

НОВОЕ ПРОЯВЛЕНИЕ ПОЛЯРИТОННОГО РЕЗОНАНСА ФЕРМИ ПРИ КОМБИНАЦИОННОМ РАССЕЯНИИ СВЕТА В КРИСТАЛЛЕ LiJO_3

*К. Д. Кнейпп, Г. Э. Понат, В. Л. Стрижевский,
Ю. Н. Яшкир*

Обнаружены и исследованы новые проявления резонанса Ферми в спектре спонтанного комбинационного рассеяния света на поляритонах в кристалле LiJO_3 . Они возникают в области пересечения верхней поляритонной ветви с ветвями трех близко расположенных "слабых" полярных колебаний и заключаются, в частности, в появлении трехкратного расщепления дисперсионной кривой рассеивающих поляритонов.

Проявление поляритонного резонанса Ферми в спектрах спонтанного комбинационного рассеяния (СКР) света было впервые обнаружено в кристалле $\text{K}_3\text{Cu}(\text{CN})_4$ [1] и затем в кристалле $\alpha\text{-HJO}_3$ [2]. Нами зафиксирован поляритонный резонанс Ферми, причем трехкратный, в спектре СКР на верхней поляритонной ветви кристалла LiJO_3 и изучена его эволюция с изменением геометрии рассеяния.

Рассеяние возбуждалось линией $\lambda_e = 4882 \text{ \AA}$ аргонового лазера мощностью 200 мвт. Монокристалл LiJO_3 толщиной 6 мм был вырезан таким образом, что его оптическая ось составляла угол $23 \pm 1,5^\circ$ с нормалью к противоположным граням. Необыкновенная волна накачки распространялась в плоскости xz под углом α_e к оси z . Регистрация спектров СКР производилась на основе известной фотографической

методики [2] с одновременной разверткой по частоте ω_s и углу рассеяния θ . Входная щель спектрометра была параллельна оси y . Ее спектральная ширина составляла 15 см^{-1} , время экспозиции — около 45 мин. Оси x, y, z совпадают с кристаллографическими осями, выбранными в соответствии с [3], в частности, ось z — оптическая ось кристалла. В целях уменьшения засветки фотопластинки излучением аргоновой плазмы направление на щель составляло с волновым вектором накачки k_ℓ фиксированный угол $\theta_0 = 0,45^\circ$, так что регистрировалось рассеянное излучение с $\theta \geq 0,45^\circ$. Измерения производились при разных углах α_ℓ между k_ℓ и осью z , определенных с точностью около 2° .

На рис. 1, а — ж приведена характерная серия спектрограмм. Внешний "эллипс" отвечает обыкновенной поляритонной волне, внутренний (менее яркий) — необыкновенной. Последний виден лишь на части спектрограмм; при $\theta = \theta_0$ рассеяние на необыкновенных поляритонах запрещено правилами отбора; с ростом θ оно появляется, но остается слабым. Убывание интенсивности в нижней части эллипсов в окрестности поляритонной частоты $\omega_p = \omega_\ell - \omega_s = 1000 \text{ см}^{-1}$ обусловлено взаимной компенсацией чисто электронного и электронно-ионного вкладов в квадратичную нелинейную поляризуемость χ (ср. с [4, 5]).

Видно наличие трех резонансов (отмеченных на рис. 1 — 3 стрелками) со слабыми полярными колебаниями на частотах $\omega_1 = 1490 \text{ см}^{-1}$, $\omega_2 = 1550 \text{ см}^{-1}$ и $\omega_3 = 1610 \text{ см}^{-1}$ (определенных с точностью около 20 см^{-1}). Колебания $\omega_{1,2,3}$ могут быть предположительно интерпретированы как колебания второго порядка, соответствующие группе основных колебаний LiIJO_3 [6] $\nu(E_2) = 765 \text{ см}^{-1}$, $\nu(E_1) = 769 \text{ см}^{-1}$ и $\nu(A) = 795 \text{ см}^{-1}$. Более точная интерпретация затруднена, поскольку закономерности образования энергетического спектра, отвечающего колебаниям второго порядка в кристаллах типа LiIJO_3 , в настоящее время изучены недостаточно.

К сожалению, в рассматриваемую область частот попадает линия 5286 \AA аргоновой плазмы, затрудняющая наблюдение. Все линии вне области резонанса, фигурирующие помимо эллипса на спектрограммах, также принадлежат аргоновой плазме. На рис. 1, е приведена одна из спектрограмм, полученная при возбуждении линией 4965 \AA , более слабой, чем линия 4882 \AA . Здесь в области резонанса паразитная линия отсутствует, однако снижение интенсивности рассеяния влечет за собой ухудшение качества снимков.

