

О ШИРИНЕ ПИКОВ ДВУХФОНОННОГО РЕЗОНАНСНОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ В КРИСТАЛЛАХ

А. А. Клочихин, Б. С. Разбирин, Г. В. Михайлов

Получено смещение и уширение линий двухфононного резонансного рассеяния света в кристаллах CdS при возбуждении светом разной длины волны.

Рассмотрена теория резонансного двухфононного рассеяния и показано, что эти эффекты отражают принципиальную особенность резонансного рассеяния.

Интересной особенностью резонансного комбинационного рассеяния в кристаллах является необычная узость двухфононных линий [1]. Их ширина оказывается близкой к ширине однофононного пика. Это явление на первый взгляд кажется малопонятным, так как в процессе двухфононного рассеяния, в противоположность однофононному, закон сохранения импульса разрешает участие фононов с любыми возможными значениями импульсов, и ширина двухфононного спектра, казалось бы, должна быть равна удвоенной ширине фононной ветви. На рис. 1, а представлен полученный нами спектр резонансного рассеяния на продольных оптических (LO) фононах кристалла CdS при возбуждении светом $\lambda = 4880 \text{ \AA}$. Как видно из рисунка, линия $2LO$ имеет полуширину $\sim 7 \text{ см}^{-1}$. Эта ширина в значительной мере обусловлена анизотропией фононной ветви [1]. С учетом анизотропии "истинное" значение полуширины линии $2LO$ составляет $\sim 4 \text{ см}^{-1}$, что близко к значению полуширины пика $1LO$ ($3,6 \text{ см}^{-1}$) и значительно меньше удвоенной ширины оптической ветви в CdS (18 см^{-1}) [2]. Примечательно также, что в двухфононном рассеянии проявляются только фононы с малыми волновыми векторами, так что частота двухфононного максимума равна удвоенной частоте однофононного пи-

ка. Этот результат не объясняется полуфеноменологической теорией Борна [4] и существенно отличается от известных экспериментальных данных по двухфононным спектрам рассеяния в щелочно-галогидных кристаллах [5, 6] вдали от резонанса.

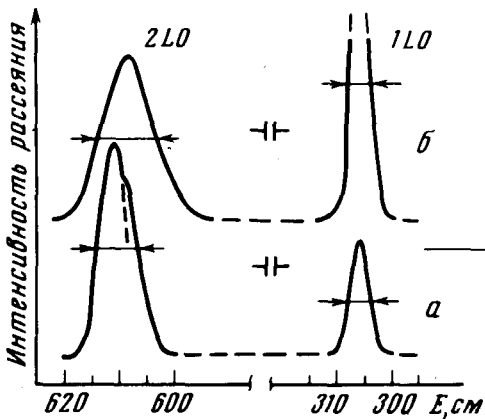


Рис. 1. Спектр резонансного комбинационного рассеяния в кристалле CdS при 4,2°K при возбуждении $\lambda = 4880 \text{ \AA}$ (а) и $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ (б). Для исключения эффектов взаимодействия с плазменными колебаниями [3] в наших экспериментах исследовались только нелегированные изолирующие кристаллы

В настоящей работе на примере продольных оптических фононов мы даем объяснение наблюдающимся особенностям резонансного двухфононного рассеяния. Будет показано, что эти особенности являются принципиальным свойством резонансного рассеяния в кристаллах.

Ранее было установлено [7, 8], что для объяснения экспериментов по однофононному рассеянию на LO-фононах в области резонанса важно учитывать внутризонное взаимодействие LO-фононов с электронами. Это взаимодействие приводит к усилению резонанса в зависимости однофононного рассеяния по сравнению с учетом только междузонного взаимодействия [9]. В случае двухфононного рассеяния внутризонное взаимодействие с одной стороны также приводит к усилению резонанса в зависимости сечения рассеяния от частоты падающего света и, с другой стороны, к резкой зависимости амплитуды рассеяния от величины волновых векторов рождающихся фононов. Рассмотрим подробнее случай резонансного двухфононного рассеяния.

Наибольший вклад в рассеяние дают резонансные слагаемые амплитуды ($P^{\alpha\beta}$). Они имеют следующую зависимость от частот падающего и рассеянного света, а также от частоты и импульса рождающихся фононов.

