

ВЛИЯНИЕ МАКРОСКОПИЧЕСКИХ ШЕРОХОВАТОСТЕЙ ГЕТЕРОГРАНИЦ НА ОПТИЧЕСКИЕ ВОСПРИИМЧИВОСТИ КВАНТОВЫХ СТРУКТУР

А.А.Горбацевич, И.В.Токатлы

Московский институт электронной техники

103498 Зеленоград, Москва

Поступила в редакцию 31 августа 1995 г.

Исследовано влияние технологических флуктуаций положения гетерограниц на оптические восприимчивости квантовых структур. Показано, что указанные флуктуации ведут к температурно-зависящему сдвигу резонансных частот в спектре поглощения на межподзонных переходах. На примере уединенной квантовой ямы продемонстрировано возникновение в симметричной в среднем системе оптического отклика второго порядка пропорционального разности среднеквадратичных отклонений положения противоположных границ структуры.

Измерение оптических характеристик искусственных слоистых соединений, выращенных с помощью технологии молекулярно лучевой эпитаксии, служит одним из основных методов исследования квантовых наноструктур. Кроме того, возможность создавать структуры с заранее заданной симметрией волновых функций и расположением энергетических уровней позволяет конструировать системы с нужными оптическими свойствами, что крайне важно с прикладной точки зрения. Именно с этим связано внимание к оптике гетероструктур и обилие как теоретических, так и экспериментальных работ в этой области. Однако большинство работ опирается на представление об идеальных гетерограницах и неизменной ширине квантовых ям и барьеров в направлении, перпендикулярном направлению роста. Тем не менее, даже наиболее совершенные образцы содержат случайные дефекты роста в виде ступенек, приводящих к отклонению ширин слоев, как минимум, на один-два атомных слоя [1].

Рассмотрим усредненное влияние флуктуаций положения гетерограниц на оптические свойства квантовых структур. В настоящей работе мы ограничимся исследованием линейного отклика (коэффициента поглощения) и нелинейного отклика второго порядка (для определенности коэффициента оптического выпрямления) в диапазоне частот, соответствующем межподзонным переходам. Последнее отвечает ИК области спектра.

1. Остановимся вначале на вычислении коэффициента линейного поглощения. Как будет показано ниже, технологические флуктуации положения интерфейсов ведут не только к очевидному уширению спектральных линий, но и к температурно-зависящему сдвигу резонансных частот в спектре поглощения. В качестве простейшего примера рассмотрим двухуровневую уединенную квантовую яму со средней толщиной L и высотой барьеров V (рис.1а). Сечение этой структуры плоскостью (x, z) , где x - направление роста, схематически показано на рис.1б. Физическая природа упомянутого сдвига резонансной частоты связана с неравномерным распределением носителей заряда вдоль квантовой ямы с переменной шириной. При низкой температуре концентрация частиц в широких областях превышает среднюю по яме, поэтому эти

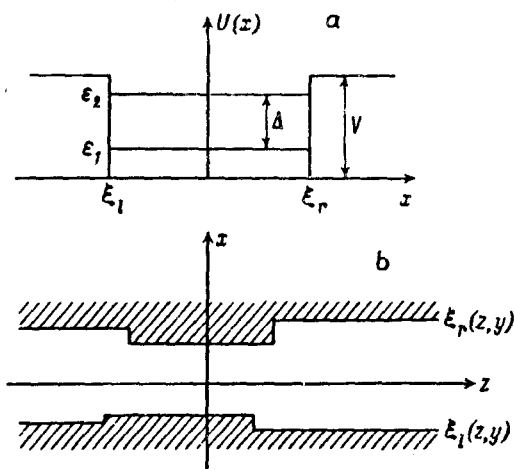


Рис. 1. а - Локальный потенциальный рельеф двухуровневой квантовой ямы. б - Схематический вид сечения структуры плоскостью (x, z) (заштрихованы области барьеров)

