

СПОНТАННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ
НА НЕОБЫКНОВЕННЫХ ПОЛЯРИТОНАХ В КРИСТАЛЛЕ LiJO_3

Г. Э. Понат и К. Д. Кнейпп

Исследован спектр спонтанного комбинационного рассеяния на поляритонах обыкновенной волны в монокристалле LiJO_3 при возбуждении компонентой излучения аргонового лазера для необыкновенной волны. Сделаны заключения о характере фононного колебательного спектра пьезоэлектрических одноосных кристаллов.

Фотографический метод [1] непосредственной регистрации дисперсионных кривых $k_p(\omega_p) = k_L(\omega_L) - k_S(\omega_L - \omega_p)$ [или $\omega_p(Q)$] под малыми углами рассеяния Θ позволяет извлекать из спектров спонтанного комбинационного рассеяния (СКР) на поляритонах существенные сведения при интерпретации фононных спектров одноосных пьезоэлектрических кристаллов. При маленьком интервале угла рассеяния $0^\circ < \Theta < 10^\circ$ между лазерным и стоксовым волновыми векторами k_L и k_S изменяется направление волнового вектора поляритона k_p в большом угловом интервале α_L относительно оптической оси z . Для k_L , направленных под углом $0^\circ < \alpha_L < 90^\circ$ относительно оси z , и при рассеянии k_S (в интервале $\alpha_L - \Delta\theta \leq \alpha_L \pm \theta \leq \alpha_L + \Delta\theta$) в плоскости (k_L, z) дисперсионная кривая $\omega_p^{(e)}(\theta)$ для необыкновенных (e) поляритонных ветвей несимметрична относительно направления $k_L(\theta=0^\circ)$, в то время как обыкновенные (o) поляритонные ветви имеют при $\pm\theta$ одинаковые частоты $\omega_p^{(o)}(\theta)$.¹ Эту асимметрию зависимости $\omega_p^{(e)}(\theta)$ можно зарегистрировать в спектре СКР, $\omega_S = \omega_L - \omega_p(\theta)$. Таким же образом меняется направление орта электрического поля $e_p^{(e)}$ e -поляритонной волны в зависимости от α_p и θ , что вызывает несимметричный ход эффективной нелинейной восприимчивости $\chi_{\text{eff.}}(\theta) = e_S^i e_L^j e_p^k \chi_{ijk}$ и интенсивности рассеяния. Такое характерное поведение поляритонного спектра (при вариации угла рассеяния θ и анизотропии $a(\alpha_L) \equiv |k_L^{(2)} - k_L^{(1)}|$, [3] позволяет проверить интерпретацию фононного спектра независимо от методов инфракрасного поглощения и СКР света под большими углами ($\theta \approx 90^\circ$) рассеяния.

Цель работы — экспериментальное исследование спектра СКР на обыкновенных поляритонах гексагонального кристалла LiJO_3 при $\omega_p > 450 \text{ см}^{-1}$ и при рассеянии k_S в плоскости (k_L, z) . На основании интерпретации фононного спектра [4] при возбуждении необыкновенной компонентой лазерного излучения $k_L^{(e)}$, направленной под углом $\alpha_L \approx 20^\circ$ к оси z , для обыкновенной стоксовой составляющей ожидаются следующие интересные особенности в поляритонном стоксовом спектре (рис. 1, а, б).²

1. «Эллипс рассеяния» верхней необыкновенной поляритонной ветви вследствие $\varepsilon_\infty^{\parallel} < \varepsilon_\infty^{\perp}$ [4, 5] несимметрично сдвинут к большим углам θ

¹ Мы пренебрегаем несимметричностью, вызванной зависимостью оптической анизотропии стоксовой волны от θ .

² Спектр рассеяния на поляритонах $\omega_p(\theta)$ определяется из точек пересечения дисперсионной кривой $k_p(\omega_p)$ и кривой $|k_L^{(1)} - k_S^{(2)}| = f(\omega_p, \theta)$ при $\theta \geq 0^\circ$, см [2], вариант 3а.