$$P^{\alpha\beta} = \frac{2\pi e^4 \Omega_q^e}{\hbar^2 v_o q^2} \left(\frac{\epsilon_o - \epsilon_\infty}{\epsilon_o \epsilon_\infty} \right) \int d^3 p \left\{ \frac{1}{\omega - \Omega_{pp}^{cv}} \left[\frac{1}{\omega - \Omega_{pp}^{cv} - \Omega_q^l + \Omega_{pp-q}^{cc}} + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{1}{\omega - \Omega_{pp}^{cv} - \Omega_q^l + \Omega_{pp-q}^{vv}} \left[\frac{v_{cv}^\alpha(p) v_{vc}^\beta(p+q)}{\omega - \Omega_{pp}^{cv} - 2\Omega_q^l + \Omega_{pp-q}^{cc} + \Omega_{pp-q}^{vv}} - \frac{v_{cv}^\alpha(p) v_{vc}^\beta(p)}{\omega - \Omega_{pp}^{cv} - 2\Omega_q^l} \right] \right\}. \quad (1)$$

Поскольку возникающие в результате рассеяния света два фонона имеют практически равные по величине и противоположные по направлению импульсы, здесь выписана лишь половина полного выражения. Вторая

половина получается из (1) заменой q на $-q$. При записи использованы обозначения $\Omega_{pp'}^{c\nu} = (\epsilon_{cp} - \epsilon_{vp})/\hbar$, где ϵ_{cp} , ϵ_{vp} — энергии трона в зонах c и v , $v_{cv}^{\alpha}(\rho)$ — матричный элемент оператора скорости электрона; Ω_q^{ℓ} — частота продольного оптического фонона с волновым вектором q , ϵ_0 , ϵ_{∞} — диэлектрические проницаемости кристалла, ω , $\omega' = \omega - 2\Omega_q^{\ell}$ — частоты падающего и рассеянного света, v_0 — объем элементарной ячейки. Проанализируем выражение для амплитуды рассеяния в предельных случаях.

В пределе $q \rightarrow 0$ в приближении эффективной массы (1) переходит в

$$P_{\alpha\beta} = \frac{4\pi^3 e^4 \Omega_0^{\ell}}{\hbar^2 v_0 q^2} \left| v_{cv}^{\alpha}(\rho) \right|^2 \delta_{\alpha\beta} \left(\frac{\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}}{\epsilon_0 \epsilon_{\infty}} \right) \left(\frac{2m}{\hbar} \right)^4 \left(\frac{\hbar q^2}{2m} \right) \frac{\delta + \delta' + 2\delta''}{\delta''(\delta + \delta')(\delta' + \delta'')^2(\delta + \delta'')^2}. \quad (2)$$

В другом пределе $q \gg \sqrt{2m(\epsilon_g - \omega')/\hbar}$ из (1) получаем:

$$P_{\alpha\beta} \sim \frac{4\pi^3 e^4 \Omega_0^{\ell}}{\hbar^2 v_0 q^2} \left| v_{cv}^{\alpha}(\rho) \right|^2 \delta_{\alpha\beta} \left(\frac{\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}}{\epsilon_0 \epsilon_{\infty}} \right) \left(\frac{2m}{\hbar} \right)^4 \left(\frac{\hbar q^2}{2m} \right) \frac{(2m)^2}{(\hbar q^2)^2 (\delta + \delta'')}. \quad (3)$$

В формулах (2), (3) m — приведенная эффективная масса электрона и дырки,

$$\delta = \sqrt{\frac{2m(\epsilon_g^{c\nu} - \omega)}{\hbar}}, \quad \delta' = \sqrt{\frac{2m(\epsilon_g^{c\nu} - \omega + \Omega_0^{\ell})}{\hbar}}, \quad \delta'' = \sqrt{\frac{2m(\epsilon_g^{c\nu} - \omega')}{\hbar}},$$

$\epsilon_g^{c\nu}$ — ширина запрещенной зоны. Выражения (2) и (3) получены в предположении, что экстремумы зон расположены в точке $\rho = 0$.

Сравнивая (2) и (3) мы видим, что в области малых значений $q \rightarrow 0$ амплитуда не зависит от q , в то время как при $q \gg \delta''$ она обратно пропорциональна q^4 . Такая зависимость амплитуды от q приводит к тому, что в рассеянии будут участвовать в основном фононы с импульсами порядка δ'' . При резонансном рассеянии, т. е. при малых значениях $(\epsilon_g^{c\nu} - \omega')$, в процессе будут принимать участие только фононы с малыми волновыми векторами. Это означает, что в спектре резонансного двухфононного рассеяния должен наблюдаться узкий пик, а энергетическое положение его максимума практически должно определяться удвоенной частотой оптической ветви при $q \sim 0$, что и наблюдается на опыте. На рис. 2 схематически изображена зависимость сечения от частоты рассеянного света, вытекающая из (2) и (3) в предположении простейшего закона дисперсии для фононов $\Omega_q^{\ell} = \Omega_0^{\ell} - \beta(\alpha q)^2$. По мере удаления частоты ω от $\epsilon_g^{c\nu}$ должно происходить не только общее ослабление рассеяния, но также и расширение области значений волновых векторов фононов, принимающих участие в рассеянии, в результате чего должно наблюдаться смещение максимума рассеяния (в зависимости от дисперсии β) и его уширение. Действительно, как видно из сравнения кривых a и b на рис. 1, при удалении возбуждающей частоты от резонанса ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$, кривая b) наблюдается заметное уширение двухфононного пика и некоторое смещение (на $3 - 4 \text{ см}^{-1}$) максимума в сторону меньших энергий фононов по сравнению с более резонансным возбуждением ($\lambda = 4880 \text{ \AA}$, кривая a).

