

АНГАРМОНИЗМ БЛОХОВСКИХ ОСЦИЛЛЯЦИЙ В СВЕРХРЕШЕТКАХ GaAs/AlAs В СЛУЧАЕ НЕОДНОРОДНО УШИРЕННЫХ ЭКСИТОННЫХ СОСТОЯНИЙ В СЛАБОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

К.Л.Литвиненко¹⁾, К.Кёхлер⁺²⁾, К.Лео^{*2)}, Ф.Лёзер^{*2)}, В.Г.Лысенко⁺,
И.Охрименко

*Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия*

⁺ *Fraunhofer-Institute für Angewandte Festkörperphysik,
Freiburg, Germany*

^{*} *Institute für Angewandte Photophysik, Technische Universität Dresden
01062 Dresden, Germany*

Поступила в редакцию 23 апреля 1998 г.

Экспериментально и теоретически исследовано изменение формы спектра сигнала четырехволнового смещения в сверхрешетках GaAs/AlGaAs. Показано, что во внешнем электрическом поле, приводящем к антикроссингу уровней тяжелых и легких экситонов, наблюдаются пилообразные осцилляции их энергетического положения, которые связываются с неоднородным уширением состояний, участвующих в блоховских осцилляциях.

PACS: 42.50.Md

Блох [1] и Зенер [2] более полувека назад теоретически показали, что в среде с пространственно периодическим потенциалом в постоянном электрическом поле F электрон должен двигаться не равноускоренно, а совершать пространственные колебания возле некоторого среднего положения. Это происходит из-за того, что на краях зоны Бриллюэна электрон меняет направление своего квазиимпульса на противоположное. Период таких гармонических колебаний, впоследствии названных блоховскими осцилляциями, равен

$$\tau_B = h/eFd, \quad (1)$$

где h – постоянная Планка, e – заряд электрона, d – период потенциала среды, в которой распространяется электрон. Блоховские осцилляции электронов могут наблюдаться лишь в том случае, если время сбоя их фазы много больше τ_B [3]. В объемных полупроводниках постоянная решетки d слишком мала для того, чтобы это условие выполнялось. Однако в искусственных периодических структурах – многослойных квантовых ямах и сверхрешетках (СР), период d которых составляет не единицы, а десятки или даже сотни ангстрем, а τ_B много меньше времени сбоя фазы, оказалось возможным экспериментально наблюдать блоховские осцилляции. Для этого использовались разнообразные экспериментальные методы [4–10], среди которых наиболее информативным является метод четырехволнового смешивания (ЧВС) со

¹⁾ e-mail: kostja@ipmt-hpm.ac.ru

²⁾ K.Köhler, K.Leo, F.Löser

спектральным разрешением. В работе [11] было показано, что при некоторых напряжениях смещения, приложенных к исследуемой СР, в спектрах ЧВС осциллируют не только интенсивности, но и спектральные положения некоторых линий из-за слабых периодических локальных колебаний электрического поля, вызванных блоховскими осцилляциями макроскопического дипольного момента. Это позволило определить не только период блоховских осцилляций τ_B , но и оценить амплитуду пространственных колебаний электронного волнового пакета. В больших полях F (более 20 кэВ/см) наблюдаются затухающие, гармонические осцилляции спектрального положения экситонных линий [11]. Однако в небольшом интервале промежуточных и слабых электрических полей (0.5 – 2 кэВ/см) наблюдаются воспроизводимые пилообразные осцилляции с неожиданно большой амплитудой, имеющие удвоенную или утроенную частоту.