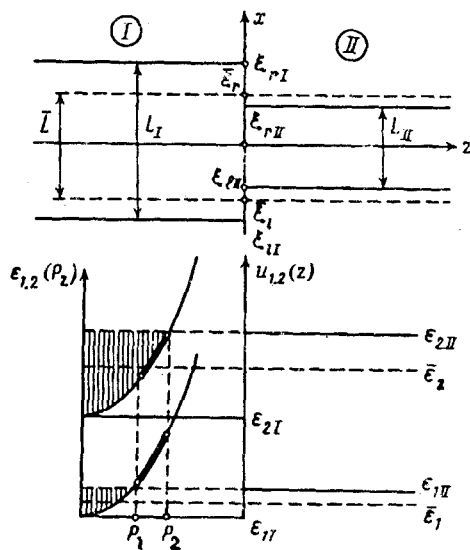


Рис.2. Сечение плоскостью (x, z) , эффективный потенциал в z -направлении $u_{1,2}(z)$ и зависимость от p_x энергии в основной (1) и возбужденной (2) подзонах $\epsilon_{1,2}(p_x)$ для системы двух контактирующих квантовых ям разной ширины. Вертикальными штриховыми показаны состояния, локализованные в широкой области. Жирной линией выделена область состояний, переходы внутри которой ведут к смещению центра тяжести электрона

области при усреднении дадут больший вклад в коэффициент поглощения. В то же время расстояние между подзонами размерного квантования Δ в широких областях меньше среднего. Следовательно, резонанс в усредненном коэффициенте поглощения сдвинется вниз по частоте относительно положения соответствующего средней ширине квантовой ямы. Увеличение температуры ведет к более равномерному распределению частиц вдоль структуры за счет температурного размытия функции распределения и, следовательно, к уменьшению сдвига резонансной частоты. В тщательно выращенных структурах характерный размер однородных областей (областей постоянной ширины) достаточно велик (от сотен ангстрем до нескольких микрон) [1]. Неоднородности такого масштаба можно считать макроскопическими и при вычислении оптических восприимчивостей использовать квазиклассическое приближение. А именно, вычисление коэффициента поглощения $\alpha(\omega)$ сводится к усреднению величины $\alpha_{loc}(\omega)$, зависящей от локальных значений координат правой ξ_r и левой ξ_l гетерограниц (см. рис.1а). Усреднение должно проводиться с функцией распределения $P(\delta\xi_{r(l)})$ отклонения координат правой и левой границ $\delta\xi_r$ и $\delta\xi_l$ от их средних значений $\bar{\xi}_r$ и $\bar{\xi}_l$. Будем считать распределение флуктуаций

гауссовым:

$$P(\delta\xi_j) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_j^2}} \exp\left\{-\frac{\delta\xi_j^2}{2\sigma_j^2}\right\}; \quad \sigma_j^2 = \langle \delta\xi_j^2 \rangle, \quad (1)$$

где j отвечает индексу правой ($j = r$) или левой ($j = l$) границы. Локальное значение ширины квантовой ямы определяется очевидным образом

$$L = \bar{L} + \delta L, \quad (2)$$

$$\bar{L} = \bar{\xi}_r - \bar{\xi}_l; \quad \delta L = \delta\xi_r - \delta\xi_l.$$

Локальный коэффициент поглощения $\alpha_{loc}(\omega)$ пропорционален мнимой части поляризуемости $\text{Im}\chi_{loc}^{(1)}(\omega)$, зависящей от локальной ширины квантовой ямы L (2). Вблизи резонанса, соответствующего переходу из основного состояния 1 в возбужденное состояние 2

$$\alpha_{loc}(\omega) \propto \text{Im}\chi_{loc}^{(1)}(\omega) = e^2 |x_{12}|^2 n_{loc} \frac{\gamma_{ph}}{(\omega - \Delta)^2 - \gamma_{ph}^2}, \quad (3)$$

где x_{12} – матричный элемент оператора координаты по волновым функциям основного и возбужденного состояний, n_{loc} – локальная концентрация частиц в нижней подзоне в данной области квантовой ямы, γ_{ph} – естественная (фононная) ширина резонанса, а $\Delta = \varepsilon_2 - \varepsilon_1$ – локальное расстояние между подзонами размерного квантования. В (3) частота ω выражена в энергетических единицах и считается, что $T \ll \Delta$. Коэффициент поглощения всей структуры получим, усредняя (3) с функцией распределения (1). При условии $\delta L/L \ll 1$, основной вклад в отличие $\alpha_{loc}(\omega)$ от $\alpha(\omega)$ дает зависимость от δL величин n_{loc} и Δ . Для рассматриваемой структуры увеличение δL ведет к пропорциональному уменьшению расстояния между подзонами Δ по сравнению со средним значением $\bar{\Delta}$ из-за сдвига энергетических уровней ε_1 и ε_2 :

$$\Delta = \bar{\Delta} - \delta\Delta, \quad \delta\Delta = \delta\varepsilon_2 - \delta\varepsilon_1 = \alpha_{21}\delta L. \quad (4)$$