внутри «эллипса» обыкновенной ветви. Напомним, что при $\Theta = 0^\circ$ волновой вектор $\mathbf{k}_p^{(e)}$ направлен под углом α_L к оси z и дисперсионная кривая (e) расположена между кривыми (1) и (2) на рис. 1, а. При $\Theta < 0^\circ$ кривая e [$k_p^{(e)}(\omega_p, \eta)$] с ростом η ($\Theta, \alpha_L, \mathbf{k}_S^{(o)}, \mathbf{k}_L^{(e)}$) приближается к кривой 1 (рис. 1, а). При увеличении Θ в области $\Theta > 0^\circ$ кривая e стремится к 2 при $\eta > 0^\circ$; при $\eta < 0^\circ$ кривая возвращается опять к 1. Наконец, кривые $k_p^{(e)}(\omega_p, \eta)$ и $|\mathbf{k}_L^{(e)} - \mathbf{k}_S^{(o)}| = f(\omega_p, \Theta)$ при $\Theta < 0^\circ$ смещаются в различных направлениях,

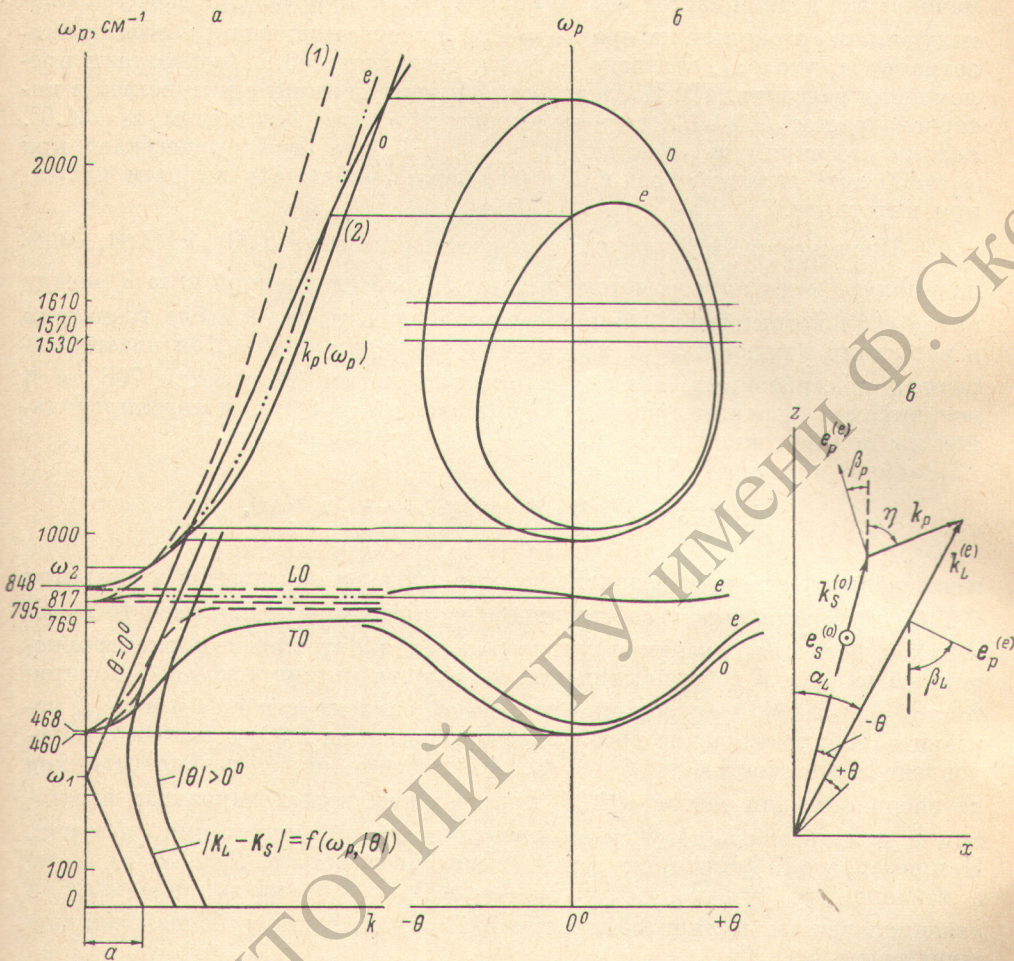


Рис. 1.

а — дисперсионные кривые для кристалла LiJO_3 при $\omega_p > 460 \text{ см}^{-1}$. Точки пересечения кривых $f(\omega_p, |\Theta|)$ и $k_p^{(o, e)}(\omega_p)$ — поляритоны типов e, o ; б — зависимость $\omega_p |\Theta|$ для o -поляритонов (симметрично) и e -поляритонов (несимметрично); e — геометрия рассеяния в плоскости (x, z) .