Основной причиной ангармонизма блоховских осцилляций в A_3B_5 полупроводниковых СР является существование, помимо переходов между электронными состояниями и тяжелыми дырками, переходов с участием легких дырок, сила осциллятора которых сопоставима с силой осциллятора тяжелых экситонов. При возбуждении таких СР широкополосным фемтосекундным лазерным излучением могут одновременно возбуждаться переходы с участием как тяжелых, так и легких экситонов. При определенных электрических полях F энергии переходов с участием тяжелых и легких экситонов совпадают (например, $E_0^{hh} - E_0^{hhez} = E_0^{lh} - eFd - E_{-1}^{hez}$), а их волновые функции смешиваются. При этом силы осциллятора и дифференциальный сдвиг dE/dF экситонных линий изменяются: интенсивности слабых линий поглощения (например, lh_{-1} или lh_{-2}) увеличиваются, а сдвиг сильной линии поглощения (например, hh_0) при изменении электрического поля значительно возрастает и, кроме того, характер зависимости dE/dF становится существенно нелинейным, что и приводит к ангармонизму экспериментально наблюдаемых изменений спектрального положения экситонных резонансов в сигналах ЧВС. Эффект смешивания волновых функций, получивший название антикроссинга состояний тяжелых и легких экситонов, и его влияние на спектры ЧВС подробно разобраны в работах [12].

Для исследования блоховских осцилляций (нелинейно-) оптическими методами и интерпретации экспериментальных результатов существенно то, что квантовомеханическим эквивалентом квазиклассического представления Блоха является ванье-штарковская (ВШ) лестница. Если постоянное электрическое поле F приложить к полупроводниковой СР, то энергетические состояния каждой из минизон электронов и дырок трансформируются в "ВШ лестницу" [13, 14], которая описывается следующей зависимостью:

$$E_l = E_0 + leFd; \quad l = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \quad (2)$$

где E_0 – энергия электрона или дырки в отсутствие поля. Оптические переходы между локализованной в одной из квантовых ям СР дыркой и электронами с энергиями, удовлетворяющими соотношению (2), также должны описываться соотношением (2), в котором теперь E_0 – энергия перехода между электроном и дыркой в одной и той же квантовой яме. В этом случае в оптических спектрах должен наблюдаться "веер" эквидистантных уровней, удовлетворяющих (2). В реальных полупроводниковых структурах энергетический спектр возбужденных состояний отличается от (2) по многим причинам. Прежде всего, кулоновское взаимодействие между фотовозбужденными электронами и дырками приводит к образованию связанных экситонных

состояний [15]. В общем случае энергия связи экситона E_i^{ex} должна зависеть от параметра l , уменьшаясь с его ростом, из-за чего оптические переходы становятся неэквидистантными и должны описываться чуть более сложным соотношением

$$E_i = E_0 + leFd + E_i^{ex}, \quad l = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \quad (3)$$

а вместо единственной основной частоты eFd , блоховские осцилляции должны наблюдаться на различных частотах вида $(m - n)eFd + E_m^{ex} - E_n^{ex}$, то есть суммарное колебание электронного волнового пакета становится негармоническим.

К существованию набора слегка отличающихся блоховских частот, которое влечет за собой появление суммарного негармонического колебания электронного волнового пакета, приводит также неоднородное уширение экситонных линий. В отличие от однородного уширения, которое является следствием различных процессов рассеяния, неоднородное уширение представляет собой флуктуационное изменение резонансного положения экситонного состояния. Другими словами, в случае неоднородного уширения наблюдаемая экситонная линия состоит из суперпозиции набора независимых однородно уширенных экситонных линий, интенсивность которых определяется отклонением их резонансного положения от некой средней величины согласно распределению Гаусса. Причины, вызывающие появление неоднородного уширения и его влияние на спектр экситонных состояний, рассмотрены нами в работе [16]. Здесь же нам важно отметить, что квантовые биения неоднородно уширенных экситонных линий, которые являются более общим случаем блоховских осцилляций, будут состоять из интерференции квантовых биений между различными частями экситонных линий. В данной работе, таким образом, будет показано, что на ангармонизм блоховских осцилляций в области антикроссинга состояний легких и тяжелых экситонов существенное влияние оказывает неоднородное уширение экситонных состояний.

