

УДК 621.373.826

РЕЗОНАНСНОЕ РАМАНОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ НА МЕЖДУЗОННЫХ ПЕРЕХОДАХ В МНОГОСЛОЙНОЙ КВАНТОВОЯМОЧНОЙ СТРУКТУРЕ В КВАНТУЮЩЕМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

А.Г. АЛЕКСАНЯН, А.С. ЕРЕМЯН

Институт радиофизики и электроники НАН Армении

(Поступила в редакцию 18 октября 1999 г.)

Изучен процесс резонансного рассеяния на междוזонных переходах в многослойной квантовоямочной (КЯ) структуре, помещенной в квантующее магнитное поле. Получены аналитические выражения для рамановской восприимчивости и пороговой интенсивности генерации. Численные оценки показывают, что ослабление электрон-фононного взаимодействия, которое характерно для рассматриваемой среды, приводит к высоким значениям коэффициента усиления и к низким порогам генерации.

Среди нелинейных оптических явлений, которые используются в различных областях оптоэлектроники, особый интерес вызывает явление рамановского рассеяния на электронных состояниях в полупроводнике, в связи с его возможным использованием в таких приборах, как ИК фотоприемники и перестраиваемые лазеры [1,2]. Интенсивные исследования последних десятилетий [3] показали, что приборы, основанные на квантово-размерных эффектах, обладают улучшенными по сравнению с обычными гетероструктурами характеристиками (такими, как пороговые токи, их температурная зависимость и т.д.). Причем, эти свойства особенно ярко должны проявляться в полупроводниковых структурах с трехмерно-квантованным электронным спектром.

В качестве среды будем рассматривать квантовоямочную структуру, показанную на рис.1. Структура образована периодическим чередованием двух различных полупроводниковых слоев с различными толщинами. Узкозонный слой InAs с толщиной d размерно-квантован, а широкозонный ZnTe имеет такую толщину, что обеспечивает слабую связь между слоями узкозонного. Образованные таким образом КЯ достаточно глубоки (глубина ~ 1.4 эВ), и в них содержится большое число уровней размерного квантования, т.е. пленку InAs можно

аппроксимировать бесконечно глубокой потенциальной ямой. Такая структура, помещенная в квантующее магнитное поле H по нормали к плоскостям слоев, будет иметь трехмерно-квантованный электронный (дырочный) спектр [4].

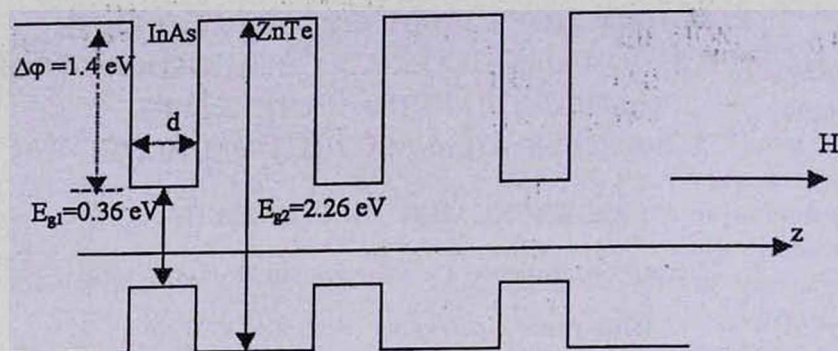


Рис.1. Многослойная КЯ структура, помещенная в магнитное поле.
 $d = 200 \text{ \AA}$, $H = 10^5 \text{ Э}$.

Особенностью рассматриваемой системы является то, что (когда толщина размерно-квантованной пленки d и величина магнитного поля выбираются такими, что ни одна из разностей частот не попадает в резонанс с частотой оптического фонона) электрон-фононное взаимодействие в ней подавлено [5], и время релаксации возбужденного электрона определяется не электрон-фононной релаксацией (как в [6,7]), а спонтанным распадом уровня.

Исследования нелинейных оптических явлений в структурах с квантованным спектром разделяются на две группы, связанные, соответственно, с внутризонными и междюзонными переходами. Первые представляют интерес с точки зрения их приборного применения в длинноволновой области спектра. С другой стороны, процессы с междюзонными переходами обладают рядом особенностей, которые, в частности, для исследуемого процесса рамановского рассеяния проявляются в уширении области рассматриваемых частот, в снятии ограничений на поляризацию падающей волны, в отличии величин матричных элементов переходов от таковых для внутризонных переходов и т.д.