Здесь введено обозначение

$$\alpha_{21} = \alpha_2 - \alpha_1, \quad \alpha_i = \left| \frac{\partial \varepsilon_i}{\partial L} \right|. \quad (5)$$

Выражение для коэффициента α_i в случае прямоугольной квантовой ямы может быть легко получено непосредственно из решения уравнения Шредингера

$$\alpha_i = \frac{2\varepsilon_i}{L} \left[1 - \frac{2\hbar}{L\sqrt{2m(V - \varepsilon_i)}} \right]^{-1}.$$

Величина n_{loc} для невырожденного электронного газа экспоненциально зависит от δL :

$$n_{loc} = \frac{mT}{2\pi} e^{\frac{\mu}{T}} \exp \frac{\alpha_1 \delta L}{T}. \quad (6)$$

Химический потенциал μ определяется из условия сохранения полного числа частиц в структуре:

$$n = \langle n_{loc} \rangle = \frac{mT}{2\pi} e^{\frac{\mu}{T}} \exp \frac{\alpha_1^2 \sigma_L^2}{2T^2}; \quad \sigma_L^2 = \langle \delta L^2 \rangle = \sigma_r^2 + \sigma_l^2. \quad (7)$$

Угловые скобки в (7) означают усреднение по $\delta\xi_r$ и $\delta\xi_l$ с функцией распределения (1). Из формулы (7) следует, что флуктуации ширины квантовой ямы ведут к сдвигу химического потенциала на величину $\delta\mu = -\alpha_1^2 \sigma_L^2 / 2T^2$. Для упрощения вычислений предположим, что ширина линии определяется в основном флуктуациями толщины квантовой ямы, то есть будем считать выполненным условие

$$\sigma_\Delta = \sqrt{\langle \delta\Delta^2 \rangle} \equiv \alpha_{21} \sigma_L \gg \gamma_{ph} . \quad (8)$$

Это условие хорошо выполняется для достаточно узких квантовых ям, где малое изменение ширины существенно сказывается на сдвиге энергетических уровней. Определение коэффициента поглощения сводится к вычислению следующего среднего:

$$\alpha(\omega) \propto \frac{1}{\pi} e^2 |x_{12}|^2 \langle n_{loc} \delta(\omega - \Delta) \rangle . \quad (9)$$

Подставляя в (18) n_{loc} (6), Δ (10) и проводя элементарное интегрирование с функцией (1), приходим к окончательному результату

$$\alpha(\omega) \propto \frac{e^2}{\pi} |x_{12}|^2 \frac{n}{\sqrt{2\pi\sigma_\Delta^2}} \exp \left\{ -\frac{1}{2\sigma_\Delta^2} \left(\omega - \bar{\Delta} + \frac{\alpha_1}{\alpha_{21}} \frac{\sigma_\Delta^2}{T} \right)^2 \right\} . \quad (10)$$

Величина среднеквадратичного отклонения расстояния между подзонами σ_Δ определена в (8). Формула (10) очевидным образом демонстрирует эффект сдвига резонансной частоты в меру флуктуаций ширины квантовой ямы.

2. В качестве примера нелинейной оптической восприимчивости рассмотрим эффект оптического выпрямления, состоящий в возникновении под действием переменного электрического поля $E = E_0 \cos(\omega t)$ статической поляризации P . Наведенная поляризация пропорциональна квадрату амплитуды поля: $P = \chi_0^{(2)}(\omega) E_0^2$. Локальное значение восприимчивости $\chi_{0,loc}^{(2)}(\omega)$ для двухуровневой системы определяется выражением (см., например, [2])

$$\chi_{0,loc}^{(2)}(\omega) = \frac{2e^3 \tau}{\pi \hbar} M(p) f_{loc}(p) \delta(\omega - \Delta) , \quad (11)$$

$$M(p) = |x_{12}|^2 (x_{11} - x_{22}) ,$$

где τ – время затухания (фононное) диагонального элемента матрицы плотности, $f_{loc}(p)$ – функция распределения частиц в нижней подзоне. Отметим, что формула (11) справедлива при выполнении условия (8). Структура матричных элементов в (11) указывает на природу эффекта: статическая поляризация возникает в меру смещения центра тяжести электрона при переходе из состояния 1 в состояние 2. Хорошо известно, что оптическая восприимчивость второго порядка не равна нулю только в системах с нарушенной пространственной четностью. Так, например, в работе [2] было продемонстрировано возникновение аномально большого (по сравнению с объемным материалом) отклика второго порядка в ступенчатой квантовой яме или в асимметричной системе двух связанных квантовых ям. Ниже мы покажем, что флуктуации положения интерфейсов ведут к возникновению ненулевого коэффициента оптического

