

УДК 535.375.54

© 1990

## ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ В КРИСТАЛЛЕ CdS

К. К. Ондриаш, К. А. Прохоров

С помощью фотоэлектрической методики зарегистрировано гиперкомбинационное рассеяние (ГКР) света на поляритонах в нецентросимметричном кристалле CdS. Полученные в различных геометриях рассеяния частотно-угловые спектры ГКР позволили определить ход верхних дисперсионных ветвей для  $A_1$ - и  $E_1$ -поляритонов. При сопоставлении теоретических и экспериментальных дисперсионных зависимостей оказалось, что наилучшее их совпадение получается при использовании для расчета значений высокочастотных диэлектрических проницаемостей  $\epsilon_{\perp\infty} = \epsilon_{\parallel\infty} = 4.5 \pm 0.1$ .

Комбинационное рассеяние (КР) света под малыми углами позволяет эффективно исследовать поляритонные возбуждения кристаллической решетки. В кристалле CdS таким методом был определен ход нижней дисперсионной ветви и рассчитаны вклады электрооптического и деформационного потенциалов в тензор КР [1, 2]. Однако слабая анизотропия сульфида кадмия не позволяет наблюдать в КР верхнюю поляритонную ветвь. Метод ГКР в этом смысле имеет большие преимущества, давая возможность изучать не активные в КР фонон-поляритонные возбуждения в изотропных и слабоанизотропных средах [3, 4]. В настоящей работе представлены результаты исследования дисперсионных зависимостей CdS с помощью ГКР на поляритонах.

Измерения проводились на установке, представляющей собой одноканальный автоматизированный ГКР-спектрометр. В качестве источника возбуждающего излучения использовался квазинепрерывный лазер ЛТИ-502 с  $\lambda_1 = 1.064$  мкм, работающий в одномодовом режиме с частотой повторения  $f = 10$  кГц. Средняя мощность накачки составляла  $P_{cp} \sim 6$  Вт при длительности импульса  $\tau \sim 300$  нс. Излучение лазера фокусировалось в образец линзой с фокусным расстоянием  $F = 40$  см, что обеспечивало плотность мощности в образце порядка  $5$  МВт/см<sup>2</sup>. Свет, рассеянный под малыми углами, проходил через кольцевую диафрагму, анализатор и собирался объективом на входной щели монохроматора с фокусным расстоянием  $1$  м. Имеющийся набор кольцевых диафрагм позволял записывать спектры ГКР в диапазоне углов от  $0$  до  $10^\circ$  с шагом приблизительно  $0.5^\circ$ . Для регистрации сигнала использовалась фотоэлектрическая методика, в которой прошедший через монохроматор рассеянный свет регистрировался с помощью фотоумножителя, работающего в режиме счета фотонов. В результате стробирования счетчика фотонов синхронно с лазерными импульсами темновой шум составлял  $1-2$  импульса в секунду. С помощью персонального компьютера осуществлялись многократное сканирование по спектру, а также накопление, запись и обработка информации, поступающей с системы счета фотонов.

Монокристалл сульфида кадмия имеет структуру типа вюрцита и относится к пространственной группе симметрии  $C_{6v}^3$  [5]. В CdS существуют активные в КР- и в ИК-спектрах фононы типа  $A_1(z)$  и  $E_1(x, y)$ , поляризованные вдоль оси  $z$  и в плоскости  $xu$  соответственно, а также фонон типа  $E_2$ , активный в КР, и два неактивных в КР- и ИК-спектрах колебания типа

$B_1$  и  $B_2$ . Согласно теоретико-групповому анализу [6], в спектрах ГКР должны проявляться все перечисленные виды колебаний. Каждая из фоновых ветвей, связанных с активными в ИК-спектрах колебаниями  $A_1(z)$  и  $E_1(x, y)$ , расщепляется на продольную (LO) и поперечную (TO) компоненты. Этим поперечным компонентам соответствуют  $A_1$ - и  $E_1$ -поляритоны, которые должны наблюдаться как в спектрах КР, так и ГКР.