Исследование вынужденного рамановского рассеяния будем проводить в рамках теории возмущений, используя технику двойных фейнмановских диаграмм [8]. Для этого сначала приведем описание основных характеристик исследуемой среды, необходимых для проведения соответствующих вычислений.

Полный гамильтониан, описывающий систему под воздействием излучения, запишем в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}' + \hat{H}^{(r)}, \quad (1)$$

где $\hat{H}_0$ – невозмущенный гамильтониан, который удовлетворяет уравнению Шредингера:

$$\hat{H}_0 \Psi = E \Psi. \quad (2)$$

В приближении эффективной массы решение (2) имеет вид [4]

$$\Psi_i = U_{i0}(r) F_{v_i}(r),$$

$$F_{v_i}(r) = \varphi_{l_i}(y - y_0^i) \exp(ik_x^i x) \sqrt{\frac{2}{d}} \sin\left(\frac{\pi m_i}{d} z\right) \quad (3)$$

с собственными значениями

$$E_{n_i, l_i} = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m_i^* d^2} n_i^2 + \hbar \Omega_{cycl}^i \left(l_i + \frac{1}{2} \right). \quad (4)$$

Здесь $i = c(v)$ соответствует зоне проводимости (валентной зоне), $U_{i0}(r)$ – блоховская волновая функция электрона (дырки) в точке экстремума ($k=0$) соответствующей зоны (предполагается модель полупроводника с изотропными невырожденными зонами, с прямой щелью и с параболическим законом дисперсии); $\varphi_{l_i}(y - y_0^i)$ – осцилляторная функция, отнесенная к положению равновесия y_0^i ; l_i и n_i – квантовые числа магнитного осциллятора и размерного квантования, соответственно, k_x^i – x -компонента квазиволнового вектора, m_i^* – эффективная масса в зоне i , Ω_{cycl}^i – циклотронная частота. В направлении z движение носителей ограничено в бесконечно глубокой прямоугольной потенциальной яме с шириной d , а в плоскости пленки оно квантуется магнитным полем $H \parallel z$ [4]. Отсчет энергии в (4) проводится со дна соответствующей зоны невозмущенного полупроводника.

Член $\hat{H}^{(r)}$ в (1) описывает возмущение среды со стороны теплового резервуара, окружающего систему [9]. Релаксация возбужденных носителей, описываемая этим членом, как уже отмечалось, определяется спонтанным распадом уровня, т.е. в нашей системе роль термостата играет фотонный резервуар.

$\hat{H}'$ в (1) представляет гамильтониан возмущения, характеризующий взаимодействие между средой и излучением:

$$\hat{H}' = \frac{e}{mc} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \left(\hat{\mathbf{p}} + \frac{e}{c} \mathbf{A}^{(0)} \right), \quad (5)$$

где $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ и $\mathbf{A}^{(0)}$ – вектор-потенциалы поля излучения и внешнего постоянного магнитного поля, соответственно:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = A \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r} + i\omega t) + c.c., \quad \mathbf{A}^{(0)} = \{-Hy, 0, 0\}.$$

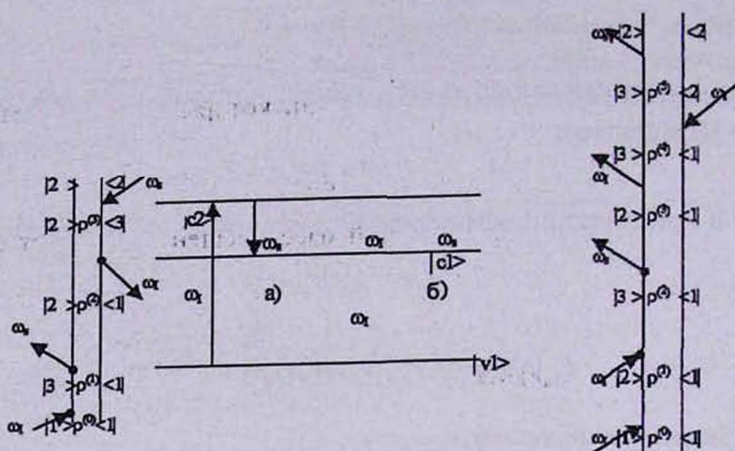


Рис.2. Двойные фейнмановские диаграммы и схема переходов для двухфотонного (а) и трехфотонного (б) рамановского процессов.