выпрямления даже в симметричной в среднем структуре при условии, что величины среднеквадратичных отклонений правой и левой границ различны. Последнее условие совершенно естественно для реальных структур, так как различные гетерограницы выращиваются в разных технологических условиях. Сделанное утверждение не содержит никаких противоречий, поскольку, несмотря на симметричность структуры в среднем, локально пространственная четность все-таки нарушена, что и ведет к ненулевой восприимчивости второго порядка.

В нулевом порядке квазиклассического приближения, использованном выше, выражение для $\chi_{0,loc}^{(2)}(\omega)$ (11) тождественно обращается в нуль. Эта ситуация, в некотором смысле, аналогична случаю поглощения света неупорядоченным полупроводником с параллельным искривлением зон [3]. Следующий порядок соответствует расчету локальной восприимчивости с учетом двух соседних областей расширения и сужения квантовой ямы с последующим усреднением результата по положению границ контактирующих областей. Обозначим указанные области римскими цифрами I и II, и все величины относящиеся к ним будем отмечать соответствующими индексами. Пусть, для определенности, квантовая яма в области I шире чем в области II, как это показано на рис.2. В случае $\delta L/L \ll 1$ собственные функции $\psi_i(\mathbf{r})$ ($i = 1, 2$) такой системы можно записать в виде

$$\psi_i(\mathbf{r}) = e^{ip_y y} \chi_{i,p_z}(z) \{ \varphi_{i,I}(x) \theta(-z) + \varphi_{i,II}(x) \theta(z) \}, \quad (12)$$

где $\varphi_{i,I(II)}(x)$ – собственные функции одномерной квантовой ямы с локальным значением ширины $L = L_I(L_{II})$, $\chi_{i,p_z}(z)$ – решения одномерного уравнения Шредингера для каждой подзоны в направлении z со ступенчатым потенциалом $u_i(z)$, изображенным на рис.2. Значение потенциала $u_i(z)$ при $z > 0$ отвечает уровню энергии $\epsilon_{i,II}$ в квантовой яме с шириной L_{II} , а при $z < 0$ – уровню $\epsilon_{i,I}$ в квантовой яме с шириной L_I (см. рис.2). Волновые функции i -ой подзоны (12) локализованы в широкой области I при

$$p_z < p_i = \sqrt{2m(\epsilon_{i,II} - \epsilon_{i,I})} \equiv \sqrt{2m\alpha_i(\delta L_I - \delta L_{II})} \quad (13)$$

и делокализованы на две области при $p_z > p_i$. На рис.2 области локализованных в широкой части состояний показаны штриховыми линиями. Для делокализованных состояний ($p_z > p_i$) центр тяжести электрона (диагональный матричный элемент оператора координаты) совпадает со средним арифметическим центром I и II области. А именно,

$$x_{ii} = \frac{1}{2}(x_I + x_{II}), \quad p_z > p_i, \quad (14)$$

где $x_{I(II)} = (\xi_{r,I(II)} + \xi_{l,I(II)})/2$ – центр квантовых ям I или II. Для локализованных состояний ($p_z < p_i$) x_{ii} совпадает с центром квантовой ямы I:

$$x_{ii} = x_I, \quad p_z < p_i. \quad (15)$$

Поскольку $p_2 > p_1$, величина $x_{11} - x_{22}$, входящая в выражение для локальной восприимчивости (11), не равна нулю только для переходов из делокализованных состояний подзоны 1 в локализованные состояния подзоны 2 (область

$p_2 > p_z > p_1$) и определяется выражением (с учетом равенств (27) и (15))

$$x_{11} - x_{22} = \frac{1}{2} (x_{II} - x_I). \quad (16)$$

В этой же области, в главном порядке по $\delta L/L$, дипольный матричный элемент $x_{12} \approx x_{12}^{(0)}/2$, где $x_{12}^{(0)}$ вычислен по волновым функциям идеальной структуры. Таким образом, входящая в (11) комбинация матричных элементов M определяется следующим выражением

$$M(p) = \begin{cases} \frac{1}{8} |x_{12}^{(0)}|^2 (x_{II} - x_I), & p_2 > p_z > p_1 \\ 0, & p_z \notin [p_1, p_2]. \end{cases} \quad (17)$$

