

02

Угловые зависимости интенсивности комбинационного рассеяния света на поляритах в кристалле фосфида галлия

© А.В. Иго

Ульяновский государственный университет,
432063 Ульяновск, Россия
e-mail: igoalexander@mail.ru

Поступила в редакцию 01.11.2018 г.

В окончательной редакции 22.02.2019 г.

Принята к публикации 15.03.2019 г.

Измерено комбинационное рассеяние света на фонах и поляритах в образце фосфида галлия. Для возбуждения использовался нефокусируемый пучок одномодового лазера 532 nm. Сбор рассеянного излучения производился с помощью передвижного зеркала малого диаметра, что позволило измерять спектры рассеянного света в диапазоне углов рассеяния $0.6^\circ - 8^\circ$ с угловой суммарной расходимостью 0.4° . Для разных кристаллографических направлений измерялись интенсивности поляризованных компонент комбинационного рассеянного света на продольных, поперечных фонах и поляритах в области сильной дисперсии поляритонной ветви для трех фиксированных аксиальных углов рассеяния. Компоненты рассеяния на продольных оптических фонах и поляритах имеют сильную зависимость от кристаллографического направления как и предсказывает теория, а компонента рассеяния на поперечных оптических фонах не зависела от кристаллографического направления. Обнаружено, что интенсивность рассеяния на поперечных оптических фонах коррелирует с шириной спектральной линии рассеяния на поляритоне. Предложен механизм, объясняющий эту корреляцию.

Ключевые слова: поляритон, фон, комбинационное рассеяние света, ангармонизм

DOI: 10.21883/OS.2019.08.48033.316-18

Введение

Комбинационное рассеяние света (КРС) широко применяется для исследования поляритонов в кристаллах [1]. Проведенные исследования показывают, что теория [1,2] в основном правильно описывает возникновение и существование в полярных кристаллах гибридных возбуждений, образованных квантами колебаний кристаллической решетки при взаимодействии с электромагнитным полем. Эксперимент подтвердил вид дисперсионных зависимостей поляритонов в кристаллах [1], зависимость частоты поляритона от направления в одноосном кристалле [3]. При измерении КРС на поляритах замечено, что ширина и форма спектральной линии зависят от частоты и волнового вектора поляритона. Результаты таких исследований для кристаллов GaP подробно отражены в работе [4], где рассмотрены вклады оптической и механической ангармоничности в ширину спектральной линии.

Ширина спектральной линии КРС, обычно однозначно связанная с временем жизни элементарного возбуждения, в случае рассеяния на поляритах зависит от угла рассеяния [4]. А именно, измеренная ширина спектральной линии содержит в себе часть, связанную собственно с временем жизни поляритона с определенным волновым вектором, и часть, обусловленную тем, что при фиксировании угла рассеяния (и сканирования по частоте) волновой вектор поляритона не остается фиксированным и изменяется в некотором диапазоне.

В [1,2] теоретически показано, что если в качестве искомой частоты брать центр спектральной линии (даже искаженной), то эти данные хорошо соответствуют теории дисперсии поляритонов.

Таким образом, форма и ширина спектральной линии зависят от техники и методики измерений [4], длины волны лазерного возбуждающего излучения [1,5], а их зависимость от угла рассеяния (или пересчитанные на частоту поляритона) всегда имеют особенности, вносимые методикой эксперимента. Исследования дисперсии и симметрии поляритонов в средах, важных с точки зрения практического применения, продолжаются [6].

Первой целью настоящей работы являлось измерение КРС поляритонов по методике, отличающейся от описанных в обзорах, оценка погрешности измерения по представленной методике и сопоставление полученных данных с известными зависимостями.

