

МНОГОФОНОННОЕ РЕЗОНАНСНОЕ ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА

Л.Е.Зубкова, К.К.Ондриш, Ю.Н.Поливанов, К.А.Прохоров

*Институт общей физики РАН
117942 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 27 января 1993 г.

После переработки 23 февраля 1993 г.

Впервые зарегистрировано многофононное резонансное гиперкомбинационное рассеяние света на продольных оптических фононах при исследовании кристалла CdS. Обнаружен чередующийся характер изменения сечений рассеяния с увеличением числа возбуждаемых фононов, прямо противоположный случаю резонансного комбинационного рассеяния. Наблюдаемое отличие объясняется различной последовательностью промежуточных состояний при многофононном комбинационном и гиперкомбинационном рассеянии.

Рассеяние света вблизи края собственного поглощения кристаллов привлекает значительное внимание исследователей, поскольку его изучение позволяет получать важную информацию о природе и механизмах электрон-фононного взаимодействия, а резонансное увеличение интенсивности существенно расширяет экспериментальные возможности. В настоящее время уже накоплен обширный экспериментальный и теоретический материал по резонансному комбинационному рассеянию (КР) света (см., например, ¹). Вызывает интерес также исследование и резонансного гиперкомбинационного (ГКР) или двухфотонного комбинационного рассеяния света, представляющего собой процесс более высокого порядка в разложении поляризации среды по степеням электрического поля. При ГКР происходит одновременное поглощение двух фотонов частоты ω_1 и рождение одного рассеянного фотона с частотой ω_s , а кристалл переходит из основного состояния в возбужденное с рождением одного (однофононное) или более (многофононное рассеяние) фононов ²⁻⁴. Увеличение числа фотонов в элементарном акте ГКР в сравнении с КР приводит к изменению правил отбора и роли промежуточных состояний, а следовательно, и к новым особенностям спектров резонансного рассеяния. Имеется несколько работ, в которых сообщается о регистрации однофононного резонансного ГКР в кристаллах ⁵⁻¹⁰. Настоящая работа посвящена наблюдению многофононного резонансного ГКР и выявлению его особенностей в сравнении с известными спектрами резонансного КР.

Экспериментальное исследование проводилось с использованием одноканального автоматизированного спектрометра. Спектры ГКР возбуждались излучением одномодового импульсно-периодического Nd:YAG-лазера ЛТИ-502 (длина волны $\lambda = 1,064$ мкм, частота повторения от 5 до 20 кГц при длительности импульсов 300 нс и средней мощности до 6 Вт). Лазерное излучение фокусировалось в образец линзой с фокусным расстоянием 40 см, что обеспечивало плотность мощности в каустике пучка до 5 МВт/см². Рассеянный свет анализировался с помощью одинарного монохроматора THR-1000 (фирма "JOBIN YVON") с дифракционной решеткой 1800 штрихов/мм, фокусным расстоянием 1 м, относительным отверстием 1/10 и линейной дисперсией $\approx 5 \text{ \AA}/\text{мм}$.

Регистрация осуществлялась охлаждаемым до -30°C фотоэлектронным умножителем ФЭУ-106, работающим в режиме счета фотонов со стробированием. Благодаря охлаждению и стробированию ФЭУ темновые шумы электронной системы не превышали $1\div 2$ отсчета за 10^4 лазерных импульсов. Многократное сканирование, накопление и первичная математическая обработка спектров рассеяния осуществлялись с помощью персонального компьютера "Apple" со специально разработанным для экспериментов по ГКР программным обеспечением.

В качестве объекта исследования нами был выбран кристалл CdS, поскольку ширина его запрещенной зоны $^{11} E_g = 2,53\text{эВ}$ близка к энергии удвоенного кванта Nd:YAG лазера и в этих условиях ранее наблюдалось резонансное ГКР на продольных оптических фононах $^5 \omega_{LO}$. Кроме того, спектры резонансного КР в CdS детально изучены как экспериментально, так и теоретически 1,12 .

