ДВУКРАТНОЕ РЕЗОНАНСНОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА С УЧАСТИЕМ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ В CdS

Собиров М. М., Примбердиев К. Ж.

Теоретически исследовано двукратное резонансное рассеяние света с участием акустических фононов в кристалле CdS. Сопоставляя теоретические и экспериментальные результаты, мы определили значения констант деформационного потенциала.

Двукратное резонансное рассеяние света с участием акустических фононов (мандельштам-бриллюэновское рассеяние) экспериментально наблюдалось Винтерлингом и Котелесом при исследовании спектров вторичного излучения кристалла CdS, когда частота возбуждающего лазерного излучения настраивалась на частоту основного состояния A-экситона ($n=1$) [1, 2]. В настоящей работе в рамках теории двухфононного рассеяния экситонных поляритонов в одноосных кристаллах типа $A^{II}B^{VI}$, построенной в [3], проведен теоретический анализ этих экспериментальных спектров. В [3] эта теория была использована для расчета спектров излучения ($LA+LO$) и ($TA+LO$).

Как в [1, 2], рассматривается геометрия опыта $X\,(YY)X$ или $\mathbf{k}_0$, $\mathbf{k} \parallel X$, $\mathbf{e}_0$, $\mathbf{e} \parallel Y$, $Z \parallel C_6$ (рис. 1). При резонансном возбуждении спектральная интенсивность двукратно рассеянного назад излучения с учетом однократного зеркального отражения поляритонов от внутренней поверхности кристалла определяется выражением

$$I(\omega, \omega_0) = J(\omega_0) \sum_{\beta} \frac{T_{0\beta}(\omega)}{n_{\beta}^{2}(\omega)} \rho_{\beta}(\omega) \sum_{\beta_0 = T1,\, T2} \frac{T_{\beta_0}(\omega_0)}{\mathscr{V}_{\beta_0}(\omega_0)} \times$$
$$\times \left\{ \frac{1}{\alpha_{\beta_0} + \alpha_{\beta}} \sum_{\beta'} \iint \frac{d\omega' d\Omega'}{\tilde{\alpha}\, |\mathscr{V}_{\beta' x}|} \rho_{\beta'}(\omega', \Omega')\, W_{\beta\mathbf{k},\, \beta'\mathbf{k}'} W_{\beta'\mathbf{k}',\, \beta_0\mathbf{k}_0} + \right.$$
$$\left. + \sum_{\beta_1,\, \beta_2} \iint \frac{d\omega'' d\Omega''}{\tilde{\alpha}^2} \rho_{\beta_2}(\omega'', \Omega'')\, W_{\beta\mathbf{k},\, \beta_2\mathbf{k}''} R_{\beta_2\beta_1} W_{\beta_1\mathbf{k}'',\, \beta_0\mathbf{k}_0} \right\}, \tag{1}$$

где $W_{\beta\mathbf{k},\beta'\mathbf{k}'}$ — вероятность перехода в единицу времени поляритона из состояния (β', $\mathbf{k}'$) в состояние (β, $\mathbf{k}$). Здесь и в дальнейшем будем придерживаться обозначений, приведенных в [3].

Вероятность перехода пропорциональна сумме квадратов матричных элементов деформационного и пьезоэлектрического механизмов экситон-фононного взаимодействия:

$$W_{\beta\mathbf{k},\, \beta'\mathbf{k}'} \sim \left\{ |V_{\mathbf{q},\nu}^{\text{ДП}}|^2 + |V_{\mathbf{q},\nu}^{\text{ПЭ}}|^2 \right\}, \tag{2}$$

где

$$|V_{\mathbf{q},\, LA}^{\text{ДП}}|^2 = \mathbf{q}^2 \left[D_c(\tilde{\mu}) f_c - D_v(\tilde{\mu}) f_v \right]^2,$$

$$\sum_{\nu=1,\, 2} |V_{\mathbf{q},\, TA}^{\text{ДП}}|^2 = q^2 \sin^2\tilde{\theta} \cos^2\tilde{\theta} \left\{ [D_{\parallel}^{(c)} - D_{\perp}^{(c)}] f_c - [D_{\parallel}^{(v)} - D_{\perp}^{(v)}] f_v \right\}^2,$$

$$|V_{\mathbf{q},\nu}^{\text{ПЭ}}|^2 = \left(\frac{e}{\varepsilon_c \varepsilon_0 q^2} e_{imn} e_m^{\nu} q_i q_n \right)^2 (f_c - f_v)^2.$$