Вторая цель работы состояла в измерении зависимости интенсивности КРС от кристаллографического направления и поляризаций падающего и рассеянного света, что обычно называется поляризационными измерениями. Теоретически [7] интенсивность рассеянного света на фонах определяется тензором КРС и может быть рассчитана для любой конфигурации, используемой в эксперименте. Поворачивая кристаллический образец вокруг определенного выбранного направления, можно получить кривую интенсивности КРС в зависимости от угла поворота. В совершенных кристаллах теоретическая и экспериментальные кривые совпадают [8,9], но в

кристаллах с дефектами, с сильным рассеянием фононов наблюдаются характерные отличия [9]. Представляется интересным определить, как влияет на угловые зависимости интенсивности КРС на поляритонах их сильное затухание по сравнению с обычными фононами.

Эксперимент

Схема эксперимента представлена на рис. 1. Пластина GaP *1* толщиной 0.36 mm, ориентированная плоскостью (111) перпендикулярно направлению *z*, закреплена на держателе *2* с отверстием в центре. Держатель свободно поворачивается вокруг оси *z* на 360° и имеет шкалу с шагом 1° для определения угла φ . Образец освещался несфокусированным пучком одномодового лазера CPDS532M *3*, диаметр лазерного луча 0.6 mm, угловая расходимость менее 0.0012 rad, длина волны 532 nm, мощность 25 mW. Рассеянный свет собирался повернутым круглым зеркалом *4* диаметром 2 mm, расположенным на подвижном держателе, который позволяет перемещать зеркало по оси *y*. Смещение зеркала относительно центра лазерного луча измерялось по микрометрической шкале с погрешностью 0.05 nm. Расстояние от зеркала до образца $L_0 = 57$ nm. Отраженный от зеркала свет проходил через регулируемую диафрагму *5*, поляризатор *6* и собирался линзой *7* на входную щель модернизированного спектрометра ДФС-52 с ФЭУ Н6240-01 *8*. Лазерный луч поляризован в направлении *x* (перпендикулярно рисунку) или *y*, поворот осуществлялся полуволновой пластинкой *9*.

Измерения спектров КРС проводились в диапазоне 290–425 cm^{-1} с шагом 0.5 cm^{-1} и спектральной шириной щели 1 cm^{-1} . Угол рассеяния задавался держателем зеркала *4* и рассчитывался по координате смещения зеркала относительно лазерного луча y_i как $\theta_i = y_i / (L_0 n_0)$, где n_0 — показатель преломления GaP. Азимутальный

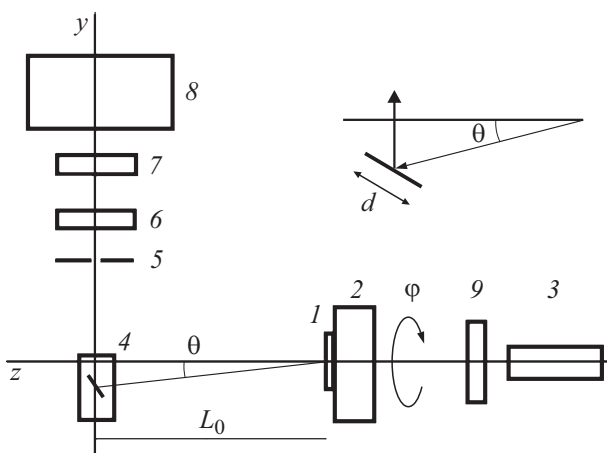


Рис. 1. Схема эксперимента для измерения угловой зависимости КРС на поляритонах: *1* — образец, *2* — держатель, *3* — лазер, *4* — зеркало размером d , *5* — диафрагма, *6* — поляризатор, *7* — линза, *8* — спектрометр, *9* — пластинка $\lambda/2$.

