

УДК 535.375

ЗАПРЕЩЕННОЕ РЕЗОНАНСНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ НА LO ФОНОНАХ

Л. Е. Семенова, К. А. Прохоров

Представлен анализ механизмов резонансного комбинационного рассеяния света на LO фононах с участием экситонов.

Резонансное комбинационное рассеяние (РКР) света на продольных оптических (LO) фононах с участием экситонов уже давно привлекает внимание исследователей [1, 2]. Наибольший интерес представляет наблюдение в спектрах РКР запрещенной линии рассеяния на LO фононах, которая может быть достаточно интенсивной в условиях экситонного резонанса. Появление этой линии объяснялось механизмом запрещенного фрелиховского рассеяния, который соответствует второму члену в разложении матричного элемента экситон-решеточного взаимодействия по волновому вектору фонона. В этом случае сечение рассеяния должно зависеть от волнового вектора, переданного фононной системе, как $|\mathbf{q}_L - \mathbf{q}_S|^2$, где \mathbf{q}_L и \mathbf{q}_S – волновые вектора возбуждающего излучения и рассеянного света [2]. Запрещенное резонансное комбинационное рассеяние на LO фононах в кристалле *CdS* привлекло наше внимание тем, что экспериментально полученную частотную зависимость сечений РКР при различных геометриях рассеяния в работе [3] нельзя объяснить в рамках механизма запрещенного фрелиховского взаимодействия. Интенсивность линии рассеяния в направлении "вперед" всего лишь в два раза меньше, чем в направлении "назад" [3, 4]. Кроме того, в работе [3] было найдено, что в сечение рассеяния дают вклад две функции: зависящая и независящая от волнового вектора фонона. Мы предположили, что в процесс РКР дают вклад и другие механизмы рассеяния. Поэтому мы рассмотрели матричные элементы экситон-фотонного и фрелиховского экситон-решеточного взаимодействия.

Матричный элемент, описывающий переход электронной системы из основного в экситонное состояние при поглощении фотона возбуждающего излучения, имеет вид [5]

$$\langle a | \hat{H}_{ER} | i \rangle = \frac{e}{mn_L} \sqrt{\frac{2\pi\hbar N_L}{\omega_L}} (2\pi)^{3/2} \epsilon_\alpha^L \delta(\mathbf{K} - \mathbf{q}_L) \times$$

$$\times \{ \pi_{cv}^\alpha - M_{cv}^{\alpha'\alpha} \hat{p}_{\alpha'} \} \chi_{cv}^\lambda(\mathbf{r})^* |_{r=0}, \quad (1)$$

где e и m – заряд и масса электрона; ω_L , $\hat{\epsilon}^L$ и N_L – частота, поляризация и плотность фотонов возбуждающего излучения; n_L – коэффициент преломления; π_{cv} – междузонный матричный элемент оператора импульса; $\hat{p}_{\alpha'} = -i\hbar\partial/\partial r_{\alpha'}$; $\chi_{cv}^\lambda(\mathbf{r})$ – водородная волновая функция, \mathbf{K} – волновой вектор экситона, а λ обозначает набор квантовых чисел, характеризующих относительное электронно-дырочное движение. Индексы L и S относятся к падающему и рассеянному свету, соответственно. Параметр $M_{cv}^{\alpha'\alpha}$ определяется как [5]

$$M_{cv}^{\alpha'\alpha} = \frac{1}{m} \sum_n' \left[\frac{\pi_{cn}^{\alpha'} \pi_{nv}^\alpha}{E_c - E_n} + \frac{\pi_{cn}^\alpha \pi_{nv}^{\alpha'}}{E_v - E_n} \right]. \quad (2)$$

Первое слагаемое в выражении (1) описывает разрешенные дипольные переходы в s -экситонные состояния, а второе – дипольно-запрещенные переходы в p -экситонные состояния [5]. Заметим, что сила осциллятора перехода в p -экситонное состояние значительно меньше, чем в s -экситонное, но часто не является пренебрежимой величиной. Матричный элемент фрелиховского экситон-решеточного взаимодействия можно записать в виде [2]