В данной статье мы рассмотрим процесс рамановского рассеяния на междоузельных переходах между уровнями размерного квантования валентной зоны и зоны проводимости (рис.2). Однофотонный переход между состояниями $V1$ и $C2$ в дипольном приближении запрещен правилами отбора (см. ниже в п.А). Поэтому будем исследовать рамановское рассеяние как а) двухфотонный процесс с квадруполь-дипольными переходами и б) трехфотонный процесс с диполь-дипольными переходами.

А. Двухфотонный процесс

Рассмотрим процесс резонансного рамановского рассеяния, который схематически показан на рис.2а. В процессе рамановского рассеяния происходит резонансное поглощение падающей волны на частоте ω_1 и излучение на частоте стоксовой волны ω_2 , при этом происходит переход системы из основного состояния $|1\rangle$ в конечное возбужденное состояние $|2\rangle$ (нумерация уровней на рисунке производится снизу вверх).

С целью изучения рассеянной волны на частоте ω_2 следует вычислить матричный элемент оператора плотности ρ , изменяющийся с частотой ω_2 и описывающий переход $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$. Расчет матрицы плотности по теории возмущений можно упростить с помощью диаграммной техники, разработанной в [8]. Сущность ее состоит во введении некоего подобия двойной фейнмановской диаграммы, которая используется для расчета волновых функций. Поскольку матрица плотности является произведением двух волновых функций, введенная для ее расчета каждая такая диаграмма объединяет пару фейнмановских диаграмм с двумя линиями эволюции: одной для $|\psi\rangle$ -стороны ρ , другой – для $\langle\psi|$ -сто-

роны. На рис.2а приведена одна такая двойная диаграмма, соответствующая рассматриваемому нами двухфотонному процессу; на рисунке точками обозначены резонансные переходы. Эта диаграмма позволяет сразу записать выражение для ρ_{23} , воспользовавшись методикой, изложенной в [8] и [9] (мы предполагаем, что система изначально находится в основном состоянии, т.е. $\rho_{ij}^0 = \delta_{j1}$):

$$\rho_{23}^{(3)} = -\frac{i}{\hbar^3} \frac{H'_{23}(\omega_s) H'_{31}(\omega_i) H'_{13}^*(\omega_l)}{(-\omega_s + \omega_{32} + i\gamma_{32})(\omega_i - \omega_s - \omega_{21} + i\gamma_{21})(\omega_l - \omega_{31} + i\gamma_{31})}. \quad (6)$$

Здесь $(-i\hbar\gamma_{ij})$ – релаксационная добавка $\hat{H}^{(r)}$ в полном гамильтониане (1); $\hbar\omega_{ij}$ – энергетическое расстояние между уровнями i и j . Матричные элементы междузонного перехода $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ имеют общий вид

$$H'_{cv} = \langle \Psi_c | \hat{H}' | \Psi_v \rangle = \int U_{c0}^* F_{v0}^* \hat{H}' U_{v0} F_{v0} d^3r, \quad (7)$$

где $v_i = \{n_i, l_i, k_x^i\}$ – набор квантовых чисел, характеризующий систему, а интегрирование проводится по основной области кристалла.

Анализ (7) с помощью огибающих функций $F_{v_i}(r)$ вида (3) показывает, что в дипольном приближении разрешены только те междузонные переходы (между пленочными уровнями), для которых выполняется соотношение $\Delta n = n_c - n_v = 2k$, $k = 0, 1, 2, \dots$, т.е. в рассматриваемой нами трехуровневой системе однофотонный переход $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ ($|V1\rangle \rightarrow |C2\rangle$) в дипольном приближении запрещен. Поэтому такой переход (однофотонный) возможен только в более высоком порядке разложения по мультиполям (в квадрупольном приближении). Вычисление (7) в квадрупольном приближении дает для данного перехода:

$$H'_{31}(\omega_i) = \frac{16}{9} \frac{eq_0 d}{m\omega_i \pi^2} (e p_{cv}) E_i(\omega_i). \quad (8)$$

Здесь $E_i(\omega_i)$ – напряженность поля ($E_i = -\frac{1}{c} \frac{\partial A_i}{\partial t}$); q_0 – волновой вектор фотона падающей волны, а p_{cv} – матричный элемент перехода для импульса, приводящий к правилам отбора, в зависимости от поляризации падающей волны и зонной структуры полупроводника. Его можно оценить, используя его значение для объемного полупроводника. Это является хорошим приближением в случае параболических и изотропных зон [10].