в то время как при $\Theta > 0^\circ$ (до значений Θ , где $\eta = 0^\circ$) в одинаковых направлениях (т. е. направо на рис. 1, а). Вследствие этого «эллипс» $\omega_p^{(e)}(\Theta)$ оказывается несимметричным относительно Θ . Тем же самым обусловлен и сдвиг минимальной частоты $\omega_p^{(e)}(\Theta)$ нижней e -ветви (интервал частот $468 \div 795 \text{ см}^{-1}$) в области значений $\Theta > 0^\circ$.

2. Частота квазипродольной e -поляритонной волны [интервал между $\omega_{L0}^{\parallel} = 817 \text{ см}^{-1}$ ($\eta = 0^\circ$) и $\omega_{L0}^{\perp} = 848 \text{ см}^{-1}$ ($\eta = 90^\circ$)] падает в области $\Theta = 0^\circ$ монотонно с ростом Θ ; она имеет при $\Theta < 0^\circ$ ($\Theta > 0^\circ$) свое максимальное (минимальное) значение. В поляритонном спектре при $\alpha_L = 90^\circ$ частота $\omega_p^{(e)}(\Theta)$ падает (поскольку $\omega_{L0}^{\parallel} < \omega_{L0}^{\perp}$) начиная от 848 см^{-1} при $\Theta = 0^\circ$ с ростом $|\pm\Theta|$ и имеет угловую зависимость, ход которой противоположен

наблюдаемой при чисто поперечных поляритонах, где $\omega_p(\Theta)$ монотонно растет с увеличением угла Θ .

Поскольку $\omega_{LO}^\perp > \omega_{LO}^\parallel$, то в поляритонном спектре на верхней ветви должна появиться еще одна особенность. При $\epsilon_\infty^\perp > \epsilon_\infty^\parallel$ ветви 1 и 2 пересекаются друг с другом на частоте $\omega_p = \omega_2$ (рис. 1, а). Если анизотропия $a = |\mathbf{k}_L^{(e)} - \mathbf{k}_L^{(o)}|$ принимает такое значение a_1 , при котором точка перелома «прямой» при ω_1 лежит близко к 850 см^{-1} , то «эллипсы» o - и e -поляритонов начинаются вблизи частот ω_{LO}^\parallel и пересекаются при ω_2 . При возбуждении излучением аргонового лазера с $\lambda_L = 4880 \text{ \AA}$ соответствующий значению анизотропии a_1 угол α_L , согласно расчету, составляет 46.5° (показатели преломления взяты из [6]). Исследование нижних поляритонных ветвей в интервале частот $460 \div 795 \text{ см}^{-1}$ целесообразно вести под углом $\alpha_L = 31.0^\circ$, потому что «прямая», равная $|\mathbf{k}_L^{(e)} - \mathbf{k}_S^{(o)}| = k$, для $\Theta = 0^\circ$ пересекает при $\omega_1 = 460 \text{ см}^{-1}$ частотную ось и $\omega_p^{o,e}(\Theta)$ можно наблюдать во всем частотном интервале.

3. Несимметричный ход интенсивности рассеяния $I(\Theta) = \int I(\Theta, \omega) d\omega$ на e -поляритонах определяется главным образом величиной угла β_p между ортом $\mathbf{e}_p^{(e)}$ поляритонного поля и осью z . При описанной выше геометрии и рассеянии в плоскости (\mathbf{x}, z) $\chi_{\text{eff}}^{(e)} = -d \cos \beta_p \sin \beta_p$ [7]. Для квазипоперечных поляритонных ветвей (e) (верхней ветви (e) и ветви 795 см^{-1}) величина $\sin \beta_p$ растет с ростом Θ (до значений $\eta = 0^\circ$); для квазипродольной же поляритонной ветви (e) ($817 \div 848 \text{ см}^{-1}$) — падает.

