Известия НАН Армении, Физика, т. 30, №2, с. 52—58 (1995)

УДК 621.315.592

ДВУХФОТОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ В МНОГОЯМНОЙ КВАНТОВОЙ СТРУКТУРЕ

С. К. АВЕТИСЯН, А. О. МЕЛИКЯН, Г. Р. МИНАСЯН

Государственный инженерный университет Армении

(Поступила в редакцию 18 января 1994 г.)

В работе теоретически рассмотрено двухфотонное поглощение в широкобарьерной гетероструктуре $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs x\leqslant 0,35$, с учетом реальной зонной структуры материалов ямы и барьера, а также конечности энергетических разрывов ΔE_c и ΔE_v для потенциала гетероструктуры. Исследованы поляризационные и частотные характеристики коэффициента двухфотонного поглощения. Показано, что при достаточно малых глубинах ям число возможных переходов в ямах резко уменьшается, а некоторые переходы, имеющие место в модели бесконечных барьеров, вообще отсутствуют.

Многофотонная, и в частности, двухфотонная спектроскопия поглощения позволяет уточнить ряд важных параметров многослойных гетероструктур $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs$, в частности, разрывы ΔE_c и ΔE_v на гетерограницах, значения которых, несмотря на множество спектроскопических исследований, еще не определены однозначно.

По проблеме двухфотонного поглощения в квантовых ямах и гетероструктурах опубликовано небольшое число экспериментальных работ [1—5].

Теоретическому исследованию коэффициента двухфотонного межзонного поглощения в полупроводниковых структурах пониженной размерности посвящены работы [6, 7]. В [6] рассмотрено двухфотонное поглощение для квазиодномерных и квазидвумерных многоямных квантовых структур (МКС). Задача решена в приближении эффективной массы в двухзонной изотропной параболической модели полупроводника при пренебрежении экситонными эффектами и расщеплением валентной зоны при переходе от массивного образца к квантовым ямам. В [7] рассмотрено двухфотонное поглощение в двумерной квантовой структуре с учетом нелокальных эффектов. Здесь, как и в [6], рассмотрена простая двухзонная модель в предположении бесконечно глубоких ям.

Реальные квантовые потенциальные ямы в МКС и сверхрешетках (СР) имеют конечную глубину, и приведенные в работах [6, 7] выражения непригодны для количественного анализа энергий квантовых состояний и оптических спектров в вышеотмеченных структурах.

В данной работе теоретически рассмотрено двухфотонное поглощение в широкобарьерной гетероструктуре $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs(x\leqslant 0,35)$ с учетом реальной зонной структуры материалов квантовых ям и конечности энергетических разрывов ΔE_c, ΔE_v. Исследованы поляризационные и частотные зависимости коэффициента двухфотонного поглощения и его зависимость от конкретных параметров гетероструктуры.

Предполагается, что МКС широкобарьерная, т. е. пренебрегаем туннельными переходами носителей между отдельными ямами МКС. Это обусловлено тем, что до сих пор практически все оптические измерения для сверхрешеток типа I [8] (в частности для $GaAs/GaAlAs$) проводились на системах квантовых ям, в которых сверхрешеточные эффекты несущественны.

В МКС коэффициент двухфотонного поглощения определяется соотношением

$$\alpha^{(2)} = \frac{2\hbar\omega W^{(2)}}{I(a+a_B)}, \qquad (1)$$

где $W^{(2)}$—скорость междузонных двухфотонных переходов на единицу площади квантовой ямы; I—интенсивность света, a—ширина квантовой ямы узкозонного материала ($GaAs$); a_B—ширина барьера ($Ga_{1-x}Al_xAs$).

Для вычисления составного матричного элемента $M^{(2)}$ ограничимся учетом линейных по $k_\perp$ членов в разложении, соответствующих разрешено-запрещенным переходам, т. к. для кристаллов типа A_3B_5 разрешено-разрешенные переходы вносят пренебрежимо малый вклад [9, 10].

Рассмотрим переход из вырожденной валентной зоны в зону проводимости ($2\hbar\omega - E_g \ll E_g$, Δ, где E_g—ширина запрещенной зоны $GaAs$, Δ—энергия спин-орбитального расщепления).

