Изв. АН Армянской ССР, Физика, 14, 100—106 (1979)

К ТЕОРИИ ДВУХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В ПРОСТРАНСТВЕННО-ОГРАНИЧЕННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ СРЕДАХ—ПЛЕНКАХ*

К. Г. АГАРОНЯН, А. М. КАЗАРЯН

Исследован вопрос двухфотонного поглощения в тонких пленках с учетом экситонных эффектов. Дано общее описание двухфотонного поглощения, вычислен коэффициент поглощения как в случае «разрешенно-разрешенных», так и «разрешенно-запрещенных» переходов. Показано, что учет экситонных эффектов приводит к появлению дискретных линий под дном каждой подзоны размерного квантования, а также к изменению частотной зависимости в области непрерывного спектра.

В последние годы сильно возрос интерес к теоретическому исследованию взаимодействия сильной электромагнитной волны с полупроводниками. В ряде работ [1, 2] было показано, что в резонансном приближении это взаимодействие приводит к существенной перестройке энергетического спектра носителей заряда. При этом характерным является возникновение щели, зависящей от угла между направлением импульса электрона и вектором напряженности электрического поля волны. Не менее интересные проявления взаимодействия сильной волны с полупроводником оказываются связанными с многофотонными процессами [3].

Особый интерес представляет исследование двухфотонного межзонного поглощения в полупроводниках как в связи с получением богатой информации об энергетической структуре вещества**, так и в связи с общей проблемой получения инверсионной населенности для генерации когерентного излучения (полный обзор по указанным вопросам содержится в [3]).

Теоретический расчет коэффициента двухфотонного поглощения для массивного полупроводника проведен во многих работах [4] во втором порядке теории возмущений как с учетом экситонных эффектов [5], так и при наличии квантующего магнитного поля [6]. Вместе с тем в последнее время возрастает интерес к пространственно-ограниченным полупроводниковым средам — пленкам и проволокам, который обусловлен как все более широким их применением в микроэлектронике, так и обнаружением в них новых физических явлений, отсутствовавших в массивных образцах [7].

В связи с этим возникает необходимость в рассмотрении двухфотонного межзонного поглощения света в вышеуказанных средах. Этому вопросу и посвящена настоящая работа, причем проведенное исследование отличается от решения аналогичной задачи в работе [8] в двух аспектах. Во-первых, в указанной работе не учтены экситонные эффекты, которые,

---

* Результаты для размерно-квантованной проволоки будут опубликованы позже.

** Иногда, например, в дипольном приближении двухфотонные и однофотонные спектры несут разную информацию.

как известно, существенно влияют на ход спектральной кривой собственного поглощения. Во-вторых, в этой работе ограничиваются рассмотрением двухзонной модели, не учитывая в качестве промежуточных состояний вклада других зон. В связи с более общей чем в [8] постановкой задачи гамильтониан взаимодействия выбран нами в виде $V = \mathbf{dE}$, что, как показано в [3], дает возможность более корректного учета вклада вышестоящих зон.

1. Общие соотношения для двухфотонных переходов при наличии квантового размерного эффекта

Как известно (см., например, [3]), двухфотонные переходы выражаются через мнимую часть тензора кросс-восприимчивости четвертого ранга, имеющего вид

$$\chi''_{aabb}(\omega_a \omega_b) = \frac{\pi}{\hbar^3 V} |M_{21}|^2 \delta(\omega_a + \omega_b - \omega_{21}(k)), \quad (1)$$

где составной матричный элемент M_{21} описывает переход системы из состояния 1 в состояние 2 под действием двух монохроматических полей с частотами ω_a и ω_b, $\omega_{21} = \dfrac{E_2 - E_1}{\hbar}$.

