

СВЯЗАННОЕ СОСТОЯНИЕ В СПЕКТРАХ КОМБИНАЦИОННОГО  
РАССЕЯНИЯ КРИСТАЛЛА ФОСФИДА ГАЛЛИЯ

В. С. Горелик, О. Г. Золотухин, М. М. Сушинский

УДК 535.361

Исследована угловая зависимость спектров комбинационного рассеяния фосфида галлия при различных температурах и поляризационных геометриях. Установлено существование в колебательном спектре связанного состояния, усиленного в результате его гибридизации с фундаментальным состоянием типа  $F_2$ .

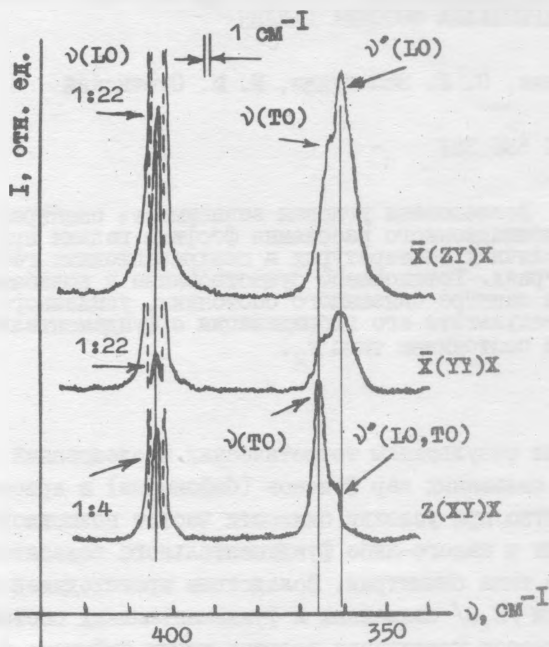
Согласно результатам теоретических исследований /1-3/ возникновение связанных пар фононов (бифононов) в кристаллах наиболее вероятно при условии близости частот возможного связанного состояния и какого-либо фундаментального колебательного состояния того же типа симметрии. Вследствие происходящей при этом гибридизации /2,3/ связанных и фундаментальных состояний в этом случае ожидается увеличение времени жизни бифонона и возрастание интенсивности соответствующего максимума в спектре комбинационного рассеяния (КР).

Достаточно убедительное подтверждение выводов, предсказанных теорией /2,3/, к настоящему времени получено лишь для кристаллов типа галогенидов аммония /4,5/, в которых реализуется гибридизация связанных и фундаментальных колебательных состояний в области внутримолекулярных колебаний иона аммония. В настоящей работе сообщаются данные о проявлении аналогичных эффектов в двухатомном кубическом кристалле фосфида галлия, спектр КР которого изучался ранее рядом авторов /6-8/.

Возбуждение спектра КР в настоящей работе осуществлялось с помощью линии генерации  $\lambda = 5782 \text{ \AA}$  лазера на парах меди, работавшего в режиме большой частоты следования импульсов ( $\sim 10^4 \text{ Гц}$ )

со средней мощностью I-3 Вт.

Регистрация спектров КР осуществлялась на спектрометре ДЭС-12 для рассеяния на  $0^\circ$ ,  $90^\circ$  и  $180^\circ$  при различных температурах кристалла. Исследования проводились на ориентированных монокристаллах с гранями (100), (010) и (001) и линейными размерами  $\sim 1$  см.



Р и с. 1. Спектры КР в фосфиде галлия при трех поляризационных геометриях в области фундаментального оптического колебания,  $T = 80$  К

Спектрограммы КР, полученные для  $T = 80$  К, приводятся на рис. 1. Нижний спектр здесь соответствует рассеянию на  $90^\circ$  с поляризационной геометрией  $Z(XY)X$ , при которой разрешенными являются как поперечные (TO), так и продольные (LO) оптические колебания, классифицируемые в данном случае представлением  $\Gamma_2$  точечной группы  $T_d(43m)$  симметрии кристалла. В соответствии с правилами отбора на этом спектре имеются два интенсивных максимума  $\nu(TO) = 367$   $\text{см}^{-1}$  и  $\nu(LO) = 404$   $\text{см}^{-1}$ . Кроме того, здесь обнаруживается слабо выраженный максимум  $\nu' = 362$   $\text{см}^{-1}$ , непосред-

венно прилегающий к интенсивному пику  $\nu(TO)$  со стороны низких частот. Наличие дополнительного максимума приводит к асимметрии контура соответствующей линии КР, проявляющейся также при комнатной температуре /6,7/.