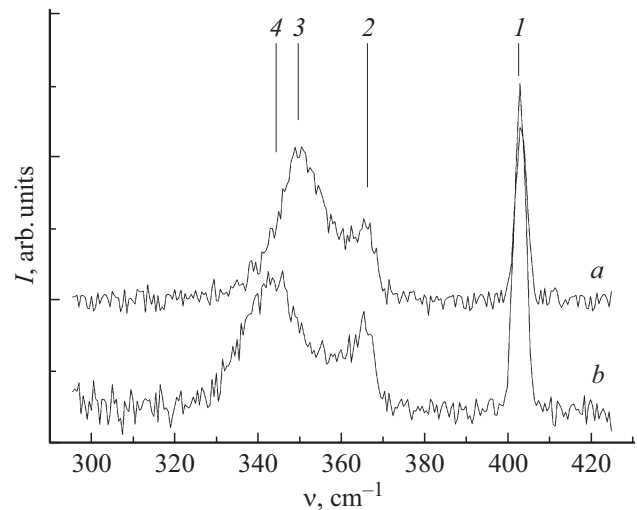


Рис. 2. Спектры КРС для двух углов рассеяния: $\theta = 1.2^\circ$ (*a*), 0.7° (*b*). Пояснения в тексте.

угол φ отсчитывался от направления оси *x*. На рис. 2 представлены спектры КРС образца при $\varphi = 270^\circ$, $\theta = 1.2^\circ$ (*a*) и 0.7° (*b*), *x*-поляризации падающего луча, рассеянный луч без поляризатора. Пики на спектрах при 403 cm^{-1} соответствуют рассеянию света на ЛО-фононах — *1*, при 465 cm^{-1} на ТО-фононах — *2*, при 350 cm^{-1} и 344 cm^{-1} на поляритонах — *3* и *4* соответственно. Положение пика поляритона зависит от угла рассеяния.

Измерены спектры для углов рассеяния в диапазоне 0.6° – 8° при $\varphi = 270^\circ$, определены положение максимума и ширина спектральной линии поляритона. График зависимости ширины спектральной линии КРС на поляритонах от частоты поляритона представлен на рис. 3, *b* в виде точек. Измеренные положения максимума спектральной линии поляритона в зависимости от угла рассеяния представлены на рис. 3, *a* в виде дисперсионной зависимости. Волновой вектор поляритона q , соответствующий измеренному углу рассеяния θ , определялся из закона сохранения импульса как описано в работе [1]:

$$q^2 = k_i^2 + k_s^2 - 2k_i k_s \cos \theta, \quad (1)$$

где k_i и k_s — волновые векторы падающего и рассеянного света. В образце величина k_i задается длиной волны лазера $\lambda_0 = 532$ nm (волновым числом $\nu_0 = 1/\lambda_0$, измеряемым спектрометром) и показателем преломления света GaP на длине волны лазера $n_0 = 3.492$ [10]:

$$k_i = 2\pi\nu_0 n_0.$$

Волновой вектор рассеянного света k_s зависит от значения показателя преломления света образца на частоте рассеянного света:

$$k_s = 2\pi\nu n.$$

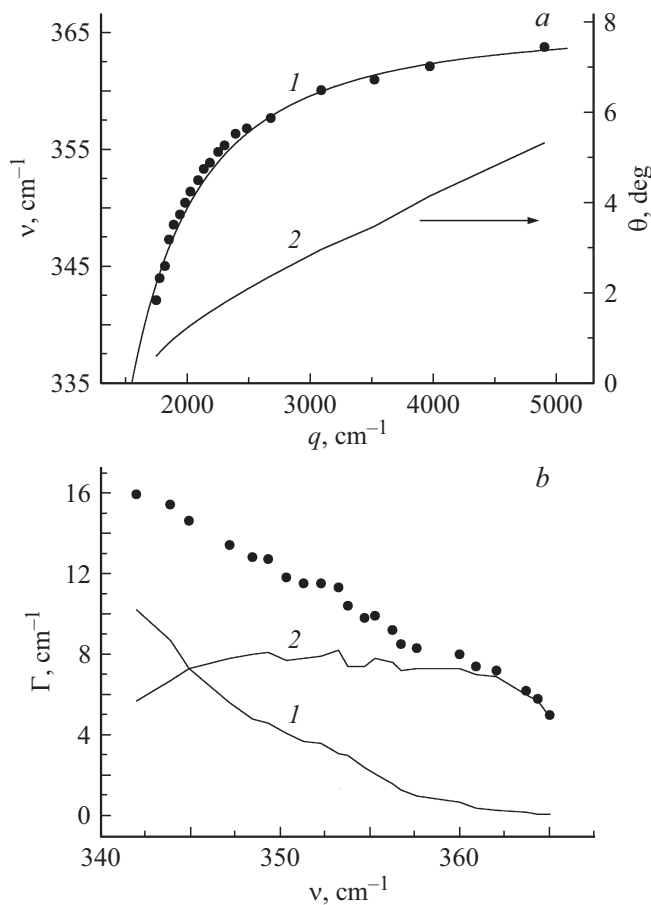


Рис. 3. Дисперсия поляритонов (а), ширина спектральной линии КРС на поляритоне (б). Пояснения в тексте.

В линейном приближении

$$n = n_0 + \frac{\partial n}{\partial \nu} \nu.$$

По данным [10] для GaP в окрестности 532 нм $\frac{\partial n}{\partial \nu} = 0.737 \cdot 10^{-4}$. Частота рассеянного света ν связана с частотой поляритона и частотой падающего света законом сохранения энергии:

$$\nu = \nu_0 - \nu(q),$$

где $\nu(q)$ частота поляритона с волновым вектором q . Теоретическая дисперсионная зависимость поляритонов [11] следующая:

$$\nu^2(q) = \frac{1}{2} \left(\nu_{LO}^2 + \frac{q^2}{\epsilon_\infty} \right) - \frac{1}{2} \left(\left(\nu_{LO}^2 + \frac{q^2}{\epsilon_\infty} \right)^2 - 4 \frac{q^2}{\epsilon_\infty} \nu_{TO}^2 \right)^{1/2}. \quad (2)$$

Совместное решение уравнений (1) и (2) позволило определить значения q для набора углов рассеяния θ ,

заданных в эксперименте. Результаты расчета приведены на рис. 3, а, кривая 2. В расчетах использовались значения частот из эксперимента $\nu_{LO} = 403 \text{ cm}^{-1}$, $\nu_{TO} = 465 \text{ cm}^{-1}$ и $\epsilon_\infty = 9.09$ [11].

Были измерены интенсивности спектральных линий КРС в зависимости от азимутального угла φ для значений угла рассеяния $\theta = 0.9^\circ, 1.4^\circ, 2.0^\circ$. На рис. 4 точками представлены интенсивности линий рассеяния на LO-фононах (а), поляритах (б) и TO-фононах (с) для угла рассеяния $\theta = 0.9^\circ$, угол φ менялся в интервале $0^\circ - 360^\circ$ с шагом 10° . На графиках интенсивности представлены в нормированном виде, в эксперименте интенсивность линии LO-фонона (в максимуме) в 1.9 раза больше интенсивности линии поляритона (в максимуме). Интенсивность рассеяния на TO-фононе указана в долях от максимального значения интенсивности линии поляритона. Интенсивность линии считалась как площадь под спектральной кривой, расчет проводился с помощью программы Origin 8.

Угловая зависимость интенсивности КРС

В полярных кубических кристаллах интенсивность рассеянного света на LO- и TO-фононах в выбранном направлении может быть рассчитана теоретически [7], если известен тензор КРС кристалла \hat{R} и поляризация падающего e_i и рассеянного e_s света:

$$I = A [\sum_{\rho, \sigma, \tau} e_i^\rho R_{\rho, \sigma}^\tau e_s^\sigma \xi^\tau]^2. \quad (3)$$

Единичный вектор поляризации фонона ξ определяется углом рассеяния θ , значениями k_i и k_s и q из (1) и имеет продольную ξ_{LO} и две поперечные компоненты ξ_{TO1}, ξ_{TO2} . В лабораторной системе координат (рис.1) компоненты имеют вид

$$\xi_{LO} = \left(0, -\frac{k_s \sin \theta}{q}, \frac{k_i - k_s \cos \theta}{q} \right), \quad \xi_{TO1} = (1, 0, 0),$$

$$\xi_{TO2} = \left(0, -\frac{k_i - k_s \cos \theta}{q}, -\frac{k_s \sin \theta}{q} \right).$$