Для экспериментального исследования негармонических осцилляций энергетического положения экситонных линий в спектрах ЧВС мы использовали образцы GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As CP с шириной квантовых ям и барьеров соответственно 97 и 17 Å, встроенных в $p-i-n$ структуру толщиной 1 мкм, к которой прикладывалось внешнее напряжение смещения от +2 до -7 В. Для одновременного возбуждения состояний тяжелых и легких экситонов и для наблюдения спектрально-разрешенного сигнала ЧВС в двухлучевой схеме использовалось излучение перестраиваемого титан-сапфирового лазера длительностью 150 фс. Образец находился в оптическом гелиевом криостате при температуре около 10 К. Спектры пропускания и ЧВС при различных временных задержках τ между двумя лазерными импульсами с интервалом 50 фс регистрировались спектрометром и ОМА с разрешением 0.1 мэВ.

На рис.1а представлены экспериментально измеренные спектры ЧВС исследуемой сверхрешетки при напряжении смещения -1.7 В при различных задержках τ от -0.5 до +2 пс. Энергия лазерного импульса составляла примерно 1 пДж (что соответствовало плотности экситонов $\approx 10^8$ см⁻²), максимум широкополосного лазерного излучения $h\nu_{las} \approx 1.555$ эВ. Как видно из рисунка, одновременно возбуждалось по 3 состояния тяжелых и легких экситонов. Интенсивность всех линий осциллирует при изменении τ с периодом 0.33 пс (рис.2а), что соответствует расщеплению между линиями hh_{-1} , hh_0 и hh_{+1} и $eFd \approx 14$ мэВ. В спектрах ЧВС наблюдаются два достаточно глубоких провала (dip) между линиями hh_{-1} и lh_{-2} и между линиями lh_{-1} и hh_{+1} , которые не удается аппроксимировать суммой лоренцевых или гауссовых линий и которые являются следствием начальной разности фаз волновых функций,

описывающих тяжелые и легкие экситоны. На рис.2b точками показана экспериментальная зависимость положения максимума линии hh_0 (1.552 эВ) от задержки τ , из которого видны периодические, но не синусоидальные, а пилообразные осцилляции.