Картина "эллипсов" существенно изменяется с α_ℓ . В частности при уменьшении α_ℓ верхняя часть "эллипса" стягивается в пятно и затем исчезает. Отметим также, что наиболее ярко резонанс Ферми выражен при тех α_ℓ , когда размеры эллипса соизмеримы с размерами области резонанса. Примененный здесь метод выявления резонансов поляритонов со слабыми полярными колебаниями, основанный на подборе подходящей области изменения α_ℓ с использованием необыкновенной волны накачки, представляется достаточно эффективным. На рис. 1, ж приведена спектрограмма, полученная при $\alpha_\ell = 30^\circ$ (здесь спектральная ширина щели составляла 4 см^{-1}), на которой резонансы практически не видны. Не удалось зафиксировать резонансов также Винтеру [7], использовавшему геометрию рассеяния с $\alpha_\ell = 90^\circ$.

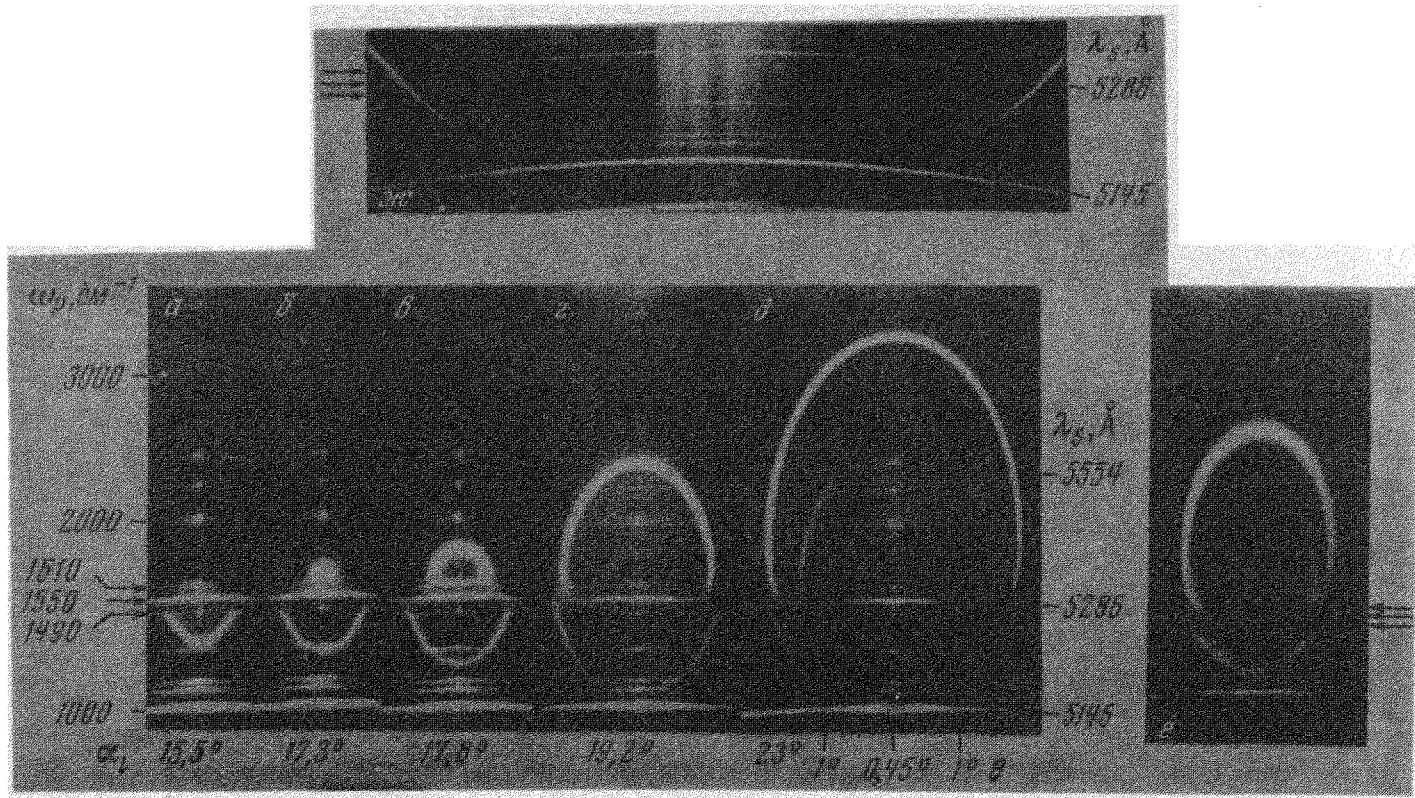


Рис. 1