Вид тензора \hat{R} для GaP с симметрией кристаллической решетки T_d имеет одну независимую компоненту d и в главных осях имеет вид [7]

$$\hat{R} = \left(\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & d \\ 0 & d & 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & 0 & d \\ 0 & 0 & 0 \\ d & 0 & 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \right).$$

Преобразование \hat{R} в лабораторную систему координат, в которой направление [111] кристалла соответствует оси z , а направление $[1\bar{1}0]$ — оси y , проводится матрицей поворота U_{111} , поворот вокруг оси z на произвольный угол φ выполняется матрицей U_φ , а суммарное

последовательное вращение — матрицей U :

$$U = U_\varphi U_{111}, \quad U_{111} = \begin{pmatrix} \frac{-1}{\sqrt{6}} & \frac{-1}{\sqrt{6}} & \frac{2}{\sqrt{6}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{-1}{\sqrt{2}} & 0 \\ \frac{1}{\sqrt{3}} & \frac{1}{\sqrt{3}} & \frac{1}{\sqrt{3}} \end{pmatrix},$$

$$U_\varphi = \begin{pmatrix} \cos \varphi & -\sin \varphi & 0 \\ \sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Из положения повернутого на произвольный угол кристалла преобразуем компоненты вектора поляризации фонона в главные оси кристалла и найдем значения тензора КРС для рассеяния на продольных и поперечных фононах в главных осях:

$$R_{LO} = \hat{R}U^T \xi_{LO}, \quad R_{TO1} = \hat{R}U^T \xi_{TO1},$$

$$R_{TO2} = \hat{R}U^T \xi_{TO2},$$

где U^T — транспонированная матрица U . Задавая поляризацию падающего и рассеянного света \mathbf{e}_i , \mathbf{e}_s из (3), получим для интенсивности рассеяния вперед под углом θ на LO-и TO-фононах для кристалла, повернутого на произвольный угол φ :

$$I^{LO}(\varphi) = [\mathbf{e}_i U R_{LO} U^T \mathbf{e}_s]^2,$$

$$I^{TO}(\varphi) = [\mathbf{e}_i U R_{TO1} U^T \mathbf{e}_s]^2 + [\mathbf{e}_i U R_{TO2} U^T \mathbf{e}_s]^2. \quad (4)$$

Расчет интенсивностей $I_{xx}^{LO}(\varphi)$, $I_{xx}^{TO}(\varphi)$ по формуле (4) для заданных в эксперименте условий и поляризаций $\mathbf{e}_i = \mathbf{e}_s = \mathbf{e}_x = (1, 0, 0)$, $\theta = 0.9^\circ$ представлен на рис. 4 сплошными линиями. Расчет проводился в программе *Wolfram Mathematica*.

Обсуждение результатов эксперимента

Эксперимент показывает сильную зависимость ширины спектральной линии поляритона от угла рассеяния (рис. 3, *b*). Как было показано в [4], необходимо различать ширину спектральной линии поляритона, обусловленную конечным временем жизни, и дополнительную ширину, обусловленную особенностью измерения КРС в области сильной дисперсии. А именно, в области сильной дисперсии при измерении КРС дополнительная ширина спектральной линии определяется собственно дисперсией и угловым размером измерительного инструмента:

$$\Delta\nu = \frac{\partial\nu}{\partial\theta} \Delta\theta, \quad (5)$$

угол сбора рассеянного излучения в эксперименте (рис. 1):

$$\Delta\theta_1 = \frac{d}{L_0} \cos\left(\frac{\pi/2 - \theta}{2}\right) \cong 0.025.$$

С учетом угловой расходимости лазера, внутри кристалла $\Delta\theta = 0.0074$ rad. На рис. 3, *b* кривой 1 представлена

зависимость (5), значения производной определялись по экспериментальным точкам (рис. 3, *a*). Сравнивая экспериментальную зависимость (точки) и кривую 1, можно сделать вывод, что основной вклад в увеличение ширины спектральной линии поляритона происходит за счет $\Delta\nu$.

