

02

Обертонное комбинационное рассеяние света в монокристаллах танталата лития

© С.Д. Абдурахмонов¹, В.С. Горелик^{1,2,¶}

¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
119991 Москва, Россия

² МГТУ им. Н.Э. Баумана,
105005 Москва, Россия

¶ e-mail: gorelik@sci.lebedev.ru

Поступила в редакцию 30.05.2019 г.

В окончательной редакции 30.05.2019 г.

Принята к публикации 04.06.2019 г.

В спектре комбинационного рассеяния света монокристаллов танталата лития обнаружены обертонные полосы в спектральном диапазоне 1300–1920 см⁻¹. Для регистрации спектров комбинационного рассеяния была использована 180°-геометрия рассеяния. В различных образцах интенсивность обертонных переходов изменялась и в некоторых случаях оказалась сравнимой с интенсивностью комбинационного рассеяния на фундаментальных модах монокристалла танталата лития.

Ключевые слова: комбинационное рассеяние, обертон, танталат лития, оптические моды, спектр.

DOI: 10.21883/OS.2019.10.48352.168-19

Введение

Танталат лития (LiTaO₃) представляет собой одноосный нелинейно-оптический сегнетоэлектрический кристалл. В этом кристалле обнаруживается интенсивное комбинационное рассеяние света на полярных модах кристаллической решетки. Танталат лития является потенциальным материалом для пьезоэлектрических, электрооптических и нелинейно-оптических применений [1,2]. Его высокие нелинейные оптические, электрооптические, пьезоэлектрические коэффициенты используются для различных приложений. Динамика решетки танталата лития (LiTaO₃) была объектом многочисленных исследований с использованием спектроскопии комбинационного рассеяния (КР) и инфракрасного (ИК) поглощения [3–5]. В спектрах КР танталата лития обнаруживаются комбинационные спутники, соответствующие рассеянию на поперечных (ТО) и продольных (ЛО) полярных модах с возбуждением ТО- и ЛО-фононов [6,7]. Танталат лития характеризуется большой спонтанной поляризацией (50 мкС/см² [8]) и широко применяется в линейной и нелинейной интегральной оптике для генерации поверхностных акустических волн [9]. Этот кристалл изоструктурен с ниобатом лития и кристаллизуется в пространственной группе $R3c$ (C_{3v}^6) ниже температуры Кюри [10]. Благодаря отсутствию центра инверсии в точечной группе симметрии (C_{3v}^6) и высоким значениям нелинейно-оптических коэффициентов кристаллов танталата лития имеется возможность использования этих кристаллов для генерации оптических гармоник.

В последнее время кристалл танталата лития интенсивно изучался методом спектроскопии спонтанного

КР [11–14]. При этом была получена информация только о фундаментальных оптических модах, соответствующая спектру КР первого порядка. В настоящей работе ставилась задача сравнения спектров КР монокристаллов танталата лития как в области фундаментальных мод, так и в области их обертонов, соответствующих спектру КР второго порядка в диапазоне 50–2000 см⁻¹.

Методика эксперимента

На рис. 1 представлена схема экспериментальной установки для регистрации спектров КР. Источником излучения служил лазер 1 с длиной волны $\lambda = 785$ нм и средней мощностью 200 мВт. Излучение лазера вводилось в световод 2 и зонд 3. Линза 5 применялась для фокусировки излучения на образце 6, представляющем собой ориентированный монокристалл танталата лития. Сигнал КР, возникающий в образце, попадал на второй световод 8 и фильтровался в рефокусаторе 9 с помощью фотонного кристалла 11, отражающего возбуждающее излучение (785 нм) и пропускающего излучение КР. Далее сигнал КР попадал на вход миниспектрометра 13 с многоэлементным приемником. В качестве устройства цифровой обработки и накопления спектров КР использовался компьютер 14. Спектральное разрешение при записи спектров КР составляло 1 см⁻¹. Используемый волоконно-оптический метод регистрации спектров КР позволил регистрировать спектры КР монокристаллов танталата лития при разных геометриях съемки с небольшими экспозициями (10–100 с) в широком спектральном диапазоне.