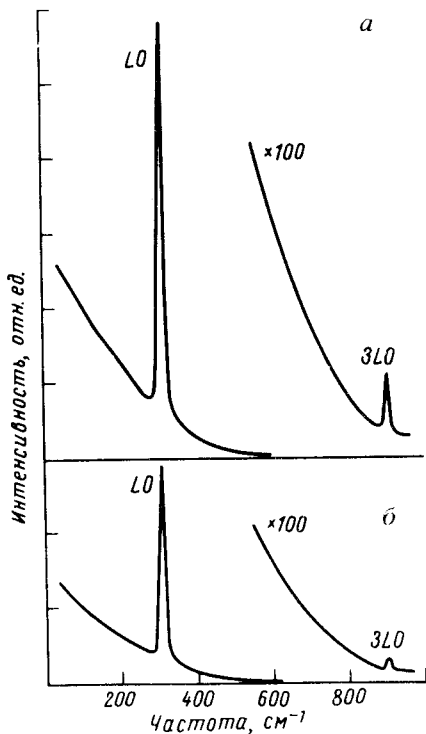


Рис.1

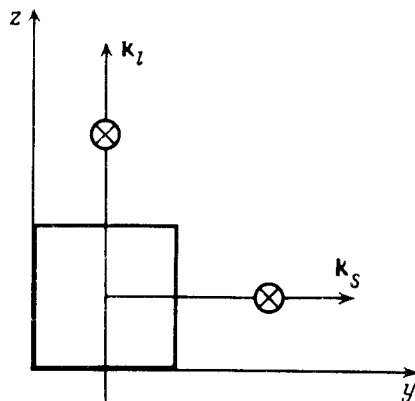


Рис.2

Рис.1. Спектры резонансного ГКР в CdS, полученные при частоте повторения импульсов возбуждающего излучения 10 кГц (а) и 20 кГц (б).

Рис.2. Схема, поясняющая геометрию рассеяния. \mathbf{k}_i и \mathbf{k}_s – волновые векторы возбуждающего и рассеянного света. Поляризация как возбуждающего, так и рассеянного излучения направлена вдоль оси x , то есть перпендикулярно плоскости рисунка

При постановке эксперимента основное внимание уделялось регистрации сигналов, соответствующих стоксовому рассеянию с частотными сдвигами $2\omega_{LO}$ и $3\omega_{LO}$. На рис.1 представлены спектры ГКР, полученные при комнатной

температуре кристалла CdS и геометрии рассеяния $z(x+z, x)y$, при которой падающая и рассеянная волны распространяются соответственно вдоль оси z и оси y и поляризованы вдоль оси x (рис.2)¹⁾. Линия ω_{LO} регистрировалась при двух циклах сканирования и времени накопления 5сек в точке. Для обнаружения сигнала на частотах $2\omega_{LO}$ и $3\omega_{LO}$ время накопления было увеличено в 30 раз по сравнению со временем накопления при наблюдении сигнала ω_{LO} (60 сек в точке, 5 циклов сканирования). В полученных спектрах наряду с ω_{LO} отчетливо наблюдается и линия $3\omega_{LO}$, однако линию на частоте $2\omega_{LO}$ при этих же условиях зарегистрировать не удалось. Заметим, что нам не удалось также обнаружить ГКР света на поперечных фонах, что свидетельствует о преобладании фрелиховского механизма взаимодействия при резонансном рассеянии в кристалле CdS.

Спектры *a* и *б*, приведенные на рис.1, возбуждались излучением с частотой повторения импульсов соответственно 10 и 20кГц. Увеличение частоты повторения в два раза приводило к двукратному возрастанию средней мощности излучения при неизменной пиковой мощности. В спектре *б* амплитуда линии ω_{LO} возросла приблизительно в 2 раза, а амплитуда линии $3\omega_{LO}$ — почти в 5 раз по сравнению со спектром *a*, соотношение интенсивностей этих линий I_{LO}/I_{3LO} изменилось от 1600 (спектр *a*) до 700 (спектр *б*). Наблюдаемые отличия спектров обусловлены, на наш взгляд, повышением температуры кристалла в каустике, связанным с увеличением средней мощности возбуждающего излучения. Повышение температуры кристалла приводит к уменьшению ширины запрещенной зоны и, как следствие, к изменению резонансных условий для процесса ГКР. Оценки, проведенные по температурной зависимости спектров ГКР на поляритонах¹⁴, показывают, что в данных условиях температура в каустике повышается примерно на 20°С.