$$\langle n_p + 1; \chi_{c'v'}^{\lambda'} | \hat{H}_{EL}^F | n_p; \chi_{cv}^\lambda \rangle = \sqrt{\frac{2\pi\hbar\omega_p e^2}{V} \left(\frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)} (n_p + 1)^{1/2} \times \\ \times \delta(\mathbf{K}' + \mathbf{q}_p - \mathbf{K}) [F_{inter} + F_{intra}], \quad (3)$$

$$F_{inter} = [\delta_{vv'} \hat{\mathbf{q}} \mathbf{r}_{c'c} - \delta_{cc'} \hat{\mathbf{q}} \mathbf{r}_{vv'}] \langle \chi_{c'v'}^{\lambda'} | \chi_{cv}^\lambda \rangle, \quad (4)$$

$$F_{intra} = \langle \chi_{c'v'}^{\lambda'} | i\mathbf{q}_p^{-1} (e^{-i\alpha_e \mathbf{q}_p \mathbf{r}} - e^{i\alpha_h \mathbf{q}_p \mathbf{r}}) | \chi_{cv}^\lambda \rangle, \quad (5)$$

где $\alpha_{e(h)} = m_{h(e)}^*/(m_h^* + m_e^*)$; m_e^* и m_h^* – эффективные массы электрона и дырки; ϵ_∞ и ϵ_0 – высокочастотная и статическая диэлектрические проницаемости; ω_p и \mathbf{q}_p – частота и волновой вектор решеточного колебания; V – объем кристалла; $\hat{\mathbf{q}}$ – единичный вектор в направлении \mathbf{q}_p . Как видно из выражения (3), фрелиховское взаимодействие может приводить как к междузонным переходам (F_{inter}), так и к внутризонным (F_{intra}). Учитывая матричные элементы (1) – (5), мы рассмотрели три возможных механизма рассеяния: F_{ss} , F_{sp} и F_{int} . F_{ss} и F_{sp} описывают процесс рассеяния в рамках двухзонной модели. F_{ss} описывает запрещенное фрелиховское взаимодействие, которое связывает s -экситонные состояния одной серии. F_{sp} включает дипольно-запрещенные переходы. При этом фрелиховское взаимодействие связывает экситонные состояния различной четности, т.е. s - и p -экситоны. В этом случае матричный элемент экситон-решеточного взаимодействия не

зависит от величины фоновонного волнового вектора и его можно аппроксимировать в виде $F_{intra} \approx \langle \chi_{cv}^{\lambda'} | \hat{\mathbf{q}} \mathbf{r} | \chi_{cv}^{\lambda} \rangle$. F_{int} описывает процесс рассеяния, учитывающий междузонные переходы при излучении фонона.

Таким образом, сечение резонансного комбинационного рассеяния можно записать в виде

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{e^4(n_p + 1)n_s\omega_s V}{m^4 c^4 n_L \omega_L} \left[2\pi \hbar \omega_p e^2 \left(\frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right) \right] |\hat{\epsilon}_\alpha^L \hat{\epsilon}_\beta^S \{F_{ss} + F_{sp} + F_{int}\}|^2. \quad (6)$$

В условиях приближения частоты возбуждающего излучения к экситонным резонансам вычислить вклады этих механизмов рассеяния можно с применением метода функции Грина [6 – 8]. В результате мы получили

$$F_{ss} = \frac{2i\pi_{cv}\pi_{vc}}{\pi a^2 R^2} \kappa_S^4 \left\{ \sum_n \frac{n^{-3} J_0(n, \kappa_S, q_p a)}{\kappa_L^{-2} - n^{-2} - i\gamma} + \int \left| \frac{k}{1 - e^{-2\pi/k}} \right| \frac{J_0(ik^{-1}, \kappa_S, q_p a)}{\kappa_L^{-2} + k^2 - i\gamma} dk \right\}, \quad (7)$$

$$F_{sp} = -i \frac{\pi_{cv} \hbar M_{cv}}{\pi a^3 R} \left(\frac{A(\kappa_L, \kappa_S)}{E_{cv} - \hbar\omega_S} + \frac{A(\kappa_S, \kappa_L)}{E_{cv} - \hbar\omega_L} \right), \quad (8)$$

$$F_{int} = \sum_{c'v'} \frac{\pi_{cv}\pi_{v'c'} [\delta_{vv'} \hat{\mathbf{q}} \mathbf{r}_{c'c'} - \delta_{cc'} \hat{\mathbf{q}} \mathbf{r}_{vv'}]}{\pi a^3 R} \left\{ \frac{B(\kappa_L, \kappa'_S)}{E_{c'v'} - \hbar\omega_S} + \frac{B(\kappa_S, \kappa'_L)}{E_{c'v'} - \hbar\omega_L} \right\}, \quad (9)$$