Используя законы сохранения энергии-импульса, мы рассчитали зависимость $\omega_p(\theta)$ для внешнего эллипса. Вклад слабых колебаний в диэлектрическую проницаемость кристалла аппроксимировался выражениями такого же вида, что и для сильных колебаний [4, 8] с учетом того,

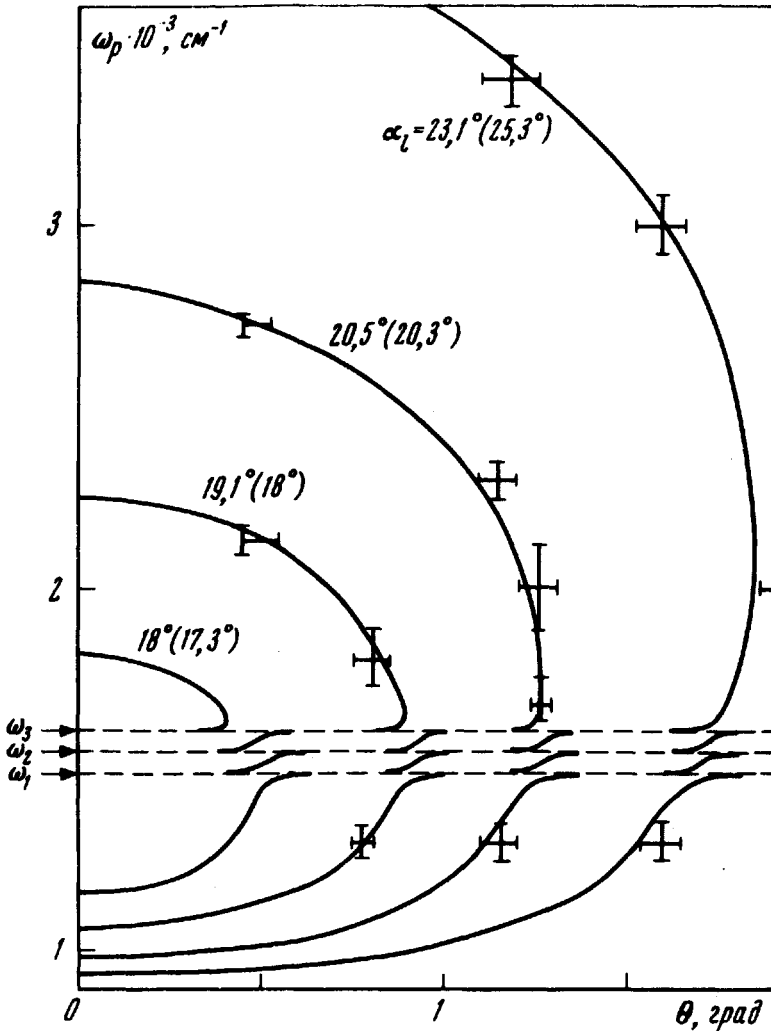


Рис. 2

что линии, отвечающие слабым колебаниям, являются достаточно резкими; впрочем основные закономерности спектра вряд ли очень чувствительны к явному виду аппроксимации. При этом силы осцилляторов s_f слабых колебаний $\omega_{1,2,3}$ подбирались так, чтобы согласовать прилегающие к резонансам участки расчетной и экспериментальной кривых $\omega_p(\theta)$; оказалось, что для всех трех колебаний можно приближенно положить $s_f = 10^{-4}$. Значения остальных параметров заимствованы из [6, 9]. Результаты расчетов представлены кривыми на рис. 2. Экспериментальные данные отражены с учетом их погрешности отдельными точками, найденными по спектрограммам. Указаны также расчетные и экспериментальные (в скобках) значения α_f . Как видно, согласие теории и эксперимента удовлетворительное.