Вычисление матричного элемента внутризонного перехода дает общее выражение:

$$H'_{v'v_c} = -\frac{ie\hbar A}{dmc} \frac{4nn'}{n^2 - n'^2} \delta_{n-n', 2k+1} \delta_{k_x, k'_x} \delta_{l, l'}. \quad (9)$$

Отсюда, для перехода $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ ($|C2\rangle \rightarrow |C1\rangle$) следует

$$H'_{32}(\omega_i) = \frac{8}{3} \frac{e\hbar}{m\omega_s d} E_s(\omega_s), \quad (10)$$

где $E_s(\omega_s)$ — напряженность поля стоксовой волны.

Поляризации падающей и рассеянной волн мы предполагаем, соответственно, параллельной (ТЕ) и перпендикулярной (ТМ) плоскостям слоев, с целью получения максимальных сил переходов.

Среднее значение поляризации на стоксовой частоте определяется с помощью (6), используя определение среднего значения квантовомеханической величины:

$$\langle P_s \rangle = \text{Sp}(\hat{\rho}^{(3)} \hat{P}_s) = \chi_s E_s. \quad (11)$$

Подставляя вычисленные величины матричных элементов (8) и (10) в (6), с помощью общих соотношений

$$\hat{H}' = -\hat{\mu} \mathbf{E}; \quad \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}; \quad P_s = \frac{2}{V} \sum_{k_x, n, l} \mu_{23} \quad (12)$$

получим из (11) выражение для нелинейной восприимчивости χ_s для рассматриваемого процесса:

$$\chi_s = i \left(\frac{128}{27} \right)^2 \left(\frac{e^5 (\epsilon p_{cv})^2}{\pi^5 m^4 \hbar^2 c} \right) \left(\frac{q^2 H}{d \omega_i^2 \omega_s^2 \gamma_{31} \gamma_{21} \gamma_{32}} \right) |E_i|^2 = \chi_{sa} |E_i|^2, \quad (13)$$

где в резонансных знаменателях в (6) мы оставили только релаксационные добавки γ_{ij} . При вычислении Sp в (11) (суммы в (12)) учитывалось спиновое вырождение (множитель 2), а также соотношение

$$\frac{1}{V} \sum_{k_x} = \frac{eH}{2\pi \hbar c d}.$$

Б. Трехфотонный процесс

Рассмотрим процесс рамановского рассеяния в трехуровневой системе (рис.2), при котором, в отличие от процесса, рассмотренного в п.А, резонансное поглощение происходит на удвоенной частоте падающего излучения вследствие дипольного взаимодействия. Отметим, что хотя мы говорим о поглощении падающей волны, нужно иметь в виду, что рассматриваемый нами процесс комбинационного рассеяния как в случае А, так и в случае Б, не является ступенчатым процессом поглощения и переизлучения, и переход системы из основного состояния $|1\rangle$ в конечное возбужденное состояние $|2\rangle$ является результатом единого акта взаимодействия среды с излучением, хотя в случае резонансных переходов этот процесс сливается с процессом горячей люминесценции [11].

На рис.2б, по аналогии с рис.2а приведена двойная фейнмановская диаграмма, описывающая данный трехфотонный процесс.

Воспользовавшись уже упомянутой в п.А методикой, с помощью этой диаграммы получаем следующее значение для ρ_{23} , изменяющегося с частотой ω_s и описывающего резонансный переход $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ (в отличие от процесса А, в этом случае такой член получается в 5-м порядке разложения ρ):

$$\rho_{23}^{(5)} = (\rho_{32}^{(5)})^* = \frac{i}{\hbar^5} \frac{|H'_{32}{}^{\omega_1}|^2 |H'_{21}{}^{\omega_1}|^2 H'_{32}{}^{\omega_s} \rho_{11}^{(0)}}{(\omega_1 - \omega_{21})^2 (\omega_1 + \omega_s - \omega_{13}) \gamma_{13} \gamma_{21} \gamma_{32}}, \quad (14)$$

где в нерезонансных множителях в знаменателе мы опустили релаксационные добавки.