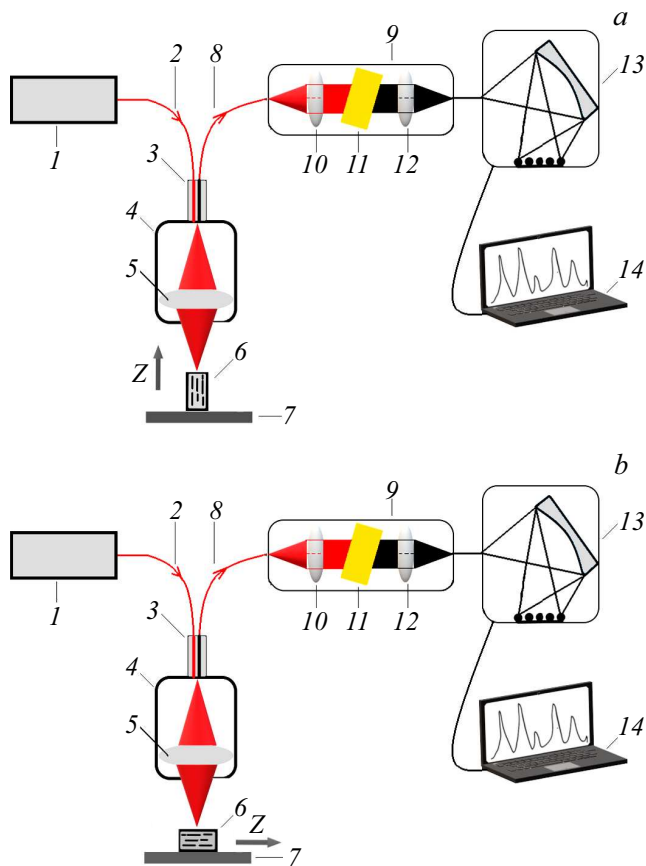


Рис. 1. Схема мини-спектрометра с использованием волоконно-оптического возбуждения спектров КР: 1 — лазер, 2 — световод, 3 — зонд, 4 — корпус, 5 — линза, 6 — образец, 7 — подложка, 8 — световод, 9 — фокусатор, 10 — линза, 11 — фотонный кристалл, 12 — линза, 13 — мини-спектрометр, 14 — компьютер; (a) схема для регистрации спектров КР монокристаллов при геометрии рассеяния $Z(XX;YY;ZY)Z$; (b) схема для регистрации спектров КР монокристаллов при геометрии рассеяния $X(ZZ;ZY)X$.

Результаты и их обсуждение

На рис. 2 и 3 показаны спектры КР монокристаллов танталата лития, зарегистрированные при 180° -геометрии рассеяния (рассеяние „назад“), соответствующей установкам: (рис. 2, a, b) и (рис. 3, a, b). В спектрах КР монокристаллов танталата лития (рис. 2 и 3) согласно правилам отбора проявляются поперечные (ТО) и продольные (ЛО) полярные колебания A_1 - и E -типов. Как видно из рис. 2 и 3, спектры КР монокристаллов танталата лития состоят из большого числа узких полос. Судя по приведенным спектрограммам (рис. 2, a, b), при геометрии рассеяния возбуждаются продольные оптические фононы типа A_1 (ЛО). Обнаружено, что в спектре исследованных монокристаллов танталата лития присутствуют (рис. 2, b и 3, b) интенсивные обертоновые полосы в спектральном диапазоне $1300\text{--}1920\text{ cm}^{-1}$. Как правило, в спектрах КР обертоновые и составные

полосы, классифицируемые как КР второго порядка, имеют интенсивность, на два-три порядка меньшую интенсивности соответствующего спектра КР первого порядка [15–17]. В данном случае оказалось, что при геометрии рассеяния „назад“ в спектре КР второго порядка проявляются линии, интенсивность которых сравнима или даже превышает интенсивность линий КР первого порядка (рис. 2, b). При этом обнаруживаются резкие пики, близкие по частоте к обертонным переходам с границы зоны Бриллюэна, а также обертоновые переходы с центра зоны Бриллюэна. Возрастание интенсивности КР для обертонов в данном случае можно объяснить как следствие формирования связанных состояний фононов с учетом высокой плотности фононных состояний в критических точках на границе зоны Бриллюэна. В случае геометрии рассеяния в спектре КР (рис. 3, a, b) проявляются фундаментальные полосы типа E , а также интенсивные резкие обертоновые линии, соответствующие спектру КР второго порядка. Как видно из рис. 3, b, при геометрии рассеяния интенсивность обертоновых переходов оказывается сравнимой с интенсивностью КР