Соответствующий коэффициент поглощения будет выражаться через $\chi''_{aabb}(\omega_a \omega_b)$ следующим образом:

$$\alpha(\omega_a) = \frac{8\pi^2}{c^2} \omega_a \omega_b \hbar F_b \chi''_{aabb}(\omega_a \omega_b) \left\{ \frac{1}{\varepsilon_{aa}(\omega_a)\, \varepsilon_{bb}(\omega_b)} \right\}^{1/2}, \quad (2)$$

где F_i — поток квантов, $\varepsilon_{ii}(\omega_i)$ — диагональная компонента тензора диэлектрической проницаемости в направлении $e_i (i = a, b)$, c—скорость света. При конкретизации составного матричного элемента для нашего случая, а именно, для пространственно-ограниченной полупроводниковой пленки, следуя работе [3], для гамильтониана взаимодействия системы с полем будем пользоваться выражением вида $V = \mathbf{dE}$ ($\mathbf{d}$— дипольный момент системы, $\mathbf{E}$ — напряженность внешнего поля). Для получения явного вида составного матричного элемента необходимо учитывать, что ограничение движения квазичастиц (в одном направлении) приводит к размерному квантованию квазиимпульса, приводящему, в свою очередь, к изменению энергетического спектра и волновых функций. Для идеальной модели пленки (носители заряда находятся в бесконечно-глубокой одномерной потенциальной яме) волновые функции и энергетический спектр имеют вид

$$\Psi_{jk_j}(\rho, \varphi, z) = \frac{2^{1/2}}{L^{1/2}} \Phi_j(\rho, \varphi) \sin \frac{\pi \nu z}{L},$$

$$\Phi_j(\rho, \varphi) = s^{-1/2} U_{jk_j}(\rho) \exp ik\rho, \quad (3)$$

ՀԱՅԿ.ՍՍՌ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ... ՖՈՒՆԴԱՄԵՆՏԱԼ ԳՐԱԴԱՐԱՆ

$$E_v = -\frac{\hbar^2 k_v^2}{2m_v^{\parallel}} - \frac{\hbar^2\pi^2}{2m_v^{\perp}}\left(\frac{\nu}{L}\right)^2 - E_g,$$

$$E_c = \frac{\hbar^2 k_c^2}{2m_c^{\parallel}} + \frac{\hbar^2\pi^2}{2m_c^{\perp}}\left(\frac{\nu''}{L}\right)^2,$$

где k_j — двумерный волновой вектор электрона в плоскости пленки, квантовое число $\nu(\nu'') = 1, 2, \cdots$ заменяет проекцию k_z, $U_{jk_j}(\rho)$ — двумерная функция Блоха в зоне $j(v, c)$, L — толщина пленки, E_g — ширина запрещенной зоны.

С помощью формул (3), а также из вида используемого нами гамильтониана взаимодействия составной матричный элемент можно представить следующим образом:

$$M_{21} = e^2 \sum_l \frac{\Omega_{2l}^a \Omega_{l1}^b}{\omega_{l1} - \omega_a} + \frac{\Omega_{2l}^b \Omega_{l1}^a}{\omega_{l1} - \omega_b} + \frac{1}{\omega_{21} - \omega_a}\frac{\partial \Omega_{21}}{\partial k_b} + \frac{1}{\omega_{21} - \omega_b}\frac{\partial \Omega_{21}^b}{\partial k_a} -$$
$$- \frac{\Omega_{21}^a}{(\omega_{21} - \omega_b)^2}\frac{\partial \omega_{21}}{\partial k_b} - \frac{\Omega_{21}^b}{(\omega_{21} - \omega_a)^2}\frac{\partial \omega_{21}}{\partial k_a}, \tag{4}$$

где Ω_{21}^i — матричный элемент проекции оператора квазиимпульса на направление $e_i (i = a, b)$, который при наличии КРЭ распадается на два независимых множителя, характеризующих соответственно межзонные продольные переходы электрона и одновременно поперечные переходы на ближайший поперечный уровень. Запишем

$$\Omega_{21}^a(k) = \Omega_{21}^a(k_\rho, \varphi)\, \Omega_{\nu\nu''}^a(k_z), \tag{5}$$