Подобные закономерности при удлинении частоты возбуждающего света от резонанса наблюдались также на других кристаллах (ZnO, ZnSe) [1] и хорошо могут быть объяснены предложенной теорией.

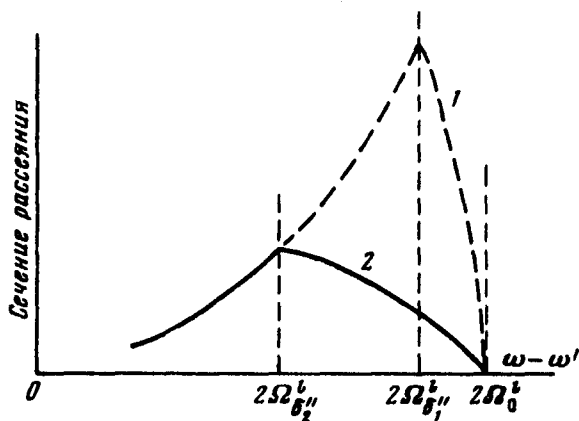


Рис. 2. Схематическая зависимость сечения рассеяния от частоты рассеянного света ($\omega - \omega'$), соответствующая формулам (2) и (3) для двух различных значений $(\epsilon_g^c - \omega)$. Кривая 1 соответствует более близкому к резонансному случаю, чем кривая 2; δ_1'' и δ_2'' — значения волновых векторов фононов, которые дают основной вклад в рассеяние в этих двух случаях. Остальные обозначения см. в тексте

До сих пор мы не принимали во внимание экситонную структуру края поглощения. Ее учет не меняет качественно результатов. Более того формулы (2) и (3) остаются справедливыми и при наличии экситона, хотя область их применения оказывается ограниченной неравенством $\hbar(\epsilon_g - \omega) \gg |I_{ex}|$, где I_{ex} — энергия ионизации экситона. В области частот, достаточно близких к экситонным линиям поглощения, это неравенство не выполняется. При этом изменяется зависимость амплитуды от частот падающего и рассеянного света и еще более сужается область разрешенных значений импульсов фононов, которая в этом случае

определяется соотношением $q_{разр} \approx \sqrt{\frac{2m(\hbar\epsilon_g^c - \hbar\omega' - I_{ex})}{\hbar^2}}$. Подчерк-

нем, что зависимость амплитуды от волнового вектора фононов при учете экситона остается такой же, как и без его учета, а именно: амплитуда не зависит от q при $q \rightarrow 0$ и обратно пропорциональна q^4 при $q \gg q_{разр}$. В заключение отметим, что подобное явление следует ожидать для любых комбинаций оптических фононов, разрешенных в двухфононном спектре, а также и для многофононных процессов.

Авторы глубоко признательны В.К.Негодуйко за помощь в проведении некоторых экспериментов.

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

Поступила в редакцию
14 февраля 1973 г.

Литература

- [1] T.C.Damen, R.C.C.Leite, J.Shah. Proc X. Int. Conf. on Phys. of Semicond. Cambridge, Massachusetts, 1970, p. 735.
- [2] M.Balkanski, I.M.Besson, R.Le Toullec Proc. VII. Int. Conf. on Phys of Semicond., Paris, 1964, p. 1091.
- [3] I.F.Scott, T.C.Damen, R.C.C.Leite, J.Shah. Phys. Rev., B1, 4330, 1970.

- [4] М.Борн, К. Хуан. Динамическая теория кристаллических решеток. М., ИИЛ, 1958.
- [4] А.И.Стеханов, А.П.Корольков, М.Б.Элиашберг. ФТТ, 4, 945, 1962.
- [5] R.S.Krishnan, N.Krishnamurthy. Ind. J. Pure and Appl. Phys., I, 239, 1963.
- [7] R.M.Martin. Phys. Rev., B4, 3676, 1971.
- [8] А.А.Клочихин, В.С.Разбирин, Г.В.Михайлов. Труды III Всесоюзного Совещания "Проблемы физ. соед." А_{II} В_{VI}, Вильнюс, 1972, стр. 180.
- [9] A.K.Ganguly, I.L.Birman. Phys. Rev., 162, 806, 1967.
-