Два других спектра рис. I соответствуют рассеянию назад. При этом для верхнего спектра на этом рисунке в соответствии с видом тензора  $KR^{(2)}$  должны проявляться лишь продольные (LO) колебания, а для геометрии  $\bar{X}(Y\bar{Y})X$  (средний спектр) колебания типа  $F_2$  (как продольные, так и поперечные) запрещены правилами отбора для процессов КР.

В согласии с правилами отбора максимум  $\nu(TO)$  на верхнем спектре рис. I является сильно ослабленным. В то же время максимум  $\nu'$  на этом спектре становится хорошо выраженным. Его интенсивность существенно превышает интенсивность максимума  $\nu(TO)$ , а ширина составляет  $\sim 5 \text{ см}^{-1}$ , что несколько больше ширины максимума  $\nu(TO)$  для нижнего спектра рис. I.

Для "запрещенной" геометрии  $\bar{X}(Y\bar{Y})X$  все наблюдаемые максимумы, в частности  $\nu(TO)$  и  $\nu'$ , характеризуются малой интенсивностью.

В соответствии с четко выраженной зависимостью максимума  $\nu'$  от типа поляризационной геометрии и в связи с большой интенсивностью этого максимума в спектре КР естественно полагать, что этот максимум обусловлен проявлением не двухчастичного, а одночастичного состояния. Это одночастичное колебательное состояние характеризуется определенной поляризацией (поперечной или продольной) и определенным типом симметрии  $F_2$ . Таким образом, обсуждаемое одночастичное состояние характеризуется такими же свойствами симметрии, что и фундаментальное колебательное состояние  $\nu(TO, LO)$ , однако, вследствие малости силы осциллятора  $T_0$ , LO-расщепление для максимума  $\nu'$  практически не проявляется.

Описанные особенности максимума  $\nu'(TO, LO)$  являются характерными свойствами связанного дипольно-активного состояния /2/ и аналогичны свойствам дипольно-активного колебательного бивекситона, наблюдавшегося ранее /4,5/ в кристаллах галогенидов аммония.

---

<sup>2)</sup> Это связано с тем, что YZ-компонента тензора КР в данном случае соответствует X-поляризации фонона, возникающего в процессе рассеяния.

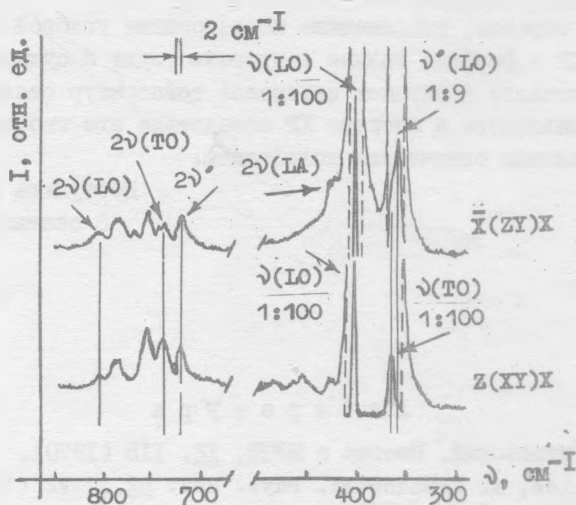
Проявление такого состояния в данном случае можно объяснить в соответствии с теорией /1,2/ как следствие Ферми-резонанса двухфононного состояния с фундаментальным колебательным состоянием  $\nu(\text{TO})$ . Действительно, как показывает анализ дисперсионных ветвей /8/ в GaP, удвоенное значение частоты акустического ( $1A$ ) фонона, соответствующего точке L зоны Бриллюэна, близко к частотам  $\nu(\text{TO}, 1O)$  фундаментального оптического колебания. Кроме того, как показывает теоретико-групповой анализ /9/, представление, классифицирующее обертоны  $21A$ , содержит представление  $F_2$ , классифицирующее фундаментальное колебание. Таким образом, необходимые условия Ферми-резонанса оказываются выполненными.