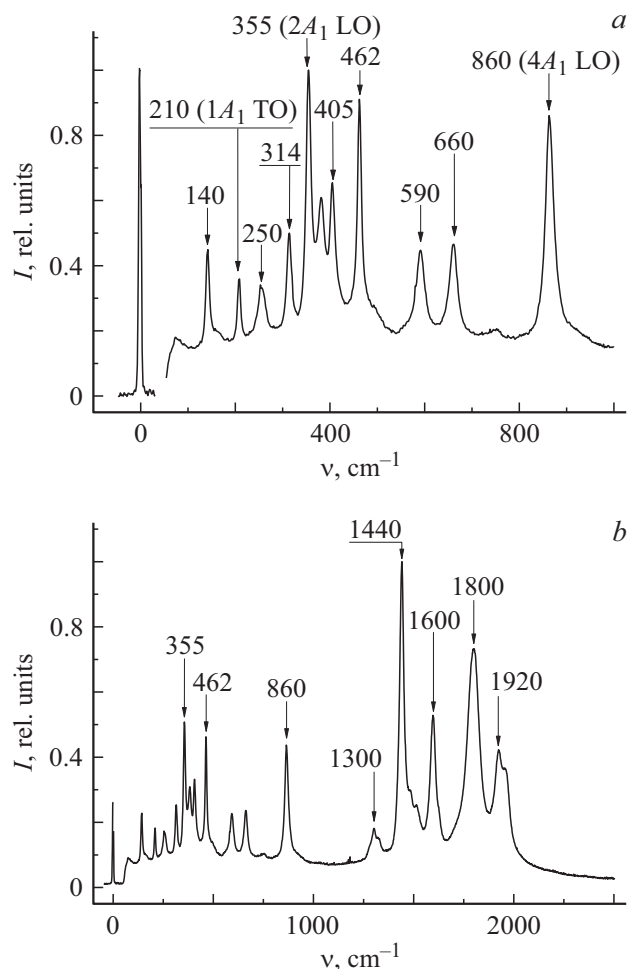


Рис. 2. Вид спектров КР в монокристаллах танталата лития при 180° -геометрии рассеяния с использованием волоконно-оптического возбуждения (рис. 1, a) (геометрия $Z(XX;YY;ZY)Z$).

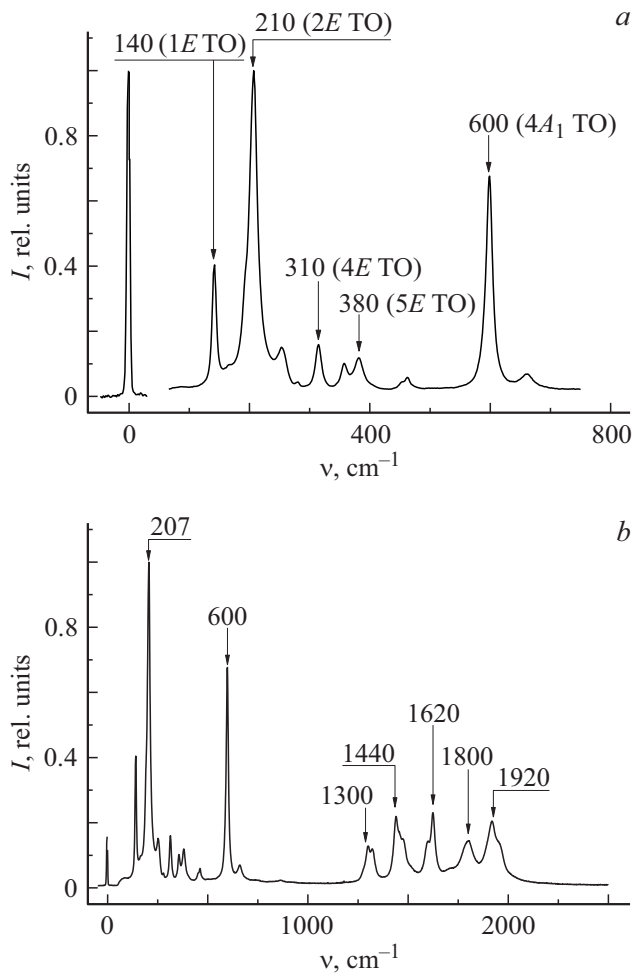


Рис. 3. Вид спектров КР в монокристаллах танталата лития при 180° -геометрии рассеяния с использованием волоконно-оптического возбуждения (рис. 1, *b*) (геометрия $X(ZZ;ZY)\bar{X}$).