На рис. 1 сплошными линиями изображена теоретическая дисперсионная зависимость  $k^2(\omega) = \omega^2 \varepsilon_{\perp}(\omega) / c^2$  для  $E_1$ -поляритонов, а штриховыми — функция  $q_{HK} = q_{HK}(\omega, \vartheta)$ , задающая кривые синхронизма при различных значениях угла  $\vartheta$  между волновыми векторами возбуждающих  $k_i$  и рассеянного  $k_s$  фотонов ( $\vartheta$ , град: 1 — 0, 2 — 9, 3 — 14, 4 — 19). Указанные на рисунке значения углов пересчитаны с учетом преломления рассеянного света на границе кристалла. Условия синхронизма при ГКР определяются четырехволновым взаимодействием (вставка к рис. 1) и соответствуют геометрии рассеяния  $z(y+y, y)z$ , в которой падающий и рассеянный свет распространяется вдоль оси  $z$  и поляризован параллельно оси  $y$ .

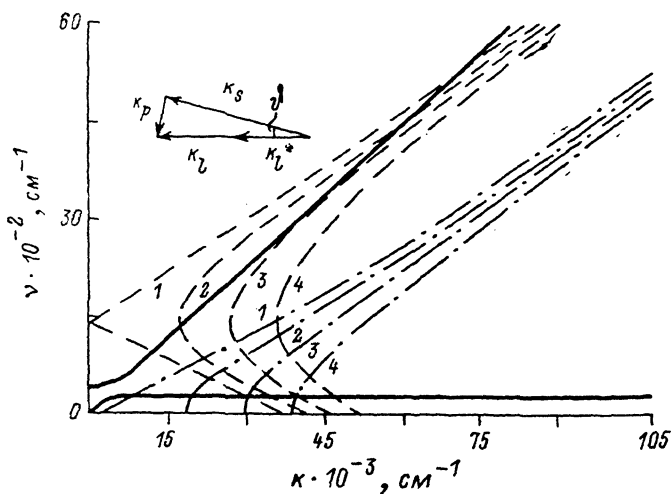


Рис. 1.

Штрихпунктирные линии — аналогичные условия синхронизма  $q_R = q_R(\omega, \vartheta)$  в случае КР для тех же значений углов  $\vartheta$  [7]. Для расчета использовались значения частот поперечных фононов  $\omega_{T0}^A = 234$  и  $\omega_{T0}^E = 243$  см<sup>-1</sup> [8], значение высокочастотной диэлектрической проницаемости было выбрано  $\varepsilon_{\perp\infty} = 4.5$  (о его определении см. ниже), а величины показателей преломления  $n_0$  и  $n_c$  в видимой области и для 1.064 мкм были взяты из работы [9]. Отсутствие пересечений верхней дисперсионной ветви с кривыми  $q_R(\omega, \vartheta)$  означает, что наблюдение КР света на поляритонах верхней ветви невозможно. В случае ГКР, как это следует из рис. 1, в CdS можно наблюдать частотно-угловые спектры рассеянного света в диапазоне частот поляритонов от 900 до 5000 см<sup>-1</sup> и в диапазоне углов рассеяния от 0 до 14°. В наших экспериментах, однако, были зарегистрированы только спектры, соответствующие нижним точкам пересечения. Это объясняется двумя причинами. Во-первых, поляритонные линии, связанные с верхними точками пересечения, сильно уширены, что легко понять из рис. 1. Это приводит к падению интенсивности регистрируемого сигнала. Во-вторых, в диапазоне длин волн рассеянного излучения в области 7500 Å и больше, соответствующем верхним точкам пересечения, значительно снижается чувствительность экспериментальной установки. Отметим, что из-за слабой анизотропии CdS для  $A_1$ -поляритонов, которые наблюдаются при рассеянии света вдоль оси  $x$  или  $y$ , ситуация аналогична рассмотренной выше для  $E_1$ -поляритонов.