Разность между экспериментальными данными и кривой 1 представлена кривой 2. Кривая имеет колоколообразную форму с максимумом в области 355 cm^{-1} , где ранее было обнаружен локальный максимум, который в [4] был приписан механическому ангармонизму. Дисперсия поляритонов в области 355 cm^{-1} действительно отличается от гармонического приближения. На рис. 3, *a* видно, что в области 355 cm^{-1} экспериментальные точки не совпадают с кривой 1, построенной по формуле (2).

Угловая зависимость интенсивности КРС, полученная в эксперименте, хорошо совпадает с теорией. В минимумах интенсивности (углы рассеяния 30° , 150° , 270° на LO-фононах (рис. 4, *a*) и 90° , 210° , 330° для поляритонов (рис. 4, *b*)) нулевые значения интенсивности в эксперименте не наблюдаются. Это связано с неидеальностью поляризатора, эллиптичностью поляризации лазера, точностью выставления угла поворота — все вместе определяет погрешность измерений. Минимальное экспериментальное значение интенсивности составляет 0.15 от ее максимального значения для LO-рассеяния и 0.18 для рассеяния на поляритонах.

Рассеяние на TO-фононах (пик 2 на рис. 2) в эксперименте не зависит от угла поворота (рис. 4, *c*) и имеет постоянную интенсивность 0.17 ± 0.02 от интенсивности поляритона в максимуме. В эксперименте по КРС на поляритонах такое TO-рассеяние присутствует всегда [1,5]. Обычно оно объясняется рассеянием назад от задней стенки образца (на угол $\theta = \pi$, а рассеяние на любой угол $\theta \gtrsim 8^\circ$ будет с частотой $\nu = \nu_{TO}$). Такое объяснение, возможно — действительно, формула (4) дает изотропное рассеяние назад: $I_{xx}^{LO}(\varphi) = 0.5$, $I_{xx}^{TO}(\varphi) = 0.5$, и с учетом потери при отражении ($R \simeq 0.31$ [10]) при минимальном поглощении света в образце. В данном случае при 532 nm поглощение света в образце значительно $\alpha = 360 \text{ cm}^{-1}$ [10]. Рассеяние назад на LO-фононах отсутствует, так как изотропная составляющая (минимальное значение) его равна 0.15 и, таким образом, она меньше, чем изотропная составляющая рассеяния на поляритонах (0.18), которая точно является погрешностью эксперимента. Таким образом, это TO-рассеяние не может быть рассеянием назад, так как нет рассеяния назад на LO.

Другим объяснением наличия изотропного TO-рассеяния в эксперименте является предложенный в [9] механизм. Наличие ангармонического взаимодействия приводит к тому, что фонon или в данном случае поляритон уже не является плоской волной, а в соответствии с подходом квантовой механики представляет собой сумму плоской первичной волны и сферической