где

$$\Omega_{21}^a(k_\rho, \varphi) = \left(-\frac{i\hbar}{m_{21}\omega_{21}}\right)\iint \varphi_2^*(\rho, \varphi)\,(\xi\nabla)_{\rho\varphi}\, \varphi_1(\rho, \varphi)\, \rho d\rho d\varphi,$$
$$\Omega_{\nu\nu''}(k_z) = \frac{1}{L}\int \sin\left(\frac{\pi\nu'' z}{L}\right)(\hat{e}_a \hat{e}_b)\sin\left(\frac{\pi\nu z}{L}\right) dz. \tag{6}$$

Не прибегая к конкретным вычислениям, уже можно сделать некоторые выводы относительно частотной зависимости коэффициента двухфотонного поглощения, анализируя выражения (4)—(6). Нетрудно убедиться, что первые четыре слагаемых в составном матричном элементе описывают двухфотонные процессы с участием промежуточных зон, а именно: $(v, \nu \to c', \nu' \to c, \nu'')$, тогда как последние два выражаются только через характеристики зоны проводимости и валентной зоны, описывая переходы типа $(v, \nu \to c, \nu' \to c, \nu'')$. Рассмотрением последних переходов и ограничивались авторы работы [8], что, по-видимому, не всегда правомерно. Действительно, например, для «разрешенно-разрешенных» переходов основной вклад в $\alpha(\omega_a)$ вблизи края поглощения дают процессы первого типа, которые приводят к известной ступенчатой зависимости от частот падающего света (коэффициент поглощения следует ходу комбинированной плотности состояний в пленке).

2. Коэффициент двухфотонного поглощения с учетом экситонных эффектов

Будем рассматривать слаболегированный полупроводник с большой диэлектрической проницаемостью и с малыми эффективными массами носителей заряда. В предположении, что радиус экситона в массивном образце больше толщины пленки ($a_{эк} > L$), соответствующее уравнение Ванье распадается на два более простых уравнения [9], одно из которых характеризует движение носителей в плоскости пленки с двумерным кулоновским потенциалом, а другое — размерно-квантованное движение по нормали к плоскости пленки. Решением первого уравнения определяется множитель, учитывающий экситонные эффекты [9]. Как и в случае массивного образца, в двухфотонном приближении следует различать «разрешенно-разрешенные» и «разрешенно-запрещенные» переходы [10].

«Разрешенно-разрешенные» переходы.

«Разрешенно-разрешенные» переходы — это переходы в s-состояние. Соответствующий матричный элемент при этом будет иметь вид

$$M_{21} = e^2 U_{ns}(0)\left\{\frac{1}{\omega_a}\frac{\partial\Omega_{21}^b}{\partial k_a} + \frac{1}{\omega_b}\frac{\partial\Omega_{21}^a}{\partial k_b} + \sum_j\left(\frac{\Omega_{2j}^a\Omega_{j1}^b}{\omega_{j1}-\omega_b} + \frac{\Omega_{2j}^b\Omega_{j1}^a}{\omega_{j1}-\omega_a}\right)\right\}, \quad (7)$$

где $U_{ns}(0)$ — водородоподобная функция s-типа для двумерной кулоновской задачи.

Для функции $U_{ns}(0)$, учитывающей экситонные эффекты, соответственно имеем:

а) в случае дискретного спектра

$$|U_{ns}(0)|^2 = \frac{2v_0}{\pi a_{эк}^2 L\left(n+\frac{1}{2}\right)^3}; \quad (8)$$

б) в случае непрерывного спектра

$$|U_{ns}(0)|^2 = \frac{2}{\pi}\frac{\exp(\pi D)}{\operatorname{ch}\pi D}, \quad (9)$$

где $D = (\omega_a + \omega_b - \omega_g - E_{vv'}\hbar^{-1})^{-1/2}G^{1/2}\hbar^{-1/2}$, $G = \dfrac{m_{21}e^4}{2\hbar^2\varepsilon^2}$,

ε — диэлектрическая проницаемость среды.

