

РЕЗОНАНСНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ОБЛАСТИ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ СВЕТА

А. А. Клочихин, А. Г. Плюхин

Впервые получено хорошее согласие наблюдаемой и теоретической частотной зависимости сечений одно- и двухфононного рассеяния в области основного состояния экситона. Показано, что асимметрия сечений обусловлена дисперсией экситонной зоны $n = 1$. Исследовано влияние поглощения и времени жизни экситона на сечение рассеяния.

Изучению резонансного комбинационного рассеяния света в кристаллах посвящено большое количество работ (см. например, [1, 2]). Однако сравнение эксперимента и теории оказывается весьма трудной задачей особенно в области основного состояния экситона, во-первых, из-за недостаточного числа экспериментальных точек, которое обычно удается получить с помощью набора возбуждающих линий, и, во-вторых, из-за неопределенности, которую, как правило, вносит поглощение падающего и рассеянного света. Результаты такого сравнения, полученные недавно в работах [3, 4] для однофотонного рассеяния, являются, как нам кажется, далеко не полными в этой области частот, где сечение меняется быстро и немонотонно.

В настоящей работе, используя метод рассеяния в смешанных кристаллах [5], мы детально исследовали частотную зависимость сечений одно- и двухфотонного рассеяния на LO -фононах в области основного состояния экситона и предлагаем теоретическое объяснение наблюдаемых эффектов. Эксперименты были выполнены на кристаллах $Zn_x Cd_{1-x} Te$ в геометрии $X(YZ)X$ при $T = 77K$, возбуждение осуществлялось $He - Ne$ лазером. Сильная зависимость ширины запрещенной зоны $Zn_x Cd_{1-x} Te$ от x позволяет практически плавно менять частоту экситонного перехода относительно частоты возбуждающего света.

На рис. 1, а приведены результаты измерений интенсивности линии двухфононного рассеяния. Обращает на себя внимание, что эта зависимость носит ярко асимметричный характер – резонанс с рассеянным светом ($\Delta = 2$) выражен гораздо сильнее, чем резонанс с возбуждающим светом ($\Delta = 0$). Теоретический расчет амплитуды этого процесса был выполнен в двузонном приближении с учетом дисперсии экситонных зон и зависимости внутризонных матричных элементов фреilihовского электрон-фононного взаимодействия от волнового вектора фононов. Амплитуда имеет вид

$$A_q^{II}(\omega) \sim \sum_{p_1, p_2, p'} K_{p_1 p'}(0; \omega) K_{p_1 - q(j); p_2 - q(j)}(q; \omega - \Omega_q) \times \\ \times [K_{p_2 p'}(0; \omega - 2\Omega_q) - K_{p_2 - q; p'}(0; \omega - 2\Omega_q)], \quad (1)$$

где

$$K_{pp'}(q, \omega) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\psi_n(p) \psi_n(p')}{\omega - \epsilon_g + E_n - \frac{q^2}{2M} + i\Gamma} + \frac{1}{\pi a} \int \frac{k dk \psi_k(p) \psi_k(p')}{\omega - \epsilon_g - \frac{k^2}{2\mu} - \frac{q^2}{2M} + i\Gamma} \quad (2)$$

Здесь ω — частота возбуждающего света, Ω_q — частота излучаемого фонона, ϵ_g — ширина запрещенной зоны, R — постоянная Ридберга для экситона, n — номер экситонной зоны, m_j — массы электрона и дырки,

$$\Gamma — \text{ширина экситонного уровня, } q^{(j)} = \frac{M}{m_j} q; \frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2}; M =$$

$= m_1 + m_2$. Матричные элементы электрон-фононного и электромагнитного взаимодействий вынесены в центре зоны и в (1) не выписаны. Вычисления показывают, что в интересующей нас области частот самым большим и быстро меняющимся членом амплитуды является диагональное по n слагаемое с $n = 1$. С точностью, достаточной для сравнения с экспериментом, мы можем ограничиться этим слагаемым для вычисления сечения. Тогда амплитуда принимает вид

$$A_q^{\text{II}}(\omega) \sim \frac{v_0}{\pi a^3} \frac{1}{(qa)^2} \frac{1}{R^3} \left[\frac{(e^{iq^{(1)}r} - e^{iq^{(2)}r})_{11} (e^{iq^{(1)}r} - e^{iq^{(2)}r})_{11}}{(\delta - 1 - i\gamma)(\delta_1 - 1 - i\gamma)(\delta' - 1 - i\gamma)} \right], \quad (3)$$

$$\text{где } \delta = \frac{\omega - \epsilon_g}{R}; \quad \delta' = \frac{\omega - \epsilon_g - 2\Omega_q}{R}; \quad \delta_1 = \frac{\omega - \epsilon_g - \frac{q^2}{2M} - \Omega_q}{R}.$$

a — боровский радиус экситона, v_0 — объем элементарной ячейки.