Вычисление матричных элементов H'_j , входящих в (14), в дипольном приближении дает следующие результаты:

$$H'_{12}(\omega_1) = \frac{e}{m\omega_1} (e p_{cv}) E_1(\omega_1), \quad H'_{32}(\omega_s) = \frac{8}{3} \frac{e\hbar}{m\omega_s d} E_s(\omega_s),$$

$$H'_{32}(\omega_1) = \frac{8}{3} \frac{e\hbar}{m\omega_1 d} E_1(\omega_1). \quad (15)$$

С помощью процедуры, аналогичной использованной в п.А, получаем для нелинейной восприимчивости в этом случае:

$$\chi_s = i \left(\frac{8}{3} \right)^4 \left(\frac{e^7 (e p_{cv})^2}{m^6 \hbar^2 \pi c} \right) \frac{H |E_1|^4}{d^5 \omega_1^4 \omega_s^2 (\omega_1 - \omega_{21})^2 (\omega_1 + \omega_s - \omega_{13}) \gamma_{13} \gamma_{21} \gamma_{32}} \equiv \chi_{sb} |E_1|^4. \quad (16)$$

Используя полученные в п.п. А и Б значения нелинейных восприимчивостей, перейдем к вычислению пороговой интенсивности для возникновения вынужденного рамановского эффекта в обоих случаях.

Физически возникновение рамановского эффекта для обоих случаев можно объяснить следующим образом: электронная поляризация ведет себя как осциллятор с частотой ω_{21} , который возбуждается за счет произведения падающего E_1 и рассеянного E_s полей. Поляризация на стоксовой частоте ω_s , необходимая для генерации поля E_s , является результатом смещения электронной поляризации с падающим полем.

Чтобы определить порог генерации, запишем уравнение распространения стоксовой волны в резонаторе:

$$\frac{\partial^2 E_s}{\partial t^2} + \frac{1}{\tau_c} \frac{\partial E_s}{\partial t} + \omega_c^2 E_s = -\frac{4\pi}{\varepsilon} \frac{\partial^2 P_s}{\partial t^2}, \quad (17)$$

где τ_c — время затухания волны в резонаторе, ε — диэлектрическая проницаемость среды. Если потери в системе в основном определяются потерями на зеркалах резонатора, то $\tau_c \approx l\eta/c \sim 10^{-11}$ с, где l — длина резонатора (расстояние между зеркалами).

Порог генерации достигается тогда, когда мощность, вносимая

за счет поляризационного члена в (17), компенсирует потери энергии в системе. Подставляя (11) с (13) и, соответственно, с (16) в (17), пороговое условие запишется для процессов а) и б) в виде

$$\tau_c^{-1} = 4\pi\varepsilon^{-1}\omega_s |\operatorname{Im} \chi_{sa}| |E_i|^2, \quad (18a)$$

$$\tau_c^{-1} = 4\pi\varepsilon^{-1}\omega_s |\operatorname{Im} \chi_{sb}| |E_i|^4, \quad (18b)$$

откуда, используя выражения (11) и (16), а также соотношение $I = \frac{c\sqrt{\varepsilon}}{8\pi} |E|^2$, получаем для обоих процессов, соответственно:

$$I_{\text{пор}} = \frac{\varepsilon^{3/2} c}{32\pi^2 \omega_s \tau_c |\operatorname{Im} \chi_{sa}|}, \quad (19a)$$

$$I_{\text{пор}} = \frac{\varepsilon \cdot c}{16\pi} \sqrt{\frac{1}{\pi \omega_s \tau_c |\operatorname{Im} \chi_{sb}|}}. \quad (19b)$$

Проведем численные оценки величины пороговой интенсивности генерации излучения для структуры, показанной на рис.1. При параметрах, приведенных на рисунке, имеются следующие значения величин, входящих в выражение для $I_{\text{пор}}$ и χ : (для InAs $m_e = 0.022m_0$; $m_v = 0.4m_0$) $\omega_s \approx \omega_{32} = 1,95 \cdot 10^{14} \text{ с}^{-1}$ а) $\omega_1 \approx \omega_{31} = 8,49 \cdot 10^{14} \text{ с}^{-1}$ б) $\omega_1 \approx 4,25 \cdot 10^{14} \text{ с}^{-1}$; $P_{\text{cv}}^2 \approx 4,8 \cdot m_0 E_g$; $\gamma_{23} \approx \gamma_{21} \approx 8,4 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$, $\gamma_{31} \approx 1,6 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$. При потерях в резонаторе, соответствующих $\tau_c \approx 10^{-11} \text{ с}$, получаем для порога генерации: $I_{\text{пор}} \sim 3,4 \cdot 10^{-5} \text{ Вт/см}^2$ для процесса А и $I_{\text{пор}} \sim 0,36 \text{ кВт/см}^2$ для процесса Б.