Подставляя (7) и (2) в (1), с учетом (8) и (9) для коэффициента двухфотонного поглощения в пленках окончательно получаем:

а) для дискретного спектра

$$\alpha(\omega_a) = \frac{2^4\pi^2 e^4 F_b\,\omega_a\omega_b}{\hbar^2 a_{эк}^2 L c^2}\left[\frac{1}{\varepsilon_{aa}(\omega_a)\,\varepsilon_{bb}(\omega_b)}\right]^{1/2}\times$$

$$\times\left|\sum_{j\neq1,2}\frac{\Omega_{2j}^a\Omega_{j1}^b}{\omega_{j1}-\omega_a} + \frac{\Omega_{2j}^b\Omega_{j1}^a}{\omega_{j1}-\omega_b} + \frac{1}{\omega_a}\frac{\partial\Omega_{21}^b}{\partial k_a} + \frac{1}{\omega_b}\frac{\partial\Omega_{21}^a}{\partial k_b}\right|_{k=0}^2\times \quad (10)$$

$$\times\sum_n\frac{\delta(\omega_a+\omega_b-\omega_g+G\hbar^{-1}n^{-2}-E_{vv'}\hbar^{-1})}{(n+1/2)^3};$$

б) для непрерывного спектра

$$\alpha(\omega_a)=\frac{4\,e^4 m_{21} F_b\ \omega_a\ \omega_b}{\hbar^3 L c^2}\left[\frac{1}{\varepsilon_{aa}(\omega_a)\,\varepsilon_{bb}(\omega_b)}\right]^{1/2}\times$$

$$\times\left|\sum_j \frac{\Omega_{2j}^a\Omega_{j1}^b}{\omega_{j1}-\omega_a}+\frac{\Omega_{2j}^b\Omega_{j1}^a}{\omega_{j1}-\omega_b}+\frac{1}{\omega_a}\frac{\partial\Omega_{21}^b}{\partial k_a}+\frac{1}{\omega_b}\frac{\partial\Omega_{21}^a}{\partial k_b}\right|^2\frac{\exp(\pi D)}{\operatorname{ch}\pi D}\times \tag{11}$$

$$\times\,\theta\left(\omega_a+\omega_b-\omega_g-E_{\nu\nu'}\hbar^{-1}\right).$$

При этом фигурирующий в полученных формулах (10) и (11) матричный элемент Ω_{21} определяется выражениями (5) и (6), а явный вид матричных элементов Ω_{1j} и Ω_{2j} зависит от конкретной энергетической структуры полупроводника.

«Разрешенно-запрещенные» переходы.

В этом случае рассматриваются переходы в конечное p-состояние. При этом, когда $\Omega_{21}(0)\sim a_0$ (a_0 — постоянная решетки), можно пользоваться приближением двухзонной модели, в которой составной матричный элемент имеет вид [3]

$$M_{21}=\frac{e^2\hbar}{m_{21}}\left(\frac{\partial U_{np}}{\partial\rho}\right)_{\rho=0}\left[\frac{\Omega_{21}^b}{\omega_a^2}+\frac{\Omega_{21}^a}{\omega_b^2}\right], \tag{12}$$

где $U_{np}(\rho)$ — водородоподобная функция p-типа, ρ — двумерный радиус относительного движения электрона и дырки. Для «разрешенно-запрещенных» переходов экситонный множитель выглядит следующим образом:

$$\left(\frac{\partial}{\partial\rho}U_{np}(\rho)\right)^2_{\rho=0}=\frac{2\,n\,(n+1)}{\pi a_{\text{эк}}^4 L}\,\frac{2v_0}{(n+1/2)^5} \tag{13}$$

— для дискретного спектра энергии,

$$\left(\frac{\partial}{\partial\rho}U_{np}(\rho)\right)^2_{\rho=0}=\left(\frac{1}{4}+D^2\right)\frac{4\pi\exp(\pi D)}{\operatorname{ch}\pi D}\,\frac{2\,m_{12}}{\hbar}\left(\omega_a+\omega_b-\omega_g-E_{\nu\nu'}\hbar^{-1}\right) \tag{14}$$

— для непрерывного спектра энергии.