Элемент тензора [2, 8]

$$d = \chi_{231}^{(o)} + \sum_f \hbar^{-1} 2\omega_f P_f^{(1)} \alpha_{23}^{(f)} \{\omega_f^2 - \omega^2 + i\omega\Gamma_f\}^{-1},$$

имеет вблизи частот ω_f резонансную структуру и обращается в нуль при $\tilde{\omega}_p^{(i)}(d)$ в области между собственными частотами ω_f и при частоте $\tilde{\omega}_p(d)$ верхней ветви, где взаимно уничтожаются электронный и электронно-ионный вклады в восприимчивость. В области квазипродольной поляритонной волны $\omega_{LO}^\parallel, \omega_{LO}^\perp$ влияние частотной зависимости $d(\omega_p)$ на χ_{eff} незначительно; уменьшение интенсивности рассеяния $I(\Theta)$ с ростом Θ обусловлено зависимостью $\sin \beta_p$ от Θ . Аналогично можно рассмотреть ход интенсивности для частот $\omega_p^{(e)}(\Theta)$ при всех возможных вариантах рассеяния и использовать полученные сведения для интерпретации спектров. Например, у LiIO_3 сразу же можно выделить при $L=o, S=o$ ($L=o, S=e$) с тензором $\chi_{\text{eff}}^{(e)} = a \cos \beta_p$ ($\chi_{\text{eff}}^{(e)} = -d \cos \beta_s \sin \beta_p$) квазипродольные и квазипоперечные поляритоны; случай $L=e, S=e$ имеет более сложную зависимость $\chi_{\text{eff}}^{(e)}(\Theta)$.

На рис. 2 показан спектр рассеяния на поляритонах верхних ветвей кристалла LiIO_3 при различных значениях анизотропии (α_L) в интервале малых углов Θ . Из-за малой интенсивности e -«эллипса» (по сравнению с интенсивностью o -«эллипса», $d \ll c$) при $\mathbf{k}_S^{(e)}$ в плоскости (\mathbf{k}_L, z) спектральная ширина щели спектрографа (цейссовский трехпризменный спектрограф, $f_{\text{кам.}} = 27 \text{ см}$, $f_{\text{колл.}} = 30 \text{ см} - 15 \text{ см}^{-1}$, дисперсия 42 \AA/мм) была выбрана таким образом, чтобы $\mathbf{k}_S^{(o,e)}$ рассеивался в плоскости, наклоненной на $\Theta_{\text{мин.}} = 0.6^\circ$ относительно плоскости (\mathbf{k}_L, z) .³ Угол между направлением параллельных полированных плоскостей просвечиваемого кристалла LiIO_3 (длина 12 мм) и оптической осью z составлял 23° . Луч аргонового лазера $\lambda_L = 4880 \text{ \AA}$ ослаблялся фильтром Schott GG14, рассеянный свет фокусировался линзой $f = 6.7 \text{ см}$ на щель. О трех резонансных расщеплениях Ферми ($1530 \div 1640 \text{ см}^{-1}$, перекрытых линией плазмы $\lambda = 5286 \text{ \AA}$) будет сообщено в следующей работе. В этой работе свет не пропускаться че-

³ Линия пересечения рассеивающей плоскости и плоскости (\mathbf{k}_L, z) имеет направление $\mathbf{e}_L^{(e)}$.

рез поляризатор, поэтому в спектре рис. 2 для варианта $L=e, S=e$ проявляется сильная несимметричная поляритонная (e) линия, которая относится к колебанию 795 см^{-1} нижней ветви и интенсивность которой уменьшается с ростом Θ .

Нами было исследовано квазипродольное поляритонное рассеяние при частотах $817 \div 848 \text{ см}^{-1}$ под углом $\alpha_L = 90^\circ$; описанный выше необычный