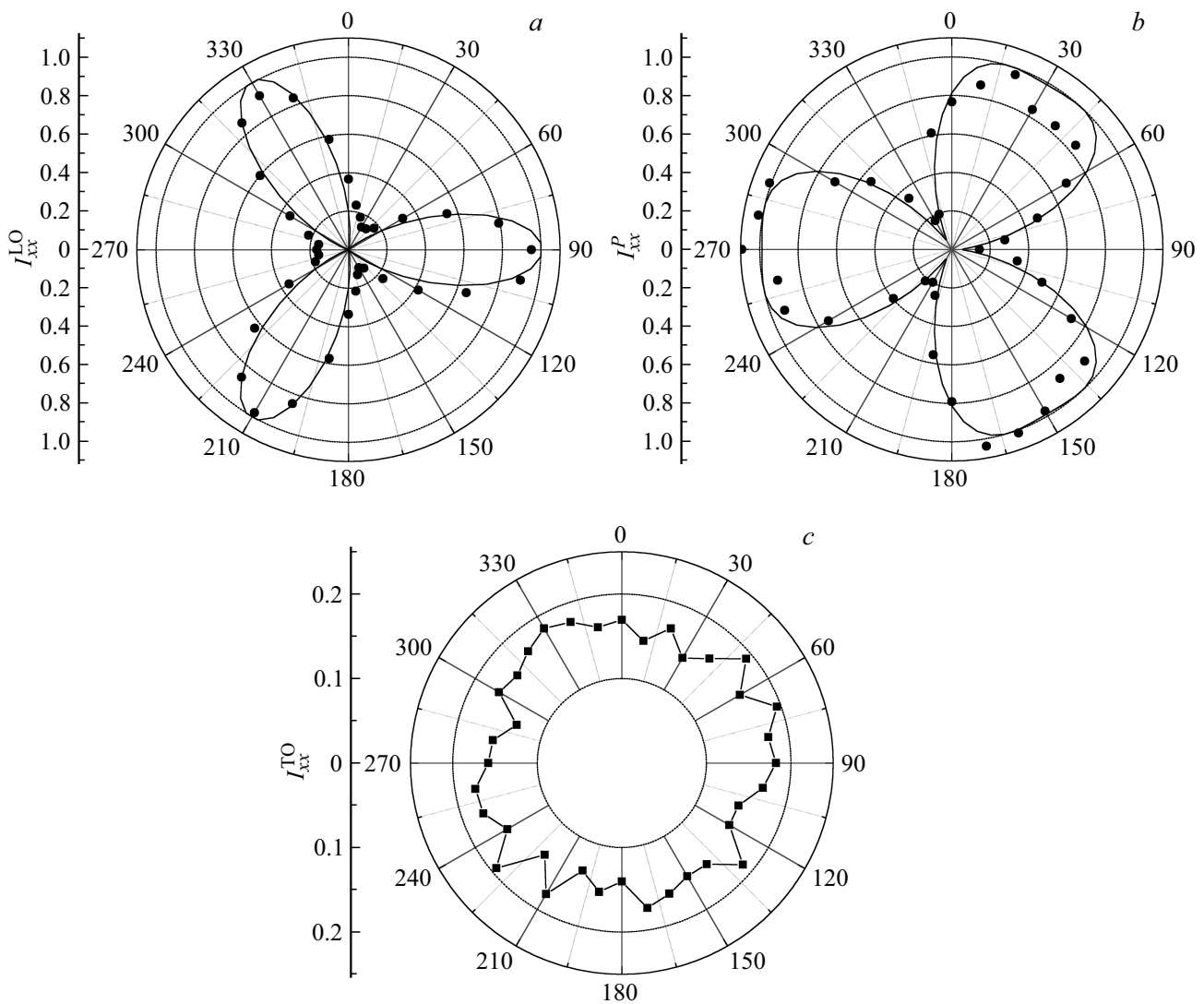


Рис. 4. Угловая зависимость интенсивности КРС в кристалле GaP, угол поворота кристалла φ обозначен на рис. 1: (a) $I_{xx}^{LO}(\varphi)$, точки — эксперимент, сплошная линия — расчет по формуле (4), (b) $I_{xx}^P(\varphi)$, точки — эксперимент, сплошная линия — расчет по формуле (4), (c) $I_{xx}^{TO}(\varphi)$, экспериментальные точки соединены линией для наглядности.

рассеянной:

$$\Psi = e^{iqz} + \frac{f}{r} e^{iqr}.$$

Первое слагаемое описывает невзаимодействующий поляритон, распространяющийся вдоль заданного направления z , и свет рассеивается на нем на частоте поляритона $\nu(q)$. Амплитуда рассеяния f во втором слагаемом определяет интенсивность рассеянного света от сферически расходящегося колебания, а частота рассеянного света соответственно ν_{TO} . Для сильного ангармонического взаимодействия амплитуда рассеяния должна возрастать и соответственно должна увеличиться интенсивность ТО-рассеяния. Измерение отношений интенсивностей ТО- и поляритонного рассеяния для углов рассеяния (частоты поляритона) 0.9° (346 cm^{-1}), 1.4° (352 cm^{-1}), 2.0° (356 cm^{-1}) дает 0.17 ± 0.02 , 0.18 ± 0.02 , 0.19 ± 0.02 . Такое увеличение

амплитуды рассеяния коррелирует с увеличением ширины спектральной линии КРС на поляритах с 7 до 8 cm^{-1} (кривая 2 на рис. 3, b).