Поскольку в массивном полупроводнике A_3B_5 симметрии T_d в рассмотренной области частот хорошо применимо приближение, где учтены зона проводимости и все три ветви валентной зоны, будем работать с четырехзонной моделью полупроводника [10]. Так как энергия размерного квантования $\pi^2\hbar^2/2m_{c,v}a^2$, как правило, намного меньше E_g (рассматриваются не слишком тонкие квантовые слои), то при нахождении $W^{(2)}$ согласно методу огибающей функции [11] можно воспользоваться результатом расчета матрицы $M^{(2)}_{cv}$ для однородных полупроводников указанной симметрии. Произведя в матричном элементе двухфотонного перехода для массивного образца $V^{(2)}(k_x, k_y, k_z)$ замену $k_z \to \hat{k}_z = -i\dfrac{\partial}{\partial z}$ и учитывая огибающие волновые функции электрона $f^{c(v)}(\mathbf{r})$, в соответствующих подзонах c- и v- зон можно написать

$$M^{(2)}_{(s,vj}(\mathbf{k}_\perp, \mathbf{e}, \omega) = \int\limits_{V_0} d\mathbf{r} f^{c*}_s(\mathbf{r})\, V^{(2)}_{cs,vj}(k_\perp, \hat{k}_z, \mathbf{e}, \omega) f^v_j(\mathbf{r}), \qquad (2)$$

где V_0—объем квантового слоя, а

$$f^{c(\,)}_{s(j)}=F^{c(v)}_{n(n')}(z)e^{i\mathbf{k}_\perp \mathbf{r}}\chi^{s(j)}, \tag{3}$$

где $s=\pm 1/2$ для зоны проводимости;

$j=\pm 3/2$ для зоны тяжелых дырок (hh);

$j=\pm 1/2$ для зоны легких дырок (lh).

Огибающие функции получаются решением уравнения Шредингера для каждого типа частицы в одномерной прямоугольной потенциальной яме с конечной глубиной V, в приближении эффективной массы. Причем, высота потенциального барьера $V_c=\Delta E_c$, $V_{lh}=V_{hh}=\Delta E_v$ зависит от состава x барьера $Al_xGa_{1-x}As$ и является параметром задачи.

Условия сшивания решений уравнений Шредингера на границах конечной ямы $z=0$, $z=a$ приводят к следующему трансцендентному уравнению

$$x=n-\frac{2}{\pi}\arcsin\frac{x}{\sqrt{ul+x^2(1-l)}}, \tag{4}$$

где $n=1, 2, 3...,$ $x=\dfrac{ka}{\pi}$, $k=\sqrt{\dfrac{2m_AE}{\hbar^2}}$, $U=\dfrac{V}{E_0}$ приведенная глубина ямы; E—энергия частиц;

$E_0=\pi^2\hbar^2/2m_Aa^2$—энергия первого уровня для частицы типа m_A в одномерной яме ширины a, с бесконечно высокими барьерами; $l=\dfrac{m_A}{m_B}$ —отношение масс для частицы данного типа $(e,\ lh, hh)$ в материале ямы и барьера.

Решая (4) в отдельности для каждого типа частиц, получим спектр энергий и параметры огибающих функций для электронов и дырок в соответствующих конечных ямах.

Для вычисления (2), как и в случае массивного полупроводника, применим метод инвариантов [12, 13], согласно которому для разрешенно-запрещенных переходов $\Gamma_8\Rightarrow\Gamma_6$ группы T_d в $V^{(2)}$ должны входить комбинации вида $e_\alpha e_\beta k_\gamma$, преобразующиеся по неприводимым представлениям $E,\ F_2,\ F_1$. При этом, если учитывать виртуальные промежуточные состояния только в зонах c и v, получается следующее разложение:

$$\hat{V}^{(2)}=\frac{2}{\sqrt{3}}[a_1(\mathbf{ee})k_\alpha+a_2(\mathbf{ek})e_\alpha]\hat{T}^{F_2}_\alpha+[b_1k_\alpha(e^2_{\alpha+1}-e^2_{\alpha+2})+$$

$$+b_2e_\alpha(k_{\alpha+1}e_{\alpha+1}-k_{\alpha+2}e_{\alpha+2})]\hat{T}^{F_1}_\alpha+c[\sqrt{3}e_z(e_yk_x-e_xk_y)\hat{T}^E_1+ \tag{5}$$

$$+(2k_ze_xe_y+e_z(e_yk_x+e_xk_y))\hat{T}^E_2].$$

Здесь T^{F_2}, T^{F_1}, T^E—матрицы соответствующих представлений, а a_i, b_i, ∂—константы, которые в модели Кейна [12, 13] имеют следующий вид:

$$a_1 = L\left(2 - \frac{2}{3}q - \frac{1}{3}s\right), \quad a_2 = L\left(6 - \frac{4}{3}q - \frac{1}{3}s\right),$$

$$b_2 = c = -b_1 = \frac{2}{3}Ls, \quad P = \langle s|\hat{P}_x|x\rangle, \tag{6}$$

$$L = \frac{\hbar}{m_0}\frac{P^3}{E_g^2}, \quad P = \frac{\Delta}{\Delta + E_g}, \quad q = \frac{2\Delta}{2\Delta + E_g}, \quad s = \frac{3E_g + 2\Delta}{2(E_g + \Delta)}.$$