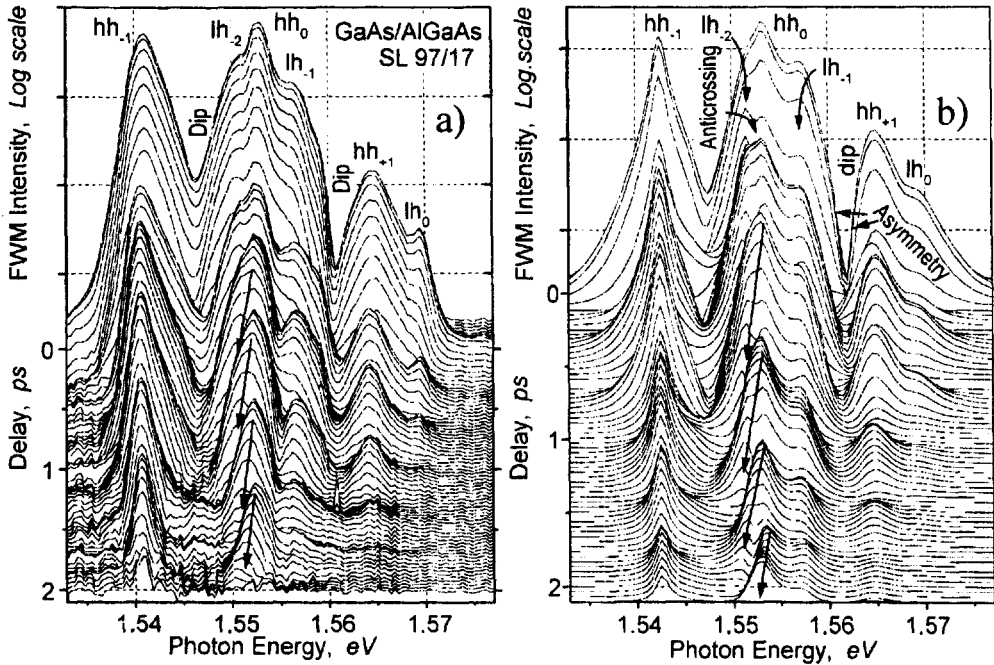


Рис.1. а) изменение формы экспериментального спектра сигнала ЧВС при приложении внешнего постоянного электрического поля $F = 1.6$ кВ/см. б) изменение формы спектра сигнала ЧВС, полученное с использованием предложенной модели для следующих параметров: $E_1 = 1.5425$ эВ, $\gamma_1 = 0.7$ мэВ, $M_1 = 1.5$ (hh_{-1}); $E_2 = 1.553$ эВ, $\gamma_2 = 1.1$ мэВ, $M_2 = 1.2$ (hh_0); $E_3 = 1.5575$ эВ, $\gamma_3 = 1.4$ мэВ, $M_3 = 0.7 \cdot i$ (lh_{-1}); $E_4 = 1.5645$ эВ, $\gamma_4 = 1.8$ мэВ, $M_4 = 1$ (hh_{+1}); $E_5 = 1.56$ эВ, $\gamma_5 = 1.8$ эВ, $M_5 = 0.3$ (lh_0); $M_6 = 1.5515$ эВ, $\gamma_6 = 0.9$ мэВ, $M_6 = 1.35 \exp(\pi/6 \cdot i)$ (lh_{-2}), где E_i , γ_i , M_i – резонансное положение, параметр однородного уширения и дипольный момент i -того экситонного перехода

Расчет кинетики спектров сигнала ЧВС мы провели по аналогии с работами [17, 18]. Из анализа расчетов можно сделать следующие выводы: квантовые биения однородно уширенных ВШ состояний из одной и той же минизоны приводят к осцилляциям только интенсивности сигнала ЧВС с одним и тем же для всех линий периодом, при этом форма спектра сигнала ЧВС абсолютно не зависит от задержки τ . Одновременное возбуждение лазерным излучением однородно уширенных состояний тяжелых и легких экситонов с отрицательными индексами (например, lh_{-1} или lh_{-2}) приводит к интерференции поляризаций этих состояний. В результате этого, на гармонические осцилляции интенсивности и формы сигнала ЧВС, вызванные блоховскими пространственными осцилляциями макроскопического дипольного момента, налагаются дополнительные гармонические осцилляции спектрального положения и формы линий ЧВС, однако при разумных значениях сил осциллятора и затуханий состояний легких экситонов осцилляции спектрального положения линий ЧВС составляют не более 0.2 мэВ. Наиболее полное согласие теоретических расчетов формы и кинетики спектра сигнала ЧВС с экспериментальными наблю-

днем достигается в случае квантовых биений неоднородно уширенных экситонных линий. Уже квантовые биения только двух неоднородно уширенных уровней могут привести к пилообразным осцилляциям резонансного положения экситонных состояний. Причем, пилообразный характер спектральных осцилляций зависит от параметра корреляции λ , который показывает, насколько связаны между собой распределения, описывающие неоднородное уширение взаимодействующих экситонных состояний [18]. В случае полной корреляции ($\lambda = 1$) эти распределения однозначно могут быть выражены друг через друга. Это приводит к тому, что влияние интерференции поляризации различных частей экситонных линий полностью взаимно компенсируются и, как следствие этого, осцилляции положения или формы линий ЧВС не наблюдаются. В случае полного отсутствия взаимосвязи между причинами, вызывающими неоднородное уширение ($\lambda = 0$), влияние интерференции поляризации оказывается существенным. В реальных СР параметр λ изменяется от 0.6 до 0.9, поэтому экспериментально могут наблюдаться ангармонические изменения положения экситонных линий. Интенсивность ангармонических спектральных осцилляций, вызванных квантовыми биениями неоднородно уширенных уровней, зависит от расстояния между уровнями и стремительно уменьшается с увеличением расщепления веера состояний ВШ лестницы.