Результаты по исследованию однофононного процесса рассеяния (рис. 1, б) показывают, что и в этом случае доминирует резонанс с рассеянным светом. Теория рассеяния первого порядка не может объяснить этого факта. Для объяснения наблюдаемой частотной зависимости интенсивности однофононной линии мы предположили, что и в этом случае мы имеем дело с процессом второго порядка. Такое предположение основано на том, что в смешанных кристаллах флуктуации концентрации приводят к нерегулярным статическим смещениям атомов, которые могут быть разложены по всем возможным типам смещений с нулевой частотой. Для вычисления сечения мы предположили, что экситон рассеивается наиболее эффективно на оптических смещениях типа LO . Рассматривая влияние поглощения на интенсивность рассеяния необходимо учесть принципиальную особенность твердых растворов — размытие края межзонного поглощения за счет флуктуаций состава. Оценка характеристической энергии согласно [6] $\bar{\epsilon} = \Delta\epsilon_g c^2 / (\Delta\epsilon_g m_1 d^2 / \hbar^2)^3$ ($\Delta\epsilon_g$ — разность ширин запрещенных зон смешиваемых кристаллов, m_1 — масса электрона, d — постоянная решетки, c — концентрация) приводит к значению $\bar{\epsilon} \approx 0,05 \text{ эВ}$. Это значение оказывается в хорошем согласии с энергией $1/s = (2,5 - 5,0) \cdot 10^{-2} \text{ эВ}$, определяющей масштаб изменения коэффициента поглощения вблизи края

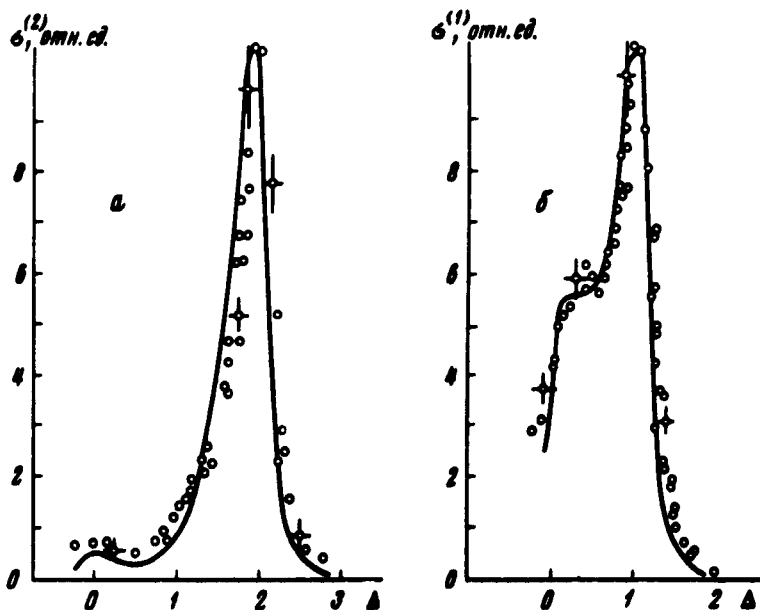


Рис.1. Частотная зависимость сечений двухфононного (а) и однофононного (б) рассеяния; $\Delta = (\omega - \epsilon_R - R) / \Omega_0$; точки — экспериментальные данные, сплошные кривые — теория