Здесь применены общепринятые обозначения для модели Кейна [12].

При вычислении (2) для межзонных матричных элементов квазиимпульса k получаются следующие выражения:

$$(\mathbf{k}_\perp)_{nn'} = \int_0^a dz F_n(z)\mathbf{k}_\perp F_{n'}(z) = B_n B_{n'} \frac{2\mathbf{k}_\perp a}{\pi} \frac{\sin\alpha_{n'}\sin\alpha_n}{x_n^2 - x_{n'}^2}(l_n y_n - l_{n'} y_{n'}), \tag{7а}$$

$$(k_z)_{nn'} = iB_n B_{n'}[1 - (-1)^{n'-n}] \frac{l_n y_n l_{n'} y_{n'} + x_n^2}{x_n^2 - x_{n'}^2} \cdot \sin\alpha_n \cdot \sin\alpha_{n'}, \tag{7б}$$

где $E_n = E_0 x_n^2$, $y_n = \sqrt{(U - x_n^2)/l}$, $B_n = \sqrt{\frac{2}{a}}\left(1 + \frac{2(x_n^2 + y_n^2 l)}{\pi y_n (x_n^2 + y_n^2 l_n^2)}\right)^{-1/2}$,

$$\sin\alpha_n = \frac{X_n}{\sqrt{Ul + x_n^2(1 - l)}}$$

Для коэффициента поглощения $\alpha^{(2)}$ получается

$$\alpha^{(2)} = \sum_{cn.vn'} \alpha^{(2)}_{cn.vn'} = \frac{4\pi e^2}{a + a_B}\left(\frac{2\pi e^2}{m_0^2 \omega^3 c\chi}\right)^2 \cdot I \sum_{nn'} \frac{\mu_{cv}}{2\pi\hbar^2} \cdot \frac{L^2}{a^2} F_{nn'}(e), \tag{8}$$

где μ_{cv}—приведенная эффективная масса электрона и соответствующей дырки; χ—показатель преломления на частоте ω, $F_{nn'}$—безразмерный множитель, зависящий от поляризации света и от индексов подзон, между которыми происходят переходы.

Следует отметить, что для $GaAs$ a_1 и a_2 значительно превышают остальные коэффициенты и в $\alpha^{(2)}$ основной вклад дают те переходы, матричные элементы которых содержат a_1 и a_2. Приведем значения $F_{nn'}$ для нескольких таких переходов.

1) Переход $hh(n=1) \to c(n=1)$, $\mathbf{e} \perp \mathbf{z}$

$$F_{11} = \frac{1}{2L^2}\left[(a_1 + a_2)^2 + \left(a_1 + \frac{1}{2}b_1\right)^2\right] a^2 (k_\perp)_{11}^2 \text{ линейная поляризация} \tag{9а}$$

$$F_{11} = \frac{1}{2L^2}\left(a_1 + \frac{1}{2}b_2\right)^2 \cdot a^2 \cdot (k_\perp)_{11}^2 \text{ циркулярная поляризация} \tag{9б}$$

2) Переход $lh1 \to c1$, линейная поляризация

$$F_{11} = \frac{1}{6L^2}\left[(a_1 + a_2)^2 + \left(a_1 - \frac{3}{2}b_1\right)^2\right](k_\perp)_{11}^2 a^2. \tag{9в}$$

Для переходов с нечетным n^1-n' основной вклад получается при поляризации $\mathbf{e}\|\mathbf{z}$. Переходы $hh1\rightarrow c2$ и $hh2-c1$ не дают вклада в поглощение, согласно закону сохранения момента импульса, что находится в согласии с результатом эксперимента [1].