С помощью полученных аналитических выражений для нелинейных восприимчивостей можно вычислить коэффициент усиления на стоксовой частоте для двух процессов, используя общее выражение $g_s = -(4\pi\omega_s / c\sqrt{\varepsilon}) \operatorname{Im} \chi_s$. Для последнего оценки с использованием вышеприведенных параметров дают: $g_{sa} = 2,8 \cdot 10^5 \cdot I$ для двухфотонного процесса и $g_{sb} \sim 10^{-4} \cdot I^2$ для трехфотонного, где I дается в ед. Вт/см², а g в см⁻¹.

Как видно из этих выражений (см. также (11), (13) и (16)), два рассмотренных нами случая отличаются тем, что в случае двухфотонного процесса коэффициент усиления (поляризация) на стоксовой частоте пропорционален интенсивности падающего излучения, в то время как в трехфотонном случае – квадрату интенсивности. Физическая же картина в обоих случаях аналогична: селективное воздействие лазерного излучения приводит к фазировке элементарных электронных возбуждений (которые в той или иной мере возбуждены за счет энергии теплового движения и носят флуктуационный характер) в различных точках среды и к генерации существенно неравновесных электронных возбуждений, на которых и происходит вынужденное комбинационное когерентное рассеяние.

ЛИТЕРАТУРА

1. D.Frohlich et al. Phys. Rev. Lett., 59, 1748 (1994).
2. G.Sun and J.B.Khurgin. IEEE Journal of Quantum Electronics, 29, 1104 (1994).
3. A.Neogi et al. IEEE Journal of Quantum Electronics, 32, 701 (1996).
4. А.Г.Алексаян, А.Г.Алексаян, Р.Г.Аллахвердян. Квантовая электроника, 2, 1648 (1975).
5. А.Г.Алексаян. Квантовая электроника, 12, 837 (1985).
6. Ю.А.Алещенко и др. Письма в ЖЭТФ, 59, 235 (1994).
7. A.Neogi. Письма в ЖЭТФ, 66, 379 (1997).
8. T.K.Yee, T.K.Gustafson. Phys. Rev. A, 18, 1597 (1978).
9. И.Р.Шен. Принципы нелинейной оптики. М., Наука, 1989.
10. M.Asada et al. IEEE Journal of Quantum Electronics, QE-22, 1915 (1986).
11. Y.R.Shen. Phys. Rev. B, 9, 622 (1974).

**ՄԻՋԳՈՏԻԱԿԱՆ ԱՆՅՈՒՄՆԵՐՈՎ ՌԵԶՈՆԱՆՍԱՅԻՆ ՌԱՍԱՆՅԱՆ
ՑՐՈՒՄԸ ԹՎԱՆՏԱՅԵՆՈՂ ՄԱԳՆԻՏԱԿԱՆ ԴԱՇՏՈՒՄ ՏԵՂԱԴՐՎԱԾ
ԹՎԱՆՏԱՅԻՆ ՓՈՍԵՐՈՎ ԲԱԶՄԱՇԵՐՏ ԿԻՍԱՀԱՂՈՐԴՉԱՅԻՆ
ԿԱՌՈՒՅՎԱԾՔՈՒՄ**

Ա.Գ. ԱԼԵՔՍԱՆՅԱՆ, Ա.Ս. ԵՐԵՄՅԱՆ

Ուսումնասիրված է միջգոտիական անցումներով ռեզոնանսային ռամանյան ցրման երևույթը թվանտացնող մագնիսական դաշտում տեղադրված բազմաշերտ չափաքվանտացված կառուցվածքում: Ստացված են վերլուծական արտահայտություններ ռամանյան ընկալումակության և զեներացիայի շեմային ինտենսիվության համար: Թվային գնահատումները ցույց են տալիս, որ էլեկտրոն-ֆոնոնային փոխազդեցության կտրուկ թուլացումը, որը հատկանշական է դիտարկված միջավայրի համար, հանգեցնում է ուժեղացման գործակցի մեծ արժեքների և ցածր զեներացիայի շեմերի:

RESONANCE RAMAN SCATTERING ON INTERBAND TRANSITIONS IN A MULTILAYER QUANTUM WELL STRUCTURE IN A QUANTIZING MAGNETIC FIELD

A.G. ALEXANIAN, A.S. YEREMYAN

The resonance Raman scattering process on interband transitions is studied in a multilayer quantum well structure placed in a quantizing magnetic field. Analytical expressions are derived for the Raman susceptibility and threshold intensity of generation. Numerical evaluations show that the reduction of the electron phonon interaction which is characteristic for considered medium, leads to high values of the gain coefficient and to low generation thresholds.