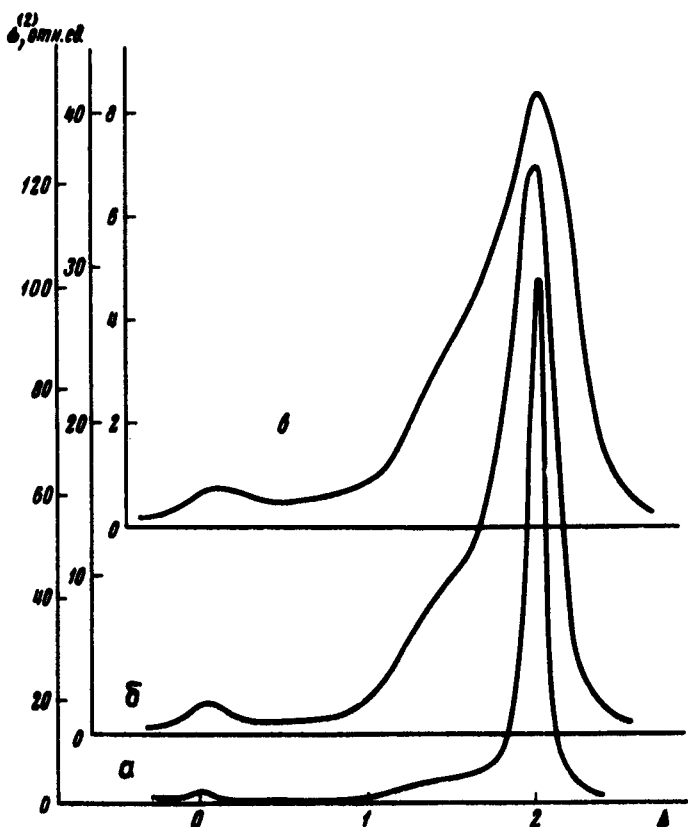


Рис.2. Зависимость $\delta^{(2)}(\Delta)$ при различных значениях Γ (теория): а — $\Gamma = 0,05\Omega_0$; б — $\Gamma = 0,15\Omega_0$; в — $\Gamma = 0,25\Omega_0$.

зоны [7]. Эти оценки дают основание считать, что в исследованных нами твердых растворах экситонная линия расположена на мощном фоне межзонного поглощения, изменение которого на энергии двух фононов невелико ($\Omega_0 = 0,024 \text{ эВ}$). Длина рассеяния при этом определяется большим, но слабо меняющимся обратным коэффициентом поглощения флуктуационного фона. В соответствии с [8] поправка на поглощение в этом случае незначительно сказывается на частотной зависимости сечения рассеяния. Теоретические сечения $\sigma^{(1)}$ и $\sigma^{(2)}$, построенные без поправок на поглощение, для значений $m_2/m_1 = 3$ и $\Gamma = 0,22 \Omega_0$ приведены на рис. 1. Для смешиваемых кристаллов m_2/m_1 равно 4 и 1 для CdTe и ZnTe соответственно; найденное из отражения значение $\Gamma (T=77\text{K})$ равно $0,25 \Omega_0$; оценка флуктуационного $\Gamma = \Delta \epsilon_g c^{1/2} (Rmd^2/\hbar^2)^{3/4}$ дает значение $\Gamma = 0,3 \Omega_0$. Как $\sigma^{(1)}$, так и $\sigma^{(2)}$ оказываются очень чувствительными к изменению Γ (рис. 2). В частности от Γ зависит асимметрия, то-есть отношение $\sigma^{(1)}(1)/\sigma^{(1)}(0)$ и $\sigma^{(2)}(2)/\sigma^{(2)}(0)$. С другой стороны асимметрия также чувствительна к поглощению; причем увеличение наклона кривой поглощения приводит к уменьшению асимметрии. Это позволило нам проанализировать вопрос о том, насколько точным было допущение о независимости коэффициента поглощения от частоты. Поскольку от величины Γ зависит также и полуширина максимумов (рис. 2), то ϵ не может превышать $(1,0 - 0,5) \cdot 10^{-1} \text{ эВ}$. При таких значениях $\tilde{\epsilon}$ теоретические кривые $\sigma^{(1)}(\Delta)$ и $\sigma^{(2)}(\Delta)$, построенные с учетом и без учета поглощения, одинаково хорошо согласуются с экспериментом, а различие в значениях Γ лежат в пределах точности ее измерений.

В заключение авторы выражают благодарность Л.Г.Суслиной, С.А.Пермогорову и Ю.П.Шабельскому за помощь в работе и обсуждение результатов.

Физико-технический институт
им А.Ф.Иоффе
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
7 января 1975 г.

Литература

- [1] П.П.Шорыгин. УФН, 109, 293, 1973.
- [2] Proc. Int. Conf. on Light scatt. in Solids. Paris., 1972.
- [3] R.Martin. Phys. Rev., B4, 3676, 1971.
- [4] R.Zeyher, C-S Ting, J.L.Birman. Phys. Rev., B10, 1725, 1974.
- [5] Е.Ф.Гросс, А.Г.Плюхин, Л.Г.Суслина, Е.Б.Шадрин. Письма в ЖЭТФ, 15, 312, 1972.
- [6] Ж.И.Алферов, А.А.Рогачев, Е.Л.Портной. ФТП, 2, 1194, 1968.
- [7] В.А.Тягай, О.В.Снитко и др. ФТТ, 16, 1373, 1974.
- [8] R.Loudon J. Phys. (Paris), 26, 677, 1965.