

УГЛОВАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ДВУХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В КРИСТАЛЛЕ СУЛЬФИДА ЦИНКА

М.Д.Галанни, З.А.Чижикова

Измерена зависимость двухфотонного поглощения в кристалле сульфида цинка от взаимной ориентации поляризации света и кристаллографических осей. Результаты показывают, что двухфотонный переход в области около 5 эв происходит между зонами Γ_{15} и Γ_1 .

Для измерения угловых зависимостей двухфотонного поглощения применялась методика с двумя независимыми источниками света, описанная в [1, 2]. В этой методике свет от обоих источников проходит через кристалл в противоположных направлениях, оба пучка линейно поляризованы, причем направления электрических векторов E_1 и E_2 в пучках могут устанавливаться параллельно или перпендикулярно друг другу. В качестве мощного источника служил рубиновый лазер с мощностью около 10 Вт/см^2 . Двухфотонное поглощение определялось путем измерения уменьшения пропускания света от второго источника (обычной импульсной лампы) в момент действия на кристалл света от лазера.

Исследованный кристалл с размерами $1,5 \times 0,6 \text{ см}$, выращенный из расплава, имеет, согласно [3, 4], гексагональную структуру. Ориентация кристалла производилась по плоскости спайности (по [4] это плоскость (1120)) и направлению оптической оси. Поглощение могло наблюдаться вдоль и перпендикулярно оптической оси. В последнем случае направление распространения обоих световых пучков было перпендикулярно плоскости спайности.

Длина волны света второго источника изменялась при помощи монохроматора от 540 до 400 нм, что соответствует энергии суммы двух фотонов $4 + 5 \text{ эв}$. Спектр двухфотонного поглощения в этой области (рис. 1, комнатная температура; поток $3 \cdot 10^{25} \text{ фотонов/см}^2\text{-сек}$) хорошо согласуется с данными для более длинноволновой области, полученными при помощи неодимового лазера в [5].

Измерение угловых зависимостей было проведено для коротковолновой части этого участка спектра. Направления электрического вектора E_1 лазерного света и E_2 — света второго источника устанавливались параллельно или перпендикулярно друг другу и измерялась зависимость поглощения от угла θ поворота кристалла относительно направления распространения световых пучков.

При наблюдениях вдоль оптической оси оказалось, что зависимость от θ отсутствует, но поглощение при $E_1 \parallel E_2$ в $1,6 \pm 0,2$ раза больше, чем при $E_1 \perp E_2$. При наблюдении перпендикулярно оптической оси наблюдается отчетливая угловая зависимость, существенно различная для $E_1 \parallel E_2$ и $E_1 \perp E_2$ (рис. 2).

В [6] дана теория угловой зависимости двухфотонного поглощения для межзонных или экситонных переходов в кристаллах, показывающая, что вид угловой зависимости определяется симметрией состояний, между которыми происходит двухфотонный переход. В наших работах [1, 2] применение этого метода к молекулярным кристаллам позволило однозначно определить симметрию конечного состояния при двухфотонном поглощении.

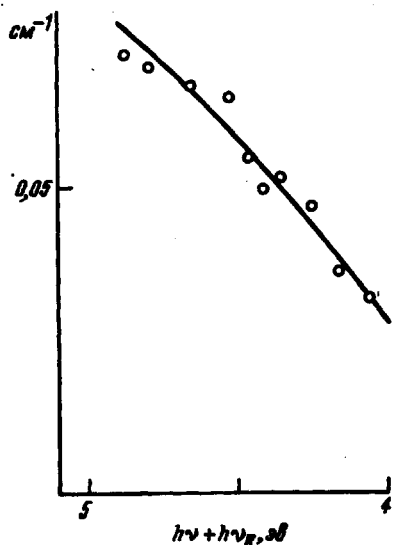


Рис. 1. Спектр двухфотонного поглощения ZnS

В кристалле ZnS отсутствует центр инверсии и можно ожидать, что двухфотонные переходы происходят в те же состояния, которые известны из однофотонного спектра поглощения. Спектры гексагонального и кубического ZnS очень похожи [7, 8], так как расщепление в гексагональном поле мало. Поэтому можно предполагать, что, несмотря на гексагональную структуру исследованного кристалла, наблюдаемая симметрия переходов в условиях комнатной температуры и широких полос будет соответствовать кубической группе. Исследованная область спектра лежит между максимумами обычного поглощения 3,8 и 5,8 эВ. Первый максимум соответствует переходу $\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma_1$, второй — первоначально приписывался переходу $\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma_{15}$, но, в связи с теоретическими расчетами [9], в [10] отмечается, что его интерпретация должна быть пересмотрена.