Полная восприимчивость $\chi_0^{(2)}(\omega)$ получается в результате вычисления следующего среднего:

$$\chi_0^{(2)}(\omega) = \frac{2e^3}{8\pi} \tau |x_{12}^{(0)}|^2 e^{\mu/T} Q, \\ Q = \langle (x_{II} - x_I) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dp_y}{2\pi} \int_{p_1}^{p_2} \frac{dp_z}{2\pi} \exp \left\{ -\frac{p}{2mT} + \frac{\alpha_1 \delta L_I}{T} \right\} \times \\ \times \delta(\omega - \bar{\Delta} + \alpha_{21} \delta L_I) \theta(\delta L_I - \delta L_{II}) \rangle. \quad (18)$$

Усреднение в (18) проводится с функцией распределения (1) по $\delta\xi_{r,I}$, $\delta\xi_{r,II}$, $\delta\xi_{l,I}$, $\delta\xi_{l,II}$. Вычисление интеграла в (18) удобно проводить после перехода от интегрирования по флуктуациям правой и левой границ $\delta\xi_{r,I(II)}$ и $\delta\xi_{l,I(II)}$ к интегрированию по флуктуациям ширины ямы $\delta L_{I(II)}$ и флуктуациям положения центра ямы $x_{I(II)}$. В результате получим следующее выражение для усредненной восприимчивости, описывающей эффект оптического выпрямления:

$$\chi_0^{(2)}(\omega) = \frac{2e^3}{4\pi} \tau |x_{12}^{(0)}|^2 \frac{\sigma_r^2 - \sigma_l^2}{\sigma_L} \frac{\exp \left\{ -\frac{1}{2\sigma_\Delta^2} \left(\omega - \bar{\Delta} + \frac{\alpha_1 \sigma_\Delta^2}{\alpha_{21} T} \right)^2 \right\}}{\sqrt{2\pi\sigma_\Delta^2}} F \left(\frac{\omega - \bar{\Delta}}{\sigma_\Delta} \right), \quad (19)$$

где функция $F(\Omega)$ определена интегралом

$$F(\Omega) = \int_0^\infty \frac{x dx}{\sqrt{2\pi}} e^{\frac{1}{2}(x+\Omega)^2} \left[\operatorname{erf} \left(\sqrt{\frac{2\alpha_1 \sigma_\Delta}{\alpha_{21} T}} x \right) - \operatorname{erf} \left(\sqrt{\frac{2\alpha_2 \sigma_\Delta}{\alpha_{21} T}} x \right) \right]. \quad (20)$$

В (20) функция $\operatorname{erf}(t)$ – стандартный интеграл ошибок. Из выражения (19) видно, что в меру разности среднеквадратичных отклонений положения правой и левой границ квантовой ямы, в поле электромагнитной волны возникает статическая поляризация. Вектор наведенной поляризации P направлен в сторону сильнее флуктуирующего интерфейса.

Таким образом, совместное измерение линейного и нелинейного откликов квантовой структуры открывает возможность экспериментально исследовать не только флуктуации ширины структуры, но и непосредственно анализировать относительную величину среднеквадратичного отклонения противоположных границ слоя.

В заключение отметим, что продемонстрированный эффект возникновения температурно-зависящего сдвига резонансной частоты в спектре поглощения

на частотах межподзонных переходов (см. формулу (10)) должен проявиться и на частоте, отвечающей межзонным переходам (как в спектре поглощения, так и в спектре люминисценции). Подробному исследованию этого вопроса будет посвящена отдельная работа.

Работа выполнена в рамках проекта INTAS при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Российской МНТП "Физика твердотельных наноструктур".

-
1. K.Brunner, G.Astreiter, G.Böhm et. al Appl. Phys. Lett. **64**, 3320 (1994).
 2. E.Rosensher and Ph.Bois, Phys. Rev. **B44**, 11315 (1991).
 3. В.Л.Бонч-Бруевич, И.П.Звягин, и др., *Электронная теория неупорядоченных полупроводников*, М: Наука, 1981, с.289.