На рис. 2 приведены спектры КР в области обертонов и составных тонов кристалла GaP. Как видно из этого рисунка, в области частот  $\nu(1O)$  обнаруживается слабый максимум, который можно отнести за счет диссоциированного состояния  $2\nu(1A) = 429 \text{ см}^{-1}$ . Таким образом, энергия связи в данном случае составляет  $2\nu(1A) - \nu^* = 67 \text{ см}^{-1}$ , т.е. оказывается довольно большой. В наблюдаемом спектре КР (см. рис. 2) присутствует также ряд максимумов, соответствующих  $2\nu(\text{TO})$ ,  $2\nu(1O)$  и другим двухфононным переходам, однако их интенсивность в спектре КР существенно меньше интенсивности рассеяния на бифононе  $\nu^*(1O)$  (см. верхний спектр рис. 2).

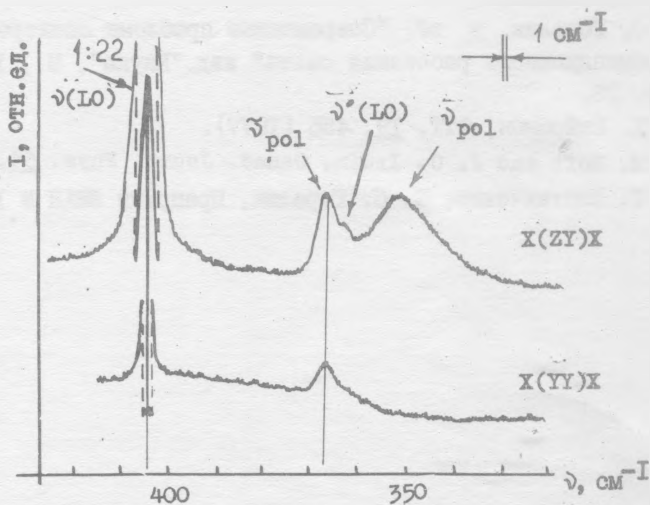
На рис. 3 приводятся спектрограммы КР в области частот  $\nu(\text{TO}, 1O)$  для рассеяния вперед. Здесь на верхнем спектре обнаруживаются, кроме интенсивного максимума на частоте  $\nu(1O)$ , два хорошо выраженных максимума  $\tilde{\nu}_{\text{pol}}$  и  $\nu_{\text{pol}}$ , а также слабый максимум  $\nu^*(1O)$  между ними.

Максимум  $\nu_{\text{pol}}$  обусловлен рассеянием света на нижней поляритонной ветви. Максимум  $\tilde{\nu}_{\text{pol}}$  по частоте практически совпадает с максимумом  $\nu(\text{TO})$  (см. рис. 1). Его существование в спектре КР можно объяснить как проявление дополнительного поляритонного участка, возникшего вследствие образования бифонона. Нижний спектр рис. 3 характеризует величину паразитных сигналов рассеянного света, возникающих за счет нарушения поляризационной геометрии.

Как показали аналогичные эксперименты при более высоких температурах, связанное состояние характеризуется сильным температурным коэффициентом затухания - при  $T = 400 \text{ K}$  максимум, ответственный за связанное состояние, сильно размывается, что



Р и с. 2. Спектры КР в фосфиде галлия в области обертонов и составных тонов для рассеяния на  $90^\circ$  и  $180^\circ$ ,  $T = 80 \text{ K}$ .



Р и с. 3. Спектры КР в фосфиде галлия для рассеяния вперед при  $T = 80 \text{ K}$

соответствует "разрушенно" бифона.

Таким образом, выполненные исследования угловой зависимости спектров КР в фосфиде галлия свидетельствуют о существовании в этом кристалле в широком интервале температур связанного состояния, усиленного в спектре КР вследствие его гибридизации с фундаментальным оптическим колебанием.

Поступила в редакцию  
3 сентября 1979 г.

#### Л и т е р а т у р а

1. Л. П. Пятаевский, Письма в ЖЭТФ, 12, 118 (1970).
2. J. Ruvalds, A. Zawadowski, Phys. Rev. B2, 1172 (1970).
3. В. М. Агранович, ФТТ, 12, 562 (1970).
4. В. С. Горелик, Г. Г. Митин, М. М. Сушинский, ФТТ, 16, 1562 (1974).
5. В. С. Горелик, О. П. Максимов, Г. Г. Митин, Препринт ФИАН № 257, 1978 г.
6. В. С. Горелик, в сб. "Современные проблемы спектроскопии комбинационного рассеяния света" изд. "Наука", М., 1978 г., стр. 28.
7. Б. Х. Байрамов, ФТТ, 19, 455 (1977).
8. R. M. Hoft and J. C. Irwin, Canad. Journ. Phys. 51, 63 (1973).
9. В. Г. Плотниченко, В. С. Горелик, Препринт ФИАН № 109, 1977 г.