Подставляя (12)—(14) в (2) и (1), с учетом (6) и (7) для коэффициента двухфотонного поглощения света при наличии КРЭ соответственно имеем:

$$\alpha(\omega_a)=\frac{2^4 e^4\pi^2\hbar^2\omega_a\omega_b}{m_{21}^4 a_{\text{эк}}^4(\omega_a+\omega_b)^2}\,\frac{F_b}{Lc^2}\left[\frac{1}{\varepsilon_{aa}(\omega_a)\,\varepsilon_{bb}(\omega_b)}\right]^{1/2}\times$$

$$\times\,|\Omega_{\nu\nu'}|^2|P_{vc}|^2\left[\omega_a^{-4}+\omega_b^{-4}+\omega_a^{-2}\omega_b^{-2}\cos(\hat{e_a e_b})\right]\times \tag{15}$$

$$\times\sum_n\frac{n(n+1)}{(n+1/2)^5}\,\delta\left(\omega_a+\omega_b-\omega_g-E_{\nu\nu'}\hbar^{-1}+G\hbar^{-1}n^{-2}\right)$$

— в случае дискретного спектра,

$$\alpha(\omega_a) = \frac{2^4 e^4 \pi^2 \omega_a \omega_b}{m_{21}^2 L (\omega_a + \omega_b)^2} \left(\frac{1}{4} + D^2\right) \frac{\exp(\pi D)}{\operatorname{ch} \pi D} \frac{F_b}{c^3} |\Omega_{\nu\nu'}|^2 |P_{vc}|^2 \times \tag{16}$$

$$\times \left[\frac{1}{\varepsilon_{aa}(\omega_a)\varepsilon_{bb}(\omega_b)}\right]^{1/2} [\omega_a^{-4} + \omega_b^{-4} + \omega_a^{-2}\omega_b^{-2} \cos(e_a \hat{e}_b)] (\omega_a + \omega_b - \omega_g - E_{\nu\nu'} \hbar^{-1})$$

— в случае непрерывного спектра.

3. Обсуждение результатов

Случай дискретного спектра.

В этом случае из формул (10) и (15) следует, что учет экситонных эффектов в полупроводниковых пленках приводит к появлению дискретных линий под дном каждой подзоны размерного квантования и, как и в массивных образцах, наблюдается сильная зависимость сил осцилляторов от квантового числа n. Однако интенсивности линий с увеличением n падают медленнее, чем в массивных средах. Так, для $n = 1, 2, 3$ интенсивности, например, «разрешенно-разрешенных» линий относятся друг к другу как 1 : 1/4,6 : 1/12,7, тогда как в массивных средах для этих линий имеем 1 : 1/8 : 1/27. С другой стороны, при больших квантовых числах n, когда экситонные уровни спектра сближаются настолько, что сливаются друг с другом, образуя квазинепрерывный спектр, коэффициент двухфотонного поглощения становится постоянным, как и в однофотонном поглощении. Это обусловлено тем, что интенсивность, приходящаяся на одну линию, с ростом n падает как n^{-3}, тогда как плотность линий $\rho(E)$ растет как n^3.

Случай непрерывного спектра.

Полученные результаты показывают также, что экситонные эффекты качественно влияют на ход спектральной кривой вблизи края фундаментального поглощения, приводя к изменению величины и частотной зависимости $\alpha(\omega_a)$. При этом качественно разные результаты получаются при соизмеримых и сильно различающихся частотах падающих излучений ω_a и ω_b.

1. $\omega_a \sim \omega_b$, т. е. $\omega_a + \omega_b - \omega_g - E_{\nu\nu'} \hbar^{-1} = \Delta\omega \ll \omega_b$.

Из соотношений (11) и (16) видно, что вблизи порога поглощения ($D \to \infty$) для каждой подзоны размерного квантования $\alpha(\omega_a)$ стремится к конечной величине. Вдали от порога ($D \to 0$) экситонные эффекты становятся несущественными, как и для однофотонного поглощения.