Здесь

$$D_l(\tilde{\mu}) = D_{\perp}^{(l)} + (D_{\parallel}^{(l)} - D_{\perp}^{(l)})\,\tilde{\mu}^2, \quad l = c,\ v,\ \tilde{\mu} = \cos\tilde{\theta},\ \tilde{\theta} = (\widehat{\mathbf{q},\ C_6}),$$

$$f_c = \{1 + (aq/2)^2\,[(m_{\perp}^{(v)}/M_{\perp})^2 \sin^2\tilde{\theta} + (m_{\parallel}^{(v)}/M_{\parallel})^2 \cos^2\tilde{\theta}]\}^{-2},$$

$$f_v = \{1 + (aq/2)^2\,[(m_{\perp}^{(c)}/M_{\perp})^2 \sin^2\tilde{\theta} + (m_{\parallel}^{(c)}/M_{\parallel})^2 \cos^2\tilde{\theta}]\}^{-2}.$$

На рис. 1 схематически показаны два основных типа двухфононных процессов вблизи резонанса в случае, когда частота возбуждающего света превышает продольную частоту ω_L. Свет проходит в кристалл в основном в виде поляритонной ветви *T2*, так как $T_{10}(\omega) \gg T_{20}$ и $\alpha_1(\omega_0) \gg \alpha_2(\omega_0)$, где T_{10}, T_{20} —

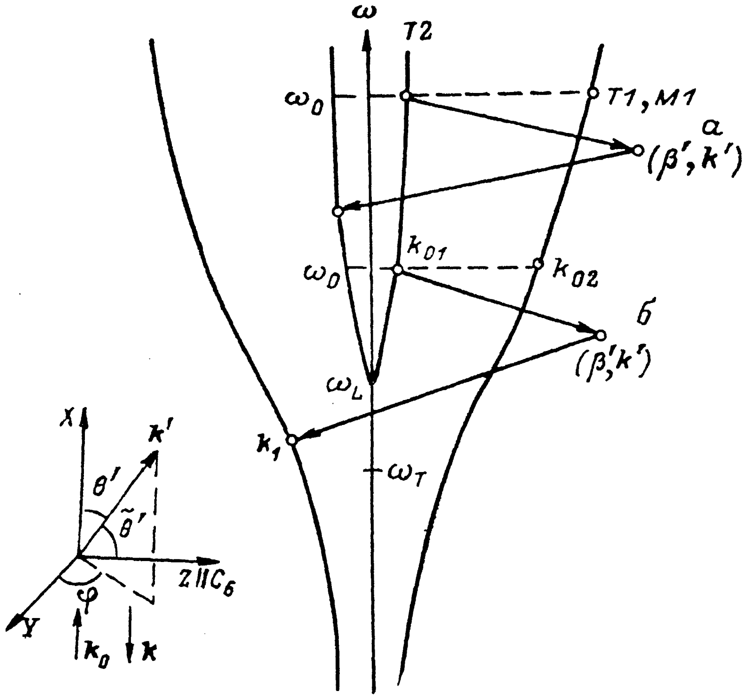

Рис. 1. Основные типы двухфононных процессов вблизи резонанса и геометрия опыта. *T1, T2, M1* — номера волн поперечной и смешанной поляризаций.

коэффициенты пропускания излучения поверхностью кристалла. На следующем этапе поляритон ветви *T2*, испуская один акустический фонон, будет рассеиваться в промежуточное состояние (*T1*, k′) или (*M1*, k′). Далее возможны переходы (*T1*, *M1*) → *T2* (процессы *а*) или (*T1*, *M1*) → *T1* (процессы *б*). При $\omega_0 > \omega_T + 2\omega_{LT}$ для вкладов в интенсивность выходящего излучения, обусловленных процессами *а* и *б*, можно написать следующее оценочное соотношение

$$\frac{I\,[T2 \to (T1,\ M1) \to T2]}{I\,[T2 \to (T1,\ M1) \to T1]} \approx \frac{\mathcal{V}_{T2}(\omega)}{\mathcal{V}_{T1}(\omega)} \gg 1; \tag{3}$$

здесь учтено тождество $T_{T1}/\mathcal{V}_{T2} = T_{T2}/\mathcal{V}_{T2}$. Из (3) следует, что когда частота возбуждающего света $\omega_0 \geqslant \omega_T + 2\omega_{LT}$, при низкой температуре процессами типа *б* можно пренебречь. В случае $\omega_0 \leqslant \omega_T + 2\omega_{LT}$ доминируют только процессы типа *б*. Для процессов *а* слагаемое в (1), связанное с зеркальным отражением, мало́ по сравнению с основным слагаемым по параметру $[\alpha(\omega) + \alpha_2(\omega_0)]/\alpha_1(\omega) \ll 1$. Численные оценки показали, что и для процессов *б* вклад зеркального отражения также несуществен.