Экспериментальные спектры ГРП на  $E_1$ -поляритонах верхней дисперсионной ветви, полученные в геометрии рассеяния  $z(y+y, y)z$ , для нескольких углов рассеяния  $\vartheta$  изображены на рис. 2 ( $\vartheta$ , град: 1 — 1.18, 2 — 3.24, 3 — 4.05, 4 — 5.11, 5 — 6.09, 6 — 7.07). С увеличением угла  $\vartheta$  поляритонные линии смещаются в область больших частот, а также уширяются, что связано с ростом производной  $d\omega/d\vartheta$ . Максимальный угол, при котором наблюдалось рассеяние на  $E_1$ -поляритонах, составляет  $7^\circ$ .

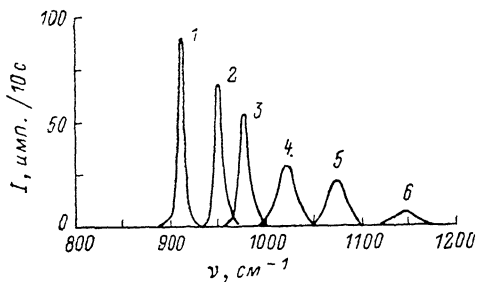


Рис. 2.

Интенсивность сигнала в максимуме поляритонной линии была приблизительно 10 имп./с при спектральной ширине щели  $\Delta\omega = 3 \text{ см}^{-1}$ . Измерения при различных уровнях мощности накачки дали одинаковые результаты, что свидетельствует об отсутствии каких-либо изменений постоянных решетки сульфида кадмия под воздействием лазерного излучения.

Спектры образцов различного происхождения также совпали в пределах ошибки измерения, связанной в первую очередь с точностью установки кольцевых диафрагм. При рассеянии вдоль оси  $z$  наблюдается также линия на частоте  $\omega_{Lb}^E = 307 \text{ см}^{-1}$ , соответствующая рассеянию на продольном  $E_1$ -фоне. При нагревании образца от комнатной температуры до  $160^\circ\text{C}$  поляритонные линии смещались в сторону больших частот приблизительно на  $60 \text{ см}^{-1}$ , что объясняется температурной зависимостью показателей преломления, влияющей на положение точек пересечения кривых  $q_{HR}(\omega, \vartheta)$  и  $k(\omega)$ , а линия с частотой  $\omega_{Lb}^E = 307 \text{ см}^{-1}$ , как этого и следует ожидать, оставалась на месте.

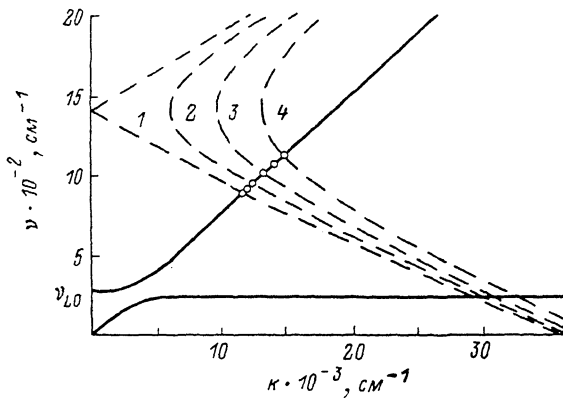


Рис. 3.