В [6] приведены угловые зависимости для представлений кубической группы в функции косинусов углов E_1 и E_2 с осями кубической системы координат. Для сравнения с экспериментом необходимо произвести преобразование координат, приняв во внимание, что оптическая ось в гексагональном кристалле соответствует направлению $[111]$ в кубической структуре [7], а плоскость $(11\bar{2}0)$ соответствует плоскости,

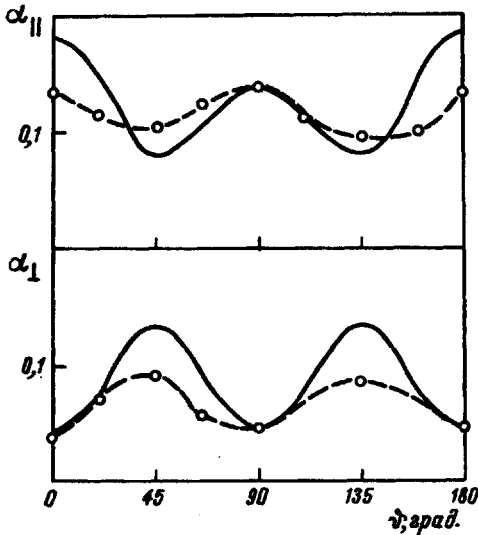


Рис. 2. Угловые зависимости двухфотонного поглощения при наблюдении перпендикулярно оптической оси. Сплошные кривые — расчетные.

перпендикулярной (110) и проходящей через направление $[111]$. Получающиеся при этом угловые зависимости в функции косинусов углов n , l вектора E_1 с осями гексагональной системы координат приведены в таблице для двух частных случаев $E_1 \parallel E_2$ и $E_1 \perp E_2$ (в скобках указаны представления в обозначениях, применяемых в [6]). При наблюдении перпендикулярно оси $n = \cos\theta$ и $l = \sin\theta$, где θ — угол поворота кристалла, отсчитанный от направления оси.

	Вдоль оси		Перпендикулярно оси	
	$E_1 \parallel E_2$	$E_1 \perp E_2$	$E_1 \parallel E_2$	$E_1 \perp E_2$
$\Gamma_1(A_1)$	1	0	1	0
$\Gamma_{12}(E)$	1/4	1/4	$1/4l^4 + 2l^2n^2$	$1/2(l^2+n^4) - 3/4l^2n^2$
$\Gamma_{15}(T_2)$	1	2/3	$1 + 1/3n^4 - 2l^2n^2$	$1 - 2/3(l^2+n^4) + 11/9l^2n^2$
$\Gamma_{25}(T_1)$	0	1	0	1

Угловая зависимость для перехода $\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma_1$, должна определяться представлением Γ_{15} (так как Γ_1 — полносимметрично), а для $\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma_{15}$ прямым произведением $\Gamma_{15} \times \Gamma_{15}$, включающим все четыре представления, указанные в таблице. Наши экспериментальные данные удовлетворительно согласуются с теоретической угловой зависимостью для $\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma_1$. Действительно, для наблюдения вдоль оси отношение $a_{||}/a_{\perp}$ должно быть $3/2$, что в пределах ошибок согласуется с экспериментальным значением $a_{||}/a_{\perp} = 1,6 \pm 0,2$. Расчетные угловые зависимости перехода $\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma_1$ для наблюдения поперек оси изображены на рис. 2 и, как видно, также качественно соответствуют экспериментальным. Более слабая модуляция экспериментальных кривых по сравнению с расчетными возможно объясняется недостаточной коллимацией светового пучка второго источника ($\pm 5^\circ$) и неточностью ориентировки кристалла, хотя нельзя полностью исключить влияние небольшого вклада других переходов.

Авторы благодарят Л.А.Сысоева за предоставление кристаллов сульфида цинка.

Физический институт
им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступило в редакцию
14 сентября 1968 г.

Литература

- [1] М.Д.Галанин, З.А.Чижикова. Оптика и спектроскопия, 25, 113, 1968.
- [2] М.Д.Галанин, З.А.Чижикова. Изв. АН СССР, Сер. физ., 32, 1310, 1968.
- [3] Л.А.Сысоев, Н.И.Крайнюков. ФТТ, 4, 807, 1962.
- [4] В.Г.Зубов, Л.А.Сысоев, М.М.Фирсова. Кристаллография, 12, 84, 1967.
- [5] E. Panizza. Appl. Phys. Lett., 10, 265, 1967.
- [6] M. Inoue, Y. Toyozawa, J. Phys. Soc. Japan, 20, 363, 1965.
- [7] J. L. Birman. Phys. Rev., 115, 1493, 1959.
- [8] M. Cardona, G. Harbeke. Phys. Rev., 137, A1467, 1965.
- [9] M. L. Cohen, T. K. Bergstresser. Phys. Rev., 141, 789, 1966.
- [10] G. Harbeke. Phys. stat. sol., 27, 9, 1968.