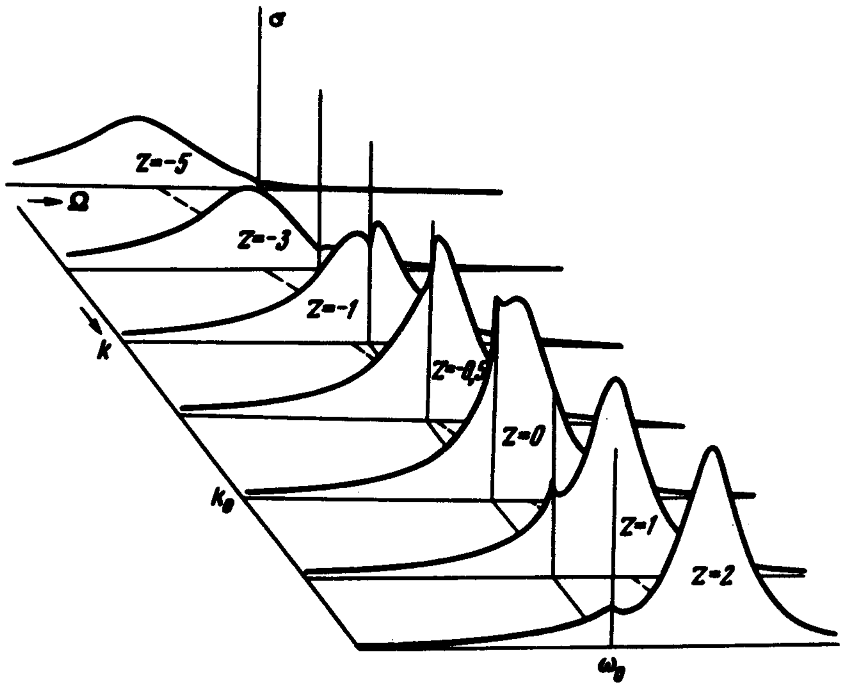
$$\Gamma(\Omega) = \Gamma_0, \quad \Delta(\Omega) = \Delta_0 - [\gamma(\Omega - \omega_0)]^{1/2},$$

при $\Omega < \omega_0$: (6)

$$\Gamma(\Omega) = \Gamma_0 + [\gamma(\omega_0 - \Omega)]^{1/2}, \quad \Delta(\Omega) = \Delta_0 .$$

Здесь Γ_0 и Δ_0 соответствуют гладкой части $\Pi(\Omega)$; вблизи порога их можно считать постоянными. Δ_0 можно включить в затравочный спектр, и поэтому в дальнейшем $\Delta_0 = 0$. γ – постоянная ответственная за скорость порогового распада. Подставляя (6) в (5), можно найти форму линии КР, которая из-за зависимости Γ и Δ от Ω оказывается весьма сложной и сильно зависящей от соотношения между параметрами $\delta(k) = \Omega(k) - \omega_0$, Γ_0 и γ. Поэтому при изменении θ, когда меняется $\delta(k)$, форма линии меняется. Наиболее существенная перестройка происходит при $\theta = \theta_0$, т. е. $k = k_0$, когда $\delta(k)$ меняет знак. Это иллюстрируется рисунком, на котором показана форма линии КР при различных расстояниях до порога ($Z = \delta(k)/\Gamma_0$, $\gamma/\Gamma_0 = 0{,}8$).

Ситуация, близкая к рассмотренной, реализуется в GaP, где частота $\Omega_0 = 366\ см^{-1}$ близка к сумме частот акустических, фононов в точке X на краю зоны Бриллюэна: $LA(X) + TA(X) = 249\ см^{-1} + 107\ см^{-1} = 356\ см^{-1} \equiv \omega_0$. Сравнение ω_0 с $\omega_{TA} + \omega_{LA}$ в точках K и L на границе зоны позволяет считать, что $max(\omega_{TA} + \omega_{LA})$ достигается в точке X. С другой стороны, температурные измерения ширины линии [4] прямо указывают на наличие распада $TO \to LA(X) + TA(X)$. Принимая для GaP $\Omega_{LO} = 403\ см^{-1}$ и $\epsilon_\infty = 9{,}09$, найдем $k_0 \approx 2\pi \cdot 2500\ см^{-1}$ и $\theta_0 = 2°$.



В экспериментах по КР в GaP действительно были обнаружены аномалии. При рассеянии на $\theta = \pi/2$ линия КР имеет длинноволновое плечо [5, 6]; оно является, вероятно, сглаженным (из-за недостаточного разрешения) дополнительным пиком, который виден на рисунке при $k > k_0$ (т. е. $\theta > \theta_0$). При рассеянии на углы $\theta < 2°$ обнаруживается резкая зависимость "ширины" линии КР от угла [7]. Можно думать, что это есть замаскированное отражение того обстоятельства, что линию сложной формы нельзя описывать просто шириной. Тщательное измерение формы линии КР при разных углах θ вблизи θ_0 позволило бы очень точно определить целый ряд параметров кристалла. Другим материалом, где были обнаружены аналогичные аномалии КР, является ZnSe [8].

Сложная форма линии приводит к неэкспоненциальному закону распада, который может быть измерен методом зондирующего пикосекундного импульса [9]. К сожалению, эксперимент, который был реализован в GaP [9], относился к поляритону с $k \approx 2\pi \cdot 2770\ см^{-1}$ и $\Omega(k) \approx 361\ см^{-1}$. Такой поляритон лежит существенно выше порога, где форма линии близка к Лоренцевой, и поэтому неудивительно, что в пределах точности эксперимента распад оказался экспоненциальным. При возбуждении поляритонов с меньшими k следует ожидать неэкспоненциального распада, или, по крайней мере, зависимости времени жизни от k [10].

Институт теоретической физики
им. Л.Д.Ландау
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
21 ноября 1975 г.

Литература

[1] D.L.Mills, E.Burstein. Rep. Progr. Phys., 37, 817, 1974.

[2] И.Б.Левинсон, Э.И.Рашба. УФН, 111, 683, 1973; Y.B.Levinson, E.I.Rashba. Rep. on Progr. in Phys., 36, 1499, 1973.

[3] H.S.Benson, D.L.Mills, Phys. Rev., B1, 4835, 1970.

[4] S.Ushioda, J.D.McMullen, M.J.Delaney. Phys. Rev., B8, 4634, 1973.

[5] A.S.Barker. Jr. Phys. Rev., 165, 917, 1968.

[6] Б.Х.Байрамов, Ю.Э.Китаев, В.К.Негодуйко, Э.М.Хашхожев. ФТТ, 16, 1129, 2036, 1974.

[7] S.Ushioda, J.D.McMullen. Solid State Comm., 11, 299, 1972.

[8] J.H.Nicola, R.C.C.Leite. Phys. Rev., B11, 798, 1975.

[9] A.Laubereau, D. von der Linde, W.Kaiser. Optics Comm., 7, 173, 1973.

[10] P.G.Harper. Optics Comm., 10, 68, 1974.