Результаты этого эксперимента однозначно свидетельствуют о том, что в условиях многофононного резонансного ГКР света происходит чередование интенсивностей обертонов продольного оптического фона: в спектрах наблюдаются только линии рассеяния на фонах нечетного порядка (LO и $3LO$). В то же время, как хорошо известно из многочисленных исследований по резонансному рассеянию света в полупроводниковых кристаллах^{1,12}, в спектрах резонансного КР в CdS ситуация прямо противоположная: в рассеянии преобладают фононы четного порядка — $2LO$, $4LO$, $6LO$ и так далее.

Качественное объяснение различия в поведении интенсивностей линий многофононного рассеяния в резонансных спектрах КР и ГКР может быть дано на основании теории резонансного КР, развитой в работе¹². Согласно этой теории, нерегулярный характер интенсивностей в спектрах КР обусловлен различием в поведении сечений рассеяния четного и нечетного порядков: для сечений четного порядка можно составить цепочку промежуточных состояний чередующейся четности $s-p-s$, $s-p-s-p-s$ и так далее, тогда как для процессов нечетного порядка в цепочку необходимо включить по крайней мере один матричный элемент между состояниями одинаковой четности $s-p-s-s$, $s-s-p-s$, $s-p-p-s$ и так далее, поскольку первое и последнее

¹⁾Заметим, что в нецентросимметричном кристалле CdS в принципе возможна генерация второй гармоники возбуждающего излучения с последующим КР. Однако при указанной геометрии рассеяния генерация второй гармоники запрещена и, следовательно, обычное КР от нее не проявляется в спектрах ГКР. Применительно к кристаллу CdS этот вопрос изучался ранее в работе¹³.

состояния должны быть s -типа. Следовательно, в цепочке нечетного порядка появляется множитель $M^2 \ll 1$, соответствующий матричному элементу перехода между состояниями одинаковой четности, что объясняет наблюдавшееся ранее чередование интенсивностей в спектрах КР¹².

Применяя аналогичный подход при анализе спектров ГКР, приходим к цепочке промежуточных состояний чередующейся четности для процессов нечетного порядка ($p - s$, $p - s - p - s$ и так далее). Матричный элемент между состояниями одинаковой четности возникает теперь в процессах четного порядка, поскольку при ГКР первое состояние для электрон-фононного матричного элемента должно быть двухфотонно разрешенным, то есть p -типа, что и объясняет наблюдаемое нами чередование интенсивностей линий в спектрах ГКР. Для количественного описания эффекта необходимо развитие теории резонансного ГКР в полупроводниках.

В заключение авторы выражают признательность С.А.Пермогорову за плодотворные обсуждения, которые послужили стимулом для проведения данной работы.

-
1. Рассеяние света в твердых телах. Под ред. М.Карлоны, М.: Мир, 1979. (Light Scattering in Solids. Edited by M.Cardona, Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg - New York 1975).
 2. V.N.Denisov, B.N.Mavrin, V.B.Podobedov, Phys. Rep. **151**, 1 (1987).
 3. А.В.Баранов, Я.С.Бобович, В.И.Петров, УФН, **160**, 35 (1990).
 4. L.D.Ziegler, J. Raman Spectrosc. **21**, 767 (1990).
 5. Ю.Н.Поливанов, Р.Ш.Саяхов, Письма в ЖЭТФ, **30**, 617 (1979).
 6. K.Inoue, K.Watanabe, Phys. Rev. B **39**, 1977 (1989).
 7. K.Watanabe, K.Inoue, Phys. Rev. B **41**, 7957 (1990).
 8. K.Inoue, K.Yoshida, F.Minami et al., Phys. Rev. B **45**, 8807 (1992).
 9. K.Watanabe, K.Inoue, F.Minami, Phys. Rev. B **46**, 2024 (1992).
 10. K.Inoue, F.Minami, Y.Kato et al., J. Crystal Growth **117**, 738 (1992).
 11. M.Cardona, G.Harbeke, Phys. Rev. A **137**, 1467 (1965).
 12. А.А.Клочихин, С.А.Пермогоров, А.Н.Резницкий, ЖЭТФ **71**, 2230 (1976).
 13. Ю.Н.Поливанов, Р.Ш.Саяхов, КСФ N8, 31 (1979).
 14. К.К.Ондриащ, К.А.Прохоров, ФГТ, **32**, 2634 (1990).