на фундаментальных модах монокристалла танталата лития. Аналогичный эффект возрастания интенсивности оберточных переходов обнаруживается для геометрии рассеяния, соответствующей возбуждению продольных полярных мод типа A_1 (LO), а также фундаментальных колебаний типа E (TO). При этом частоты в спектре КР интенсивных оберточных переходов оказываются близкими для обеих обсуждаемых геометрий рассеяния „назад“. Анализ дисперсионных кривых и плотности фоновых состояний в кристаллах танталата лития был выполнен в работе [18]. При этом были рассчитаны частоты фононов, соответствующих критическим точкам зоны Бриллюэна. На рис. 4 проведено сопоставление спектров КР второго порядка монокристаллов танталата лития в области оберточных переходов с плотностью двухфононных состояний, рассчитанной в соответствии с работой [18]. Как видно из этих рисунков, значения частот полос в спектре КР второго порядка не совпадают с точными значениями оберточных частот фононов критических точек, а попадают в запрещенную зону

между дисперсионными ветвями акустических и оптических фононов. Под действием интенсивного лазерного излучения на первом этапе происходит возбуждение оптической моды вблизи центра зоны Бриллюэна. В результате фоновой релаксации внутри монокристалла происходит возбуждение фоновых состояний в граничных точках зоны Бриллюэна, соответствующих взаимно противоположным направлениям волновых векторов: $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$. Такой процесс можно интерпретировать как образование связанных состояний фононов (бифононов), соответствующих граничным точкам зоны Бриллюэна, с противоположными направлениями волновых векторов. В связи с этим в спектре КР обнаруживаются интенсивные резкие пики в области оберточных частот фононов границы зоны Бриллюэна (рис. 3 и 4). В связи с этим мы полагаем, что, с учетом эффектов ангармонизма и высокой плотности фоновых состояний вблизи критических точек формируются связанные состояния пар фононов, относящихся к зеркально симметричным точкам зоны Бриллюэна. При этом волновой вектор бифонана (связанного состояния двух фононов) оказывается близким к нулю. Соответственно бифононы разрешены для на-

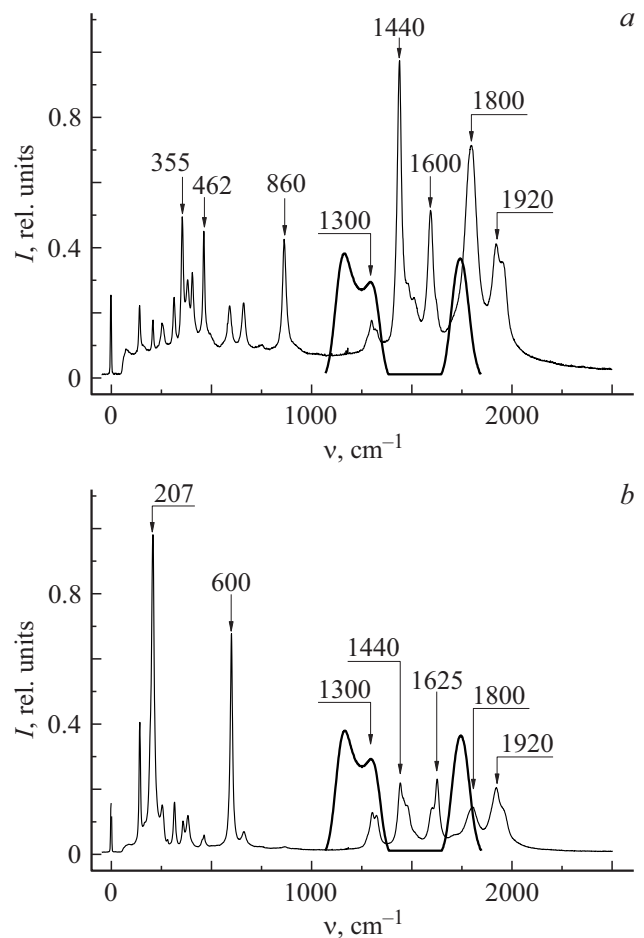


Рис. 4. Спектры КР второго порядка монокристаллов танталата лития (тонкие кривые) при геометрии рассеяния $Z(XX;YY;XY)\bar{Z}$ (*a*) и $X(ZZ;ZY)\bar{X}$ (*b*) в сравнении с плотностью двухфононных состояний [18] (жирная кривая).