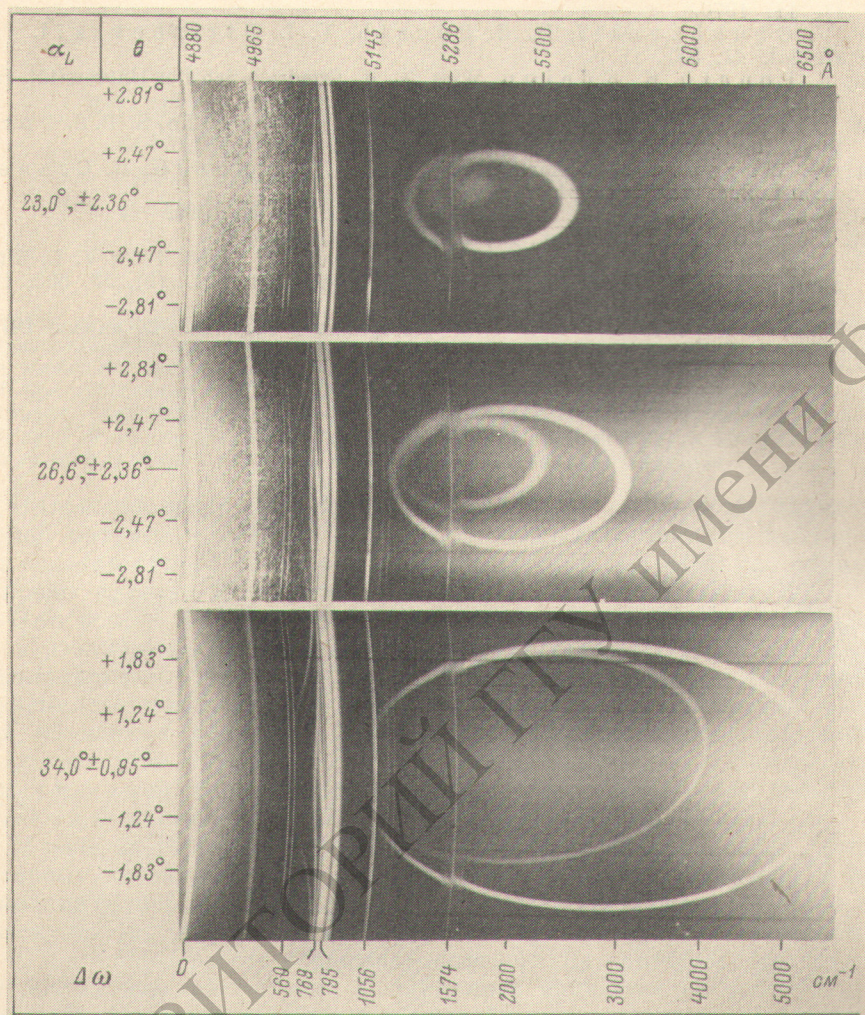


Рис. 2. Спектры СКР на поляритонах кристалла LiIO_3 при различных величинах анизотропии $a(\alpha_L)$, т. е. разных направлениях волнового вектора лазера.

частотный ход $\omega_p(\Theta)$ (и в соответствии с этим, $\omega_{L0}^\perp > \omega_{L0}^\parallel$) подтверждается экспериментом; интенсивность роста вдоль e -ветви колебания $\omega_p = 795 \text{ см}^{-1}$ с ростом угла Θ . Ожидаемые на основании данных работы [4] и описанные нами зависимости интенсивности поляритонных e -ветвей при $\omega_p > 460 \text{ см}^{-1}$ также согласуются с экспериментом и для всех других вариантов поляризации лазерной и стоксовой волн. Пересечения «эллипсов» e - и o -типов в экспериментах (при $\alpha_L = 46.5^\circ$) не наблюдалось, потому что в соответствующем диапазоне частот ($848 \text{ см}^{-1} < \omega_2 < 1050 \text{ см}^{-1}$) компоненты тензора c, d из-за близости частоты $\tilde{\omega}_p \approx 1020 \text{ см}^{-1}$ (взаимное уничтожение

электронного и электронно-ионного вклада в восприимчивость) становятся очень малыми, и «эллипсы рассеяния» исчезают.

Авторы благодарят Р. Кюмштедта из Секции физики университета г. Йены за предоставление кристалла LiJO_3 .

Литература

- [1] Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников. Письма в ЖЭТФ, *11*, 11, 1970.
- [2] V. V. Obukhovskii, H. E. Ponath, V. L. Strizhevskii. *Phys. Stat. Sol.* *41*, 837, 1970.
- [3] H. E. Ponath, K. Kneipp. *Wiss. Z. d. Friedrich-Schiller-Universität Jena*, 1973.
- [4] W. Otaguro, E. Wiener-Avnear, C. A. Arguello, S. P. S. Porto. *Phys. Rev.*, *B4*, 4542, 1971.
- [5] A. W. Warner, J. G. Bergmann, D. A. Pinnow, G. R. Crane. *J. Acoust. Soc. Am.*, *47*, 791, 1970.
- [6] G. Nath, S. Haussühl. *Appl. Phys. Lett.* *14*, 154, 1969.
- [7] R. Loudon. *Adv. in Phys.*, *13*, 423, 1964; *14*, 621, 1965.
- [8] C. H. Henry, C. G. B. Garrett. *Phys. Rev.*, *171*, 1058, 1968; V. L. Strizhevskii, V. V. Obukhovskii. *Phys. Stat. Sol.*, (b), *53*, 603, 1972.

ГДР, Йена, Университет
им. Фридриха Шиллера

Поступило в Редакцию 24 апреля 1973 г.