$$A(\kappa_L, \kappa_S) = \sum_n \frac{n^{-3} J_{11}(n, \kappa_S)}{\kappa_L^{-2} - n^{-2} - i\gamma} + \int \left| \frac{k}{1 - e^{-2\pi/k}} \right| \frac{J_{12}(k, \kappa_S)}{\kappa_L^{-2} + k^2 - i\gamma} dk, \quad (10)$$

$$B(\kappa_L, \kappa'_S) = \sum_n \frac{n^{-3}}{\kappa_L^{-2} - n^{-2} - i\gamma} + \int \left| \frac{k}{1 - e^{-2\pi/k}} \right| \frac{1}{(\kappa_L^{-2} + k^2 - i\gamma)(1 + (\kappa'_S k)^2)} dk, \quad (11)$$

где $\kappa_{L(S)} = \sqrt{R/(E_{cv} - \hbar\omega_{L(S)})}$; $\kappa'_{L(S)} = \sqrt{R/(E_{c'v'} - \hbar\omega_{L(S)})}$; R и a – энергия связи и борковский радиус экситона; E_{cv} – ширина запрещенной зоны; $\gamma = \Gamma/R$; Γ – уширение уровня. $J_{11}(n, \kappa)$ и $J_{12}(k, \kappa)$ определены в работе [7]. Здесь

$$J_0(n, \kappa_S, Q) = \frac{1}{Q} \left[\frac{I_0(\alpha_e Q, n, \kappa_S)}{\alpha_e Q} - \frac{I_0(\alpha_h Q, n, \kappa_S)}{\alpha_h Q} \right], \quad (12)$$

где [8]

$$I_0(Q, n, \kappa) = \frac{1}{4\kappa^3} \int \left(\frac{1+t}{t} \right)^\kappa \text{Im} \left\{ \frac{[t + 0.5 - \kappa/2n - i\kappa Q/2]^{n-1}}{[t + 0.5 + \kappa/2n - i\kappa Q/2]^{n+1}} \right\} dt. \quad (13)$$

Нетрудно показать, что при $\kappa_S q_p a \ll 1$ $J_0(n, \kappa_S, q_p a)$ оказывается линейно зависимой от $q_p a$. В то же время F_{int} и F_{sp} не зависят от фоновонного волнового вектора. Следовательно,

сечение рассеяния можно представить как сумму двух функций: $d\sigma/d\Omega \sim \{|F_{ss}|^2 + |F_{sp} + F_{int}|^2\}$, где $|F_{ss}|^2 \approx q_p^2 f(\omega_L)$. В работе [3] было экспериментально обнаружено, что по мере удаления от резонанса зависимость от геометрии рассеяния уменьшается. Как видно из выражений (7)–(9), F_{ss} уменьшается быстрее при удалении от резонанса по сравнению с F_{sp} и F_{int} . Таким образом, предложенная модель качественно описывает наблюдаемую зависимость.

Параметр $i\hbar M_{cv}$ можно оценить как $i\hbar M_{cv} \approx \sum_{c'v'} \pi_{v'c'} [\delta_{vv'} r_{c'c} - \delta_{cc'} r_{vv'}]$. Таким образом, вклады от междузонных (F_{int}) и дипольно-запрещенных (F_{sp}) переходов имеют разные знаки, но при РКР оказывается $|F_{sp}| \gg |F_{int}|$. Однако, вдали от резонанса F_{int} может привести к заметному уменьшению независимой от волнового вектора составляющей в сечении рассеяния.