Полагая $\alpha\rho = 18,3^\circ$ и пользуясь формулами, полученными в [8, 10], мы провели иллюстративный расчет спектра коэффициента усиления g , определяющего интенсивность рассеяния [11]. При этом необходимые параметры "слабых" колебаний выбирались таким образом, чтобы их вклад в X составлял 10^{-3} вклада основного колебания 769 см^{-1} , а полу-

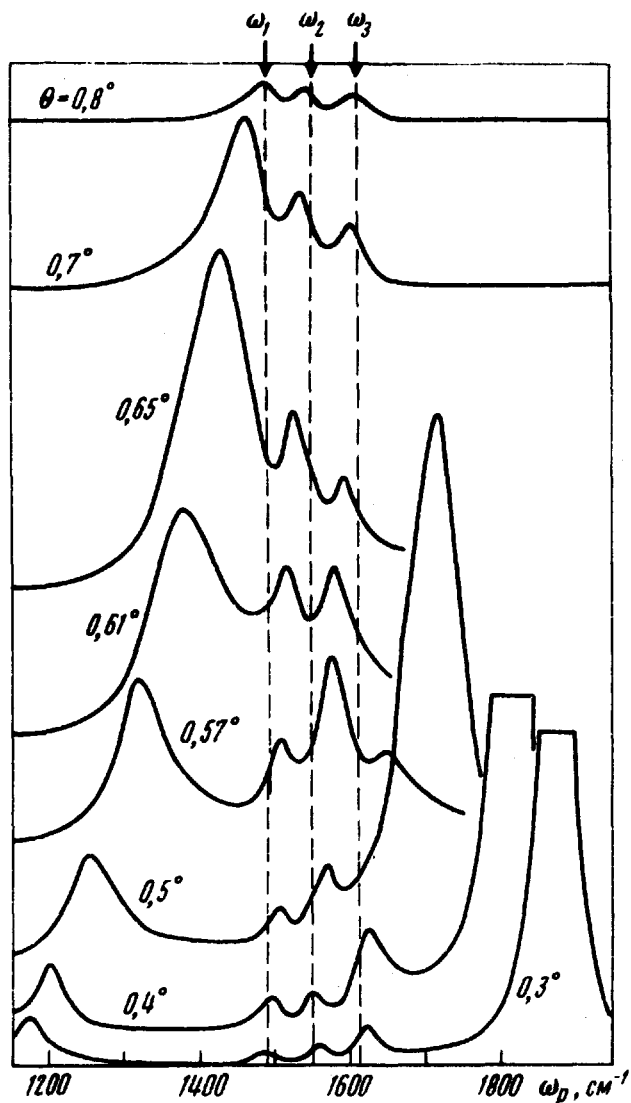


Рис. 3

ширины их собственных линий СКР полагались равными 30 см^{-1} . Результаты расчетов приведены на рис. 3, где показаны характер и эволюция спектра $g(\omega_\rho)$ с изменением θ . Эти результаты находятся в качественном соответствии с экспериментальными данными.

Описанные закономерности представляют собой новые проявления поляритонного резонанса Ферми.

Киевский
государственный университет
им. Т.Г.Шевченко

Поступила в редакцию
24 апреля 1973 г.
После переработки
7 июня 1973 г.

Литература

- [1] R.Claus. Phys. Lett., 31A, 299, 1970; R.Claus, H.W.Schrötter. Opt. commun. 2, 105, 1970.
 - [2] Д.Н. Клышко, В.Ф. Куцов, А.Н. Пенин, Б.Ф. Полковников. ЖЭТФ, 62, 1846, 1972.
 - [3] Дж. Най. Физические свойства кристаллов. М., изд. Мир, 1967.
 - [4] V.V.Obukhovskii, V.L.Strizhevskii, H.Ponath. Phys. status solidi. 41, 837, 847, 1970.
 - [5] Д.Н. Клышко, А.Н. Пенин, Б.Ф. Полковников. Письма в ЖЭТФ, 11, 11, 1970.
 - [6] W.Otaguro, E.Wiener—Avnear, C.A.Arguello, S.P.S.Porto. Phys. Rev., B4, 4542, 1971.
 - [7] F.X. Winter. Phys. Lett., 40A, 425, 1972.
 - [8] В.Л. Стрижевский, Г.Э. Понат, Ю.Н. Яшкир. Оптика и спектроскопия, 31, 388, 1971; "Нелинейные процессы в оптике", вып. 2, стр. 226, Новосибирск, 1972.
 - [9] G.Nath, S.Haussühl. Appl. Phys. Lett., 14, 154, 1969.
 - [10] В.Л. Стрижевский. ЖЭТФ, 62, 1446, 1972.
 - [11] V.L. Strizhevskii, V.V.Obukhovskii. Phys. Stat. Sol., 53, 603, 1972.
-