блюдения в спектре КР и их интенсивность оказывается аномально высокой.

Заключение

Таким образом, в настоящей работе представлены результаты исследований спектров КР первого и второго порядков в монокристаллах танталата лития. При использовании 180°-геометрии рассеяния (рассеяние „назад“) обнаружено, что в спектре КР второго порядка проявляются линии, интенсивность которых сравнима или превышает интенсивность линий КР первого порядка. Наблюдаемые резкие интенсивные линии спектра КР второго порядка соответствуют обертоным переходам из центра, а также с границы зоны Бриллюэна. При этом в кристалле проявляются связанные состояния фононов — бифононы, волновой вектор которых находится вблизи центра зоны Бриллюэна. Образовавшиеся связанные состояния фононов имеют квазиимпульс, близкий к нулю ($k \sim 0$), и обнаруживаются в спектре КР в виде резких, интенсивных пиков.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Финансирование работы

Работа выполнена за счет Российского научного фонда (проект № 19-12-00242).

Список литературы

- [1] Imbrock J., Wevering S., Buse K., Kratzig E. // J. Opt. Soc. Am. B. 1999. V. 16. N 9. P. 1392.
- [2] Hatanaka T., Nakamura K., Taniuchi T., Ito H., Furukawa Y., Kitamura K. // Opt. Lett. 2000. V. 25. N 9. P. 651.
- [3] Kaminov J.P., Johnston W.D. // Phys. Rev. 1967. V. 160. N 9. P. 519.
- [4] Penna A.F., Chaves A., Andrade P.da R., Porto S.P.S. // Phys. Rev. B. 1976. V. 13. N 11. P. 4907.
- [5] Constantine R. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. N 14. P. 10007.
- [6] Tomeno I., Matsumura S. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. N 1. P. 606.
- [7] Hushur A., Gvasaliya S., Roessli B., Lushnikov S., Kojima S. // Phys. Rev. B. 2007. V. 76. N 6. P. 064104.
- [8] Rabe K.M., Ahn C.H., Triscone J.-M. Physics of Ferroelectrics, a Modern Perspective. Topics in Applied Physics. Berlin-Heidelberg: Springer-Verlag, 2007. 388 p.
- [9] Xu Y. Ferroelectric Materials and their Applications. Amsterdam: Elsevier, North Holland, 1991. 406 p.
- [10] Sanna S., Neufeld S., Rüsing M., Berth G., Zrenner A., Schmidt W.G. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. N 6. P. 224302.
- [11] Johnston W.D.Jr., Kaminov J.P. // Phys. Rev. 1968. V. 168. N 3. P. 1045.
- [12] Горелик В.С. // Известия РАН. Серия. Физ. 1985. Т. 49. № 2. С. 282; Gorelik V.S. // Bull. Russ. Acad. Sci.: Physics. 1985. V. 49. N 2. P. 282.
- [13] Горелик В.С., Свербиль П.П., Водчиц А.И., Войнов Ю.П. // Известия РАН. Сер. Физ. 2018. Т. 82. № 3. С. 299; Gorelik V.S., Sverbil P.P., Vodchits A.I., Voinov Yu. P. // Bull. Russ. Acad. Sci.: Physics. 2018. V. 82. N 3. P. 257.
- [14] Gorelik V.S., Tochilin S.D., Sushchinsky M.M. // J. Mol. Struct. 1986. V. 143. P. 83.
- [15] Shuo L., Zhanlong L., Shenghan W., Shuqin G., Chenglin S., Zuowei L. // Mater. Res. Bull. 2015. V. 72. P. 1.
- [16] Liu T., Xu S., Li Z., Wang M., Sun C. // Spectrochim. Acta. A. 2014. V. 131. P. 153.
- [17] Eric J.H., Yuan Y., Lucas K., Wei C., Shiang F., Mario B., Efthimios K. // ACS Nano. 2016. V. 10. N 2. P. 2803.
- [18] Friedrich M., Schindlmayr A., Schmidt W.G., Sanna S. // Phys. Stat. Sol. B. 2016. V. 253. N 4. P. 683.