На рис. 2 приведены результаты расчета на ЭВМ спектральной интенсивности выходящего из кристалла излучения при возбуждении светом с частотами $\omega_0 = W_T + 4.23\omega_{LT} = 20655$ (*а*) и $\omega_0 = \omega_T + 1.75\omega_{LT} = 20.620$ см$^{-1}$ (*б*) для процессов $2LA$, $2TA$, $(TA+LA)$ и $(LA+TA)$. Сначала расчет проводился при тех же значениях параметров, приведенных в [3], также при $s_{LA}=4500$, $s_{TA}=1760$ м/с, $T=2$ К. Однако в этом случае при сравнении интенсивностей экспериментальных и теоретических двухфононных пиков получается некоторое расхождение. Тогда для полного согласия экспериментальных и теоретических кривых для интенсивности значения констант деформационного потенциала изменяли как подгоночный параметр, так как в настоящее время в литературе нет однознач-

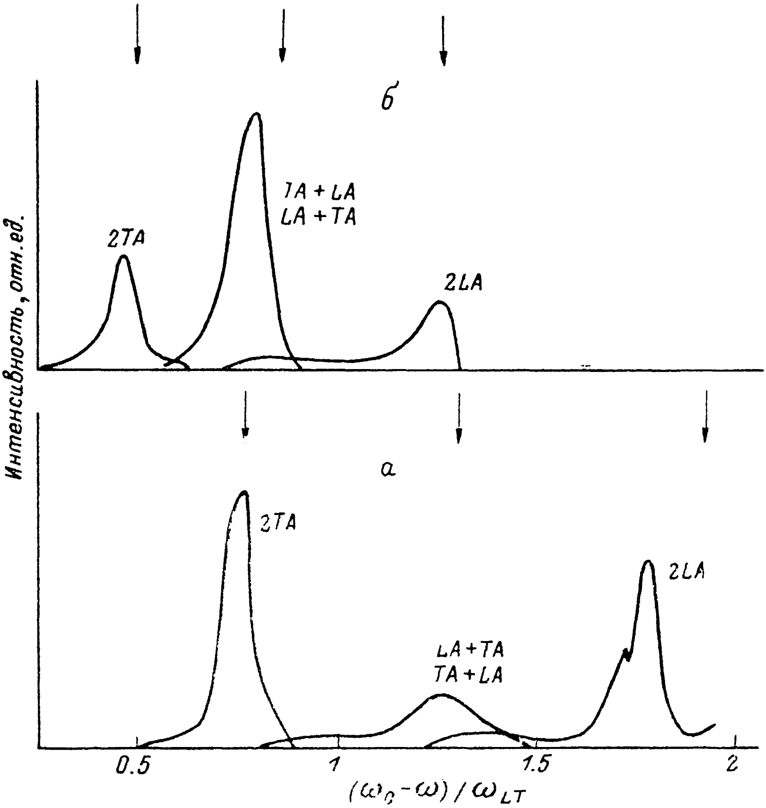

Рис. 2. Частотные зависимости интенсивности выходящего из кристалла излучения при $\omega_0=\omega_T+4.23\,\omega_{LT}$ (а) и $\omega_0=\omega_T+1.75\,\omega_{LT}$ (б).

Стрелками указаны положения максимумов в экспериментальных спектрах при тех же значениях ω_0.