Ход верхней ветви дисперсионной зависимости  $k(\omega)$  для  $E_1$ -поляритонов представлен на рис. 3. Экспериментальные точки рассчитаны по спектрам рис. 2. Как и на рис. 1, штриховыми линиями изображены зависимости  $q_{HR}(\omega, \vartheta)$ , однако в данном случае они рассчитаны для конкретных углов рассеяния, имевших место в эксперименте ( $\vartheta$ , град: 1 — 0, 2 — 3.24, 3 — 5.11, 4 — 7.07). По экспериментальным точкам нами был восстановлен ход дисперсионной зависимости в частотном диапазоне  $900\text{--}1100 \text{ см}^{-1}$ . При теоретическом расчете дисперсионных кривых единственным неизвестным параметром была диэлектрическая проницаемость  $\epsilon_{\perp\infty}$ . Сопоставляя расчетные кривые с экспериментальными точками при различных значениях  $\epsilon_{\perp\infty}$ , мы нашли, что наилучшее их совпадение получается при использовании для расчета значения  $\epsilon_{\perp\infty} = 4.5 \pm 0.1$ . Сравни-

тельно низкая точность определения  $\varepsilon_{1\infty}$  объясняется тем, что в работе наблюдался только небольшой участок верхней поляритонной ветви (рис. 3).

Были получены также спектры ГКР на смешанных  $A_1 + E_1$ -поляритонах в геометриях  $x(y+y, z)$  и  $x(z+z, z)$ . Оказалось, что ход верхних дисперсионных ветвей в случае  $A_1$ - и  $E_1$ -поляритонов практически совпадает. Это, в частности, означает, что  $\varepsilon_{1\infty} = \varepsilon_{1\infty} = 4.5 \pm 0.1$  и объясняется малым различием параметров, определяющих дисперсию поляритонов  $A_1$ - и  $E_1$ -симметрии, т. е. частот продольных колебаний [3], сил осцилляторов и высокочастотных диэлектрических проницаемостей  $\varepsilon_{1\infty}$  и  $\varepsilon_{\parallel\infty}$ .

Таким образом, зарегистрированные нами в сульфиде кадмия спектры ГКР на поляритонах позволили определить ход верхних дисперсионных ветвей  $A_1$ - и  $E_1$ -поляритонов, а также установить значения высокочастотных диэлектрических проницаемостей  $\varepsilon_{1\infty}$  и  $\varepsilon_{\parallel\infty}$ . Отметим, что, определив все параметры дисперсионного соотношения, легко рассчитать дисперсию реальной части диэлектрической проницаемости или показатели преломления кристалла в среднем ИК-диапазоне, где поглощение самого ИК-излучения может быть очень большим. Практическая точность таких расчетов составляет около 2 %.

В заключение авторы считают своим долгом выразить искреннюю признательность Ю. Н. Поливанову за полезные обсуждения и П. П. Пашину за постоянный интерес и поддержку работы.

#### Список литературы

- [1] Shah J., Damen T. C., Scott J. F., Leite R. C. C. // Phys. Rev. B. 1971. V. 3. N 12. P. 4238—4242.
- [2] Scott J. F., Damen T. C., Shah J. // Optics Comm. 1971. V. 3. N 6. P. 384—386.
- [3] Поливанов Ю. Н., Саяхов Р. Ш. // Кр. сообщ. по физ. 1978. № 1. С. 23—27.
- [4] Denisov V. N., Mavrin B. N., Podobedov V. B. // PHYSICS REPORTS. 1987. V. 151. N 1. P. 1—92.
- [5] Физика соединений  $A_2B_6$  / Под ред. А. Н. Георгобиани, М. К. Шейнкмана. М.: Наука, 1986. 320 с.
- [6] Cyvin S. J., Rauch J. E., Decius J. C. // J. Chem. Phys. 1965. V. 43. N 11. P. 4083—4095.
- [7] Поливанов Ю. Н. // УФН. 1978. Т. 126. № 2. С. 185—232.
- [8] Arquello C. A., Rousseau D. L., Porto S. P. S. // Phys. Rev. 1969. V. 181. N 3. P. 1351—1363.
- [9] Bieniewski T. M., Czyzak S. J. // JOSA. 1963. V. 53. N 4. P. 496—497.

Институт общей физики  
АН СССР  
Москва

Поступило в Редакцию  
5 мая 1989 г.  
В окончательной редакции  
20 февраля 1990 г.