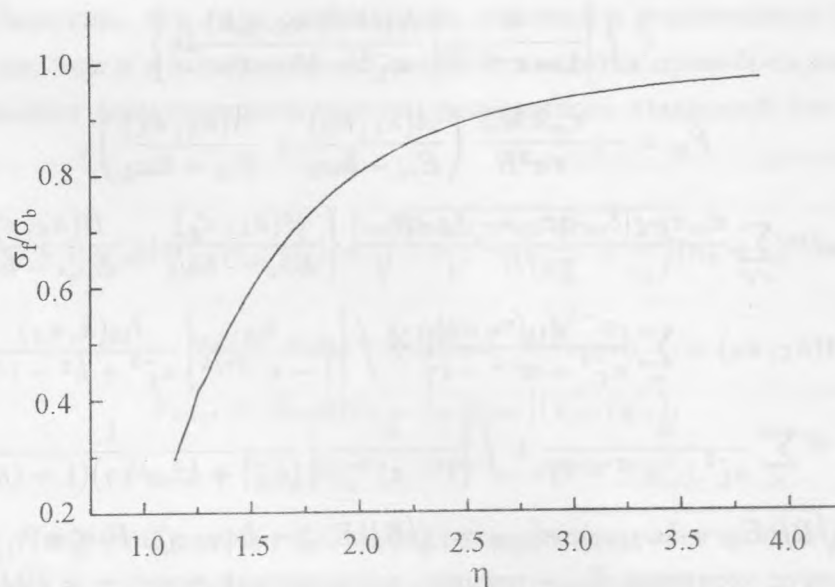


Рис. 1. Зависимость отношений сечений РКР на LO фононах в геометриях рассеяния "вперед" и "назад" от расстояния до резонанса с экситонными состояниями $\eta = (E_{gA} - \hbar\omega_L)/R_A$.

Для геометрии эксперимента, использованной в работе [4], мы вычислили вклад френелевского запрещенного механизма рассеяния F_{ss} . Учитывая, что измеренная в работе [3] интенсивность РКР вблизи нижнего экситонного состояния отличается в два раза при рассеянии "вперед" и "назад", мы оценили параметр дипольно-запрещенных переходов $M_{cv} \approx 0.26$. В расчетах были использованы следующие параметры кристалла CdS: $m_e^* = 0.2m$; $m_h^* = 1.34m$; $\Gamma = 10 \text{ см}^{-1}$; $E_{gA} = 2.612 \text{ эВ}$, $E_{gB} = 2.629 \text{ эВ}$,

$E_{gC} = 2.69$ эВ, $R_A = 0.028$ эВ, $R_B = 0.030$ эВ, $R_C = 0.026$ эВ для A, B и C экситонных серий, соответственно, а также силы осциллятора для 1S экситона: $4\pi f_A = 0.0125$, $4\pi f_B = 0.0075$, $4\pi f_C = 0.005$ [9]. Кроме того мы учли реальное положение нижних экситонных уровней: $E_{1SA} = 2.5537$ эВ, $E_{1SB} = 2.5686$ эВ, $E_{2SA} = 2.5758$ эВ [10]. Вычисленная таким образом зависимость отношения сечений РКР при геометрии рассеяния "вперед" и "назад", σ_f/σ_b , от расстояния до экситонного резонанса представлена на рис. 1. Как видно из рисунка, зависимость сечения РКР от геометрии рассеяния уменьшается по мере удаления от резонанса. Таким образом, с помощью предложенной модели мы качественно объяснили наблюдаемый эффект и оценили параметр дипольно-запрещенных переходов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект N 98-02-17607), Программы "Поддержка ведущих научных школ" (проект N 00-15-96686), ФЦП "Интеграция" (проект N A0080).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Trallero-Giner A., Cantarero A. and Cardona M. Phys. Rev. B, **4**, 4030 (1989).
- [2] Martin R. M. Phys. Rev. B, **4**, 3676 (1971).
- [3] Ключихин А. А., Пермогоров С. А., Резницкий А. Н. ФТТ, **18**, 2239 (1976).
- [4] Ключихин А. А., Пермогоров С. А., Резницкий А. Н. ЖЭТФ, **71**, 2230 (1976).
- [5] Denisov M. M. and Makarov V. P. Phys. Status Solidi (b), **56**, 11 (1973).
- [6] Hostler L. J. Math. Phys., **5**, 591 (1964).
- [7] Semenova L. E. and Prokhorov K. A. Laser Physics, **7**, 263 (1997).
- [8] Semenova L. E. and Prokhorov K. A. Proc. SPIE, **3734**, 207 (1999).
- [9] Jackel J. and Mahr H. Phys. Rev. B, **17**, 3387 (1978).
- [10] Reynolds D. C. "Optical Properties of Solids" Ed. S. Nudelman and S. S. Mitra, Plenum Press: New York, 239 (1969).