3) Для переходов $lh1\rightarrow c2$ или $lh2\rightarrow c1$, $\mathbf{e}//\mathbf{z}$,

$$F_2 = \frac{4}{3}(a_1+a_2)^2 \quad \frac{(k_z)^2_{21}\cdot a^2}{L_2} \quad \text{линейная поляризация.} \tag{9г}$$

В выражениях (9а)—(9в) $(k_\perp)$ получается из (7а) заменой

$$k_\perp a^2 = \frac{2\mu_{cv}a^2}{\hbar^2}(2\hbar\omega - E_g - E_{oc}x_n^2 - E_{ov}x_{n'}^2), \tag{10}$$

согласно закону сохранения энергии при двухфотонном поглощении, а $(k_z)^2_{21}$ в (9г) получается из (7б) при $n=(c,\ 2)$, $n'=(lh,\ 1)$.

Реальная зонная структура материалов квантовых ям и барьеров в $\alpha^{(2)}$ проявляется в виде коэффициентов μ_{cv}, $F_{nn'}$, и $\Theta(2\hbar\omega-E_g-E_{co}x_n^2-E_{vo}x_{n'}^2)$. Как видно из (5), (6) и (9), коэффициент $F_{nn'}$ полностью определяется спецификой зонной структуры материалы, а конкретное значение зависит как от типа перехода, так и от направления вектора поляризации относительно направления ограничения. Этим (9) отличается от результатов работ [6, 7] для коэффициентов поглощения, полученных без учета зонной структуры материала. Следует отметить, что это отличие остается в силе и в приближении бесконечно глубоких ям.

Как видно из (7б), для поляризации $\mathbf{e}//\mathbf{z}$ в случае конечной потенциальной ямы, как и в случае бесконечной ямы имеет место правило отбора, согласно которому $(\mathbf{k}_z)_{nn'}\neq 0$ только при нечетных $n^1-n=\Delta n$. Величины матричных элементов, однако, отличаются.

Для поляризации же $\mathbf{e}\perp\mathbf{z}$, в отличие от случая бесконечно глубоких ям, где благодаря ортогональности решений в области $(0<z\leqslant\leqslant a)$ имеется правило отбора $n^1-n=0$, в случае конечных ям переходы имеют место при произвольных четных n^1-n, вероятность переходов, однако, с увеличением Δn уменьшается. Отметим также, что в случае $(\mathbf{e}\perp\mathbf{z})$ коэффициенты поглощения для линейной и циркулярной поляризаций отличаются (см. 9а, 9б), что представляет определенный интерес с точки зрения экспериментального определения параметров зонной теории.

Учет конечности реальных потенциальных ям для электронов и дырок проявляется как в матричных элементах (7а, 7б), определяющих силы осцилляторов соответствующих переходов, так и в частотной зависимости коэффициента поглощения. Действительно, решение уравнения (4) для достаточно малых U (малых Va^2) показывает, что происходит значительное изменение энергетического спектра частиц в яме. Так, для параметров образцов, использованных в эксперименте [1] ($a=40$Å и 110Å, $\Delta E_c=0{,}303$эВ; $\Delta E_v=0{,}107$эВ), сосогласно нашим расчетам, для энергий основных состояний электронов и легких дырок получаем:

для $a=40\text{Å}$ $\quad E_{c1}=0{,}32E_{co}$, $\quad E_{lh1}=0{,}22\ E_{lho}$

для $a=110\text{Å}$ $\quad E_{c1}=0{,}6\ E_{co}$, $\quad E_{lh1}=0{,}52\ E_{lh0}$,

а для тяжелых дырок из-за большой эффективной массы яму можно считать бесконечной. Аналогичные изменения имеются для остальных состояний.

Вышеуказанное значительное изменение (в несколько раз) энергии связи частиц проявляется в пороге поглощения и в частотной зависимости $\alpha^{(2)}$, которая для поляризации $\mathbf{e}\perp\mathbf{z}$ определяется выражением

$$\sum_{nn'}(2\hbar\omega-E_g-E_{co}x_n^2-E_{vo}x_{n'}^2)\Theta(2\hbar\omega-E_g-E_{co}x_n^2-E_{vo}x_{n'}^2)F_{nn'},$$

а для поляризации $\mathbf{e}\|\mathbf{z}$ определяется выражением

$$\sum_{nn'}F_{nn'}\Theta(2\hbar\omega-E_g-E_{co}x_n^2-E_{vo}x_{n'}^2).$$

При $\mathbf{e}\|\mathbf{z}$, согласно правилу отбора, $n\neq n^1$, и порог поглощения будет выше.