2. $\omega_a \gg \omega_b$, т. е. $\omega_a + \omega_b - \omega_g - E_{\nu\nu'} \hbar^{-1} = \Delta\omega \sim \omega_b$.

При этом в формулах (11) и (16) существенными становятся уже члены ω_b^{-1} и при учете экситонных эффектов вблизи края $\alpha(\omega_a)$ не стремится к постоянной. Так, при «разрешенно-разрешенных» переходах имеем $(\omega_a + \omega_b + \omega_g - E_{\nu\nu'} \hbar^{-1})^{-1}$, а при „разрешенно-запрещенных“ переходах — соответственно $(\omega_a + \omega_b - \omega_g - E_{\nu\nu'} \hbar^{-1})^{-1}$.

Авторы выражают благодарность Э. М. Казаряну за предложенную тему и обсуждение результатов.

Ереванский политехнический
институт
Ереванский государственный
университет

Поступила 15.I.1979

ЛИТЕРАТУРА

1. *В. П. Галицкий, С. П. Гореславский, В. Ф. Елесин.* ЖЭТФ, 57, 207 (1969).
2. *В. Ф. Елесин.* ФТТ, 11, 1820 (1969).
3. *В. И. Бредихин, М. Д. Галанин, В. Н. Генкин.* УФН, 110, 3 (1973).
4. *R. Brounstein.* Phys. Rev., 125, 475 (1962).
5. *R. Loudon.* Proc. Phys. Soc., 80, 952 (1962).
6. *R. Girlanda.* Nuovo Cim., B6, 53 (1971).
7. *Б. А. Тавгер, В. Я. Демиховский.* УФН, 96, 61 (1968).
8. *В. Д. Продан, Я. А. Рознерица.* ФТП, 9, 145 (1975).
9. *Э. М. Казарян, Р. Л. Энфиаджян.* ФТП, 5, 2002 (1971).
10. *R. Brounstein, N. Okman.* Phys. Rev., A 134, 499 (1964).

ԵՐԿՖՈՏՈՆԱՅԻՆ ԿԼԱՆՄԱՆ ՄԱՍԻՆ ՍԱՀՄԱՆԱՓԱԿ ԿԻՍԱՀԱՂՈՐԴՉԱՅԻՆ ՄԻՋԱՎԱՅՐԵՐՈՒՄ՝ ԹԱՂԱՆԹՆԵՐՈՒՄ

Կ. Հ. ԱՀԱՐՈՆՅԱՆ, Ա. Մ. ՂԱԶԱՐՅԱՆ

Աշխատանքում հետազոտված է երկֆոտոնային կլանման հարցը բարակ թաղանթներում էքսիտոնային էֆեկտների հաշվառումով։ Տրված է երկֆոտոնային կլանման ընդհանուր նկարագիրը, հաշվված է կլանման գործակիցը ինչպես «թույլատրելի-թույլատրելի», այնպես էլ «թույլատրելի-ոչ թույլատրելի» անցումների դեպքում։ Ցույց է տրված, որ էքսիտոնների հաշվառումը բերում է դիսկրետ գծերի առաջացմանը չափային քվանտացման ամեն մի ենթագոտում և հաճախային կախվածության փոփոխությանը անընդհատ տիրույթում։

ON THE THEORY OF TWO-PHOTON ABSORPTION IN SPATIALLY RESTRICTED SEMICONDUCTOR FILM MEDIA

K. G. AHAROŇYAN, A. M. KAZARYAN

The problem of two-photon absorption in thin films is studied taking account of exciton effects. The general description of two-photon absorption is given and the absorption coefficient both for the "allowed-allowed" and "allowed-forbidden" transitions is calculated. It is shown that the consideration of the exciton effects leads to the appearance of discrete lines below the bottom of each dimension quantization subband and also to the alteration of the frequency dependence in the case of the continuous spectrum.