ных данных о константах D. При этом считали, что $D_{\|}^{(c)}=D_{\perp}^{(c)}=D^{(c)}$, а значения $D_{\|}^{(c)}$, $D_{\perp}^{(c)}$ подбирали произвольно. Теоретические спектры, полученные на рис. 2, рассчитаны при следующих значениях констант деформационного потенциала: $D_{\|}^{(c)}=D_{\perp}^{(c)}=1$, $D_{\|}^{(v)}=8.1$, $D_{\perp}^{(v)}=2.3$ эВ. В экспериментах обычно определяются только суммарные значения $D_{\|}^{(c)}+|D_{\|}^{(v)}|$ и $D_{\perp}^{(c)}+|D_{\perp}^{(v)}|$. Например, в работе [4] для констант деформационного потенциала приводятся следующие значения: $D_{\|}^{(c)}+|(D_{\|}^{(r)})|=4.1$, $D_{\perp}^{(c)}+|D_{\perp}^{(v)}|=1.6$ эВ. В отличие от [8] здесь значения эффективных масс электрона взяты как $m_{\|}^{(c)}=m_{\perp}^{(c)}=0.20m_0$.

Расчеты показали, что интенсивности $2TA$-пиков определяются пьезоэлектрическим механизмом, а $2LA$-пиков деформационным механизмом взаимодействия экситонов с фононами. При расчете $(TA+LA)$- и $(LA+TA)$-пиков достаточно учесть пьезоэлектрический механизм с TA-фононами и деформационный механизм с LA-фононами.

При этих значениях эффективных масс электрона и констант деформационного потенциала повторяли расчет для $(LO+LA)$- и $(LO+TA)$-процессов (см. [8]), было получено хорошее согласие экспериментальных и расчетных кривых.

При $\omega_0=\omega_T+4.23\omega_{LT}$ выполняется неравенство $k_0/k'\ll 1$, поэтому $q_1\approx q_2\approx k'$. В этом случае для оценки максимального и минимального частотных сдвигов $\Delta\omega=\omega_0-\omega$ на ветви $T1$ можно воспользоваться формулой

$$\Delta\omega(\tilde{\theta}') = (s_1 + s_2)\, k'(\tilde{\theta}'), \tag{4}$$

где $\tilde{\theta}'$ — угол между осью C_6 и волновым вектором поляритона $T1$ в промежуточном состоянии. В случае параболического энергетического спектра

$$k'(\tilde{\theta}') = \left[\frac{2(\omega_0 - \omega_T)}{\hbar}\right]^{-1/2} \left[\frac{\cos^2\tilde{\theta}'}{M_\parallel} + \frac{\sin^2\tilde{\theta}'}{M_\perp}\right]^{-1}. \tag{5}$$

Подставляя (5) в (4), получаем

$$\begin{aligned} \Delta\omega_{\max} &= (s_1 + s_2)\sqrt{2(\omega_0 - \omega) M_\parallel/\hbar}, \\ \Delta\omega_{\min} &= (s_1 + s_2)\sqrt{2(\omega_0 - \omega) M_\perp/\hbar}. \end{aligned} \tag{6}$$

При $\omega_0 = \omega_T + 1.75\omega_{LT}\, q_1 \approx k'$ и

$$\Delta\omega = \omega_0 - \omega = s_1 k' + s_2 q_2,$$

где $q_2 = \left(k'^2 + k^2 - 2kk' \cos\theta'\right)^{1/2}$, θ' — угол между $\mathbf{k}$ и $\mathbf{k}'$.

Расчеты показали, что в отличие от $(LA+LO)$- и $(TA+LO)$-рассеяний в процессах с участием акустических фононов вклады волн смешанной поляризации в промежуточных состояниях оказались несущественными.

В конце статьи следует остановиться на некотором расхождении теории с экспериментом для частотного сдвига $2LA$-пика при $\omega_0 = \omega_T + 4.23\omega_{LT}$. Изменяя параметры A-экситона, мы не сблизили его величину с экспериментальным значением. По нашему мнению, это связано с влиянием B-экситона, так как в CdS расстояние между A- и B-экситонами примерно $8\omega_{LT}$.

В заключение выражаем благодарность Е. Л. Ивченко за ценные замечания и обсуждение полученных результатов.

Список литературы

[1] Winterling G., Koteles E. // Sol. St. Commun. 1977. V. 23. P. 95—98.
[2] Экситоны. Т. 2. / Под ред. Э. И. Рашбы, М. Д. Стерджа. М., 1985.
[3] Ивченко Е. Л., Собиров М. М. // ФТТ. 1986. Т. 28. В. 7. С. 2033—2031.
[4] Bear W. S., Dexter R. N. // Phys. Rev. 1964. V. 135A. N 5. P. 1388—1393.

Ферганский
государственный педагогический институт
им. Улугбека

Получена 4.12.1989
Принята к печати 11.04.1990