Самое важное, однако, заключается в том, что не только значительно меняются энергии состояний и соответственно энергетические расстояния между подзонами, но и число возможных состояний в потенциальных ямах.

Например, для условий эксперимента [1] при $a=40\text{Å}$ и вышеотмеченных ΔE_c, ΔE_v как для электрона, так и для легкой дырки существует только по одному состоянию в квантовых ямах $(n=n^1=1)$.

Следовательно, при поляризации $\mathbf{e}\|\mathbf{z}$ из-за запрещенности перехода по правилу моментов из состояний тяжелой дырки и правилу отбора Δn—нечетный для переходов $lh\to c$ получаем, что в данной поляризации двухфотонные переходы вообще не проявляются. В случае же $a=110\text{Å}$ в яме существуют 3 состояния электрона и 2 состояния легкой дырки.

Таким образом, мы приходим к выводу, что для объяснения оптических спектров МКС и СР необходимо детально учитывать как специфику зонной структуры материалов, так и параметры квантовых ям (величины a, ΔE_c, ΔE_v, $l=m_A/m_B$) и поляризационную зависимость двухфотонных переходов.

ЛИТЕРАТУРА

1. K. Tai. A. Mysyrowicz, R. J. Fischer, R. E. Slusher and A. Y. Cho. Phys. Rev. Lett.,62, №15. 1784 (1989).
2. D. Fröhlich, P. Köhler, Ch. Pahlke. Phys. Rev., B 40, 1976 (1989).
3. А. А. Бугаев, А. Л. Станкевич. ФТТ, 34, № 5, 1613 (1992).
4. J. B. Stark, W. H. Knox, D. S. Chemla. Phys. Rev. Lett., 68, № 20,3080, (1992).
5. I. Y. Bigot, M. A. Mycek, S. Weiss, D. S. Chemla. Phys. Rev. Lett., 70, № 21, 3307 (1993).

6. N. Spector. Phys. Rev., B35 № 11, 5876 (1987).
7. A. Pasquarello, A. Quatropani. Phys. Rev., B38, № 9, 6206 (1988).
8. M. A. Херман. «Полупроводниковые сверхрешетки». М., Мир, 1989.
9. V. Nathan, A. H. Guenther. Jour. Opt. Soc. Am., B2, № 2, 294 (1985).
10. Е. Л. Ивченко. ФТТ, 14, № 12, 3489 (1972).
11. P. Voisin, G. Bastard, M. Voss. Phys Rev., B29, 936 (1984).
12. Г. Л. Бир, Г. Е. Пикус. «Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках».М., «Наука», 1972 г.
13. С. В. Арифжанов, Е. Л. Ивченко. ФТТ, 17, № 1, 81 (1975).

ԵՐԿՖՈՏՈՆ ԿԼԱՆՈՒՄԸ ԲԱԶՄԱՀՈՐ ՔՎԱՆՏԱՅԻՆ ԿԱՌՈՒՑՎԱԾՔՈՒՄ

Ս. Կ. ԱՎԵՏԻՍՅԱՆ, Ա. Հ. ՄԵԼԻՔՅԱՆ, Հ. Ռ. ՄԻՆԱՍՅԱՆ

Աշխատանքում տեսականորեն քննարկված է երկֆոտոն կլանումը լայն-արգելակային հետերոկառուցվածքում $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs$: Հաշվի է առնված նյութի ռեալ գոտիական կառուցվածքի և հետերոկառուցվածքի էներգետիկ ճեղքերի վերջավոր լինելը։ Ուսումնասիրված է երկֆոտոն կլանման գործակցի հաճախային կախումը, ինչպես նաև լույսի բևեռացումից նրա կախումը։ ցույց է տրված, որ հորի ոչ մեծ խորության դեպքում $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs$-ում հնարավոր անցումների թիվը կտրուկ պակասում է, իսկ անվերջ հորի մոդելում որոշ օպտիկական անցումներ ընդհանրապես բացակայում են։

TWO-PHOTON ABSORPTION IN MULTIQUANTUM WELL STRUCTURES

S. K. AVETISSIAN, A. O. MELIKYAN, H. R. MINASSIAN

The two-photon absorption coefficient in $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs$ semiconductor heterostructure is calculated. Here we take into account the finitness of quantum well depth and band structure features of materials. The polarization and frequency dependence of two-photon absorbtion is analysed. It is shown, that for small quantum well depths the number of possible optical transitions in the well reduces. Moreover, some of transitions, with exsist in infinite quantum well, are missing at all.