Рассеяние на ЛО-колебаниях имеет очень узкую спектральную линию КРС. Измеренная в эксперименте величина составляла 3.4 cm^{-1} , но это завышенное значение, так как спектральная ширина щели составляла 1 cm^{-1} и значение 3.4 cm^{-1} это свертка собственной ширины спектральной линии с гауссовой аппаратной функцией щели спектрометра. Более того, и вид спектральной линии соответствует гауссову профилю. Узкая линия в спектре естественно означает, что для ЛО ангармоническое взаимодействие минимально и фонon хорошо описывается невзаимодействующей плоской волной. Форма спектральной линии рассеяния на поляритах имеет характерный лоренцев профиль, означающий, что она не искажена аппаратной функцией щели спектрометра.

Выводы

Применена новая методика измерения КРС на фононах и поляритонах в образце GaP. Для возбуждения КРС использовался несфокусированный пучок одномодового лазера 532 nm, а для сбора излучения использовано передвижное зеркало малого диаметра. Полученные спектры и зависимости спектральных параметров КРС от угла рассеяния в основном совпадают с ранее полученными значениями.

Проведены измерения зависимости интенсивности КРС от кристаллографического направления. Исследовались угловые зависимости (в азимутальной плоскости) поляризованных компонент интенсивности рассеянного света на LO- и TO-фононах и поляритонах (в области сильной дисперсии поляритонной ветви для трех фиксированных аксиальных углов рассеяния). Экспериментальные данные сопоставлены с теоретическими зависимостями. Наблюдаемые в эксперименте угловые зависимости поляритонов правильно описываются тензором комбинационного рассеяния света.

Обнаружено, что в области сильной дисперсии поляритонной ветви величина ангармонического взаимодействия поляритона коррелирует с интенсивностью изотропного рассеяния. Полученный результат является новым. Мерой ангармонизма является ширина спектральной линии КРС на поляритоне, а величину изотропного рассеяния в эксперименте определяли по угловым зависимостям интенсивности КРС.

Полученные результаты могут быть использованы для измерения величин ангармонизма, дефектности или других несовершенств в кристаллах.

Конфликт интересов.

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Поливанов Ю.Н.* // УФН. 1978. Т. 126. № 2. С. 185
- [2] *Benson H.J., Mills D.L.* // Phys. Rev. B. 1970. V. 1. N 12. P. 4835.
- [3] *Irmer G., Roder C., Hincinschi C., Kortus J.* // Phys. Rev. B. 2013. V. 88. N 10. P. 104303.
- [4] *Маврин Б.Н., Стерин Х.Е.* // Современные проблемы спектроскопии комбинационного рассеяния света. М.: Наука, 1978. С. 303.
- [5] *Nicola J.H., Liete R.C.C.* // Phys. Rev. B. 1975. V. 11. N 2. P. 798.
- [6] *Kojima S., Kanehara K., Hoshina T., Tsurumi T.* // Jpn. J. Appl. Phys. 2016. V. 55. N 10. P. 2.
- [7] *Loudon R.* // Adv. Phys. 1964. V. 13. P. 423.
- [8] *Munisso M.C., Zhy W., Pezzotti G.* // Phys. Stat. Sol. B. 2009. V. 246. N 8. P. 1893.
- [9] *Иго А.В.* // Опт. и спектр. 2018. Т. 125. В. 1. С. 25.
- [10] *Гавриленко В.И., Грехов А.М., Корбутяк Д.В., Литовченко В.Г.* Оптические свойства полупроводников. Киев: Наукова Думка, 1987. С. 607.
- [11] *Ushioda S., McMullen J.D.* // Sol. St. Comm. 1972. V. 11. P. 299.