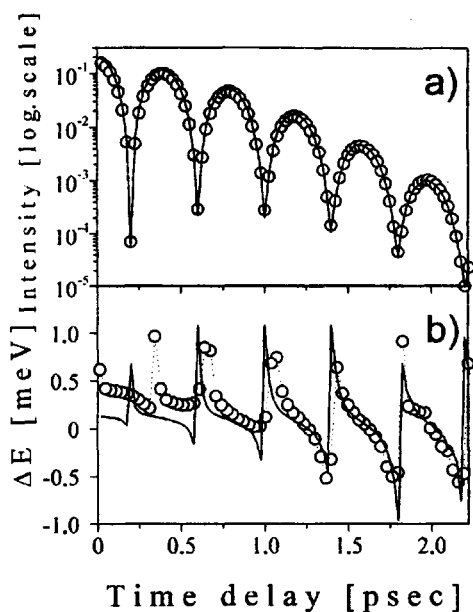


Рис.2. Сопоставление экспериментального (кружки) поведения максимума (а) и резонансного положения (б) линии hh_0 с теоретическими вычислениями. Наилучшее совпадения представлено на рисунке сплошными линиями и достигается для следующего значения параметров: $E_1 = 1.541778$ эВ, $\gamma_1 = 0.52$ мэВ, $\Gamma_1 = 3\gamma_1$; $E_2 = 1.552114$ эВ, $\gamma_2 = 0.74$ мэВ, $\Gamma_2 = \Gamma_1$, $\lambda = 0.72$, где Γ_i – параметр неоднородного уширения

На рис.2а и 2б точками показаны экспериментально измеренные осцилляции интенсивности и спектрального положения линии hh_0 при напряжении смещения -1.6 В, а сплошными линиями – результаты расчета, выполненного для случая квантовых биений неоднородно уширенных уровней hh_0 и hh_{-1} (параметры, использованные в вычислениях, указаны в подписи к рисунку). Хорошее соответствие теоретического и экспериментального изменения положения линии hh_0 подтверждает правильность выбора в качестве теоретической модели блоховские осцилляции макроскопического дипольного с учетом неоднородного уширения. Изменение резонанс-

ного положения исследуемой линии не совпадает с теоретическими предсказаниями только для малых задержек. Это связано с тем, что в используемой теоретической модели совершенно не учитывалось влияние конечной длительности возбуждающего лазерного импульса, а также других состояний легких и тяжелых экситонов, приводящих к дополнительному ангармонизму осцилляций сигнала ЧВС.

На рис.1b представлены рассчитанные, исходя из предложенной модели, спектры сигнала ЧВС для резонансных энергий, относительных амплитуд и параметров затухания, участвующих в блоховских осцилляциях состояний тяжелых и легких экситонов, приведенных в подписи к рисунку. Как следует из сопоставления экспериментальных (рис.1a) и теоретических (рис.1b) спектров и кинетики сигнала ЧВС, они совпадают не только в общих чертах, но и во многих деталях.

Таким образом, мы показали, что квантовые биения неоднородно уширенных состояний тяжелых экситонов в сверхрешетках GaAs/AlGaAs в слабом внешнем электрическом поле приводят к ангармонизму блоховских осцилляций. Предложенная модель позволяет достаточно полно описать спектры сигнала ЧВС и кинетику блоховских осцилляций в слабых полях и определить характеризующие их параметры.

Работа выполнена при поддержке фондов: РФФИ 97-02-16833; ГКНТ 97-1058; INTAS 94-324 и 95-0576.

-
1. F.Bloch, Z. Phys. **52**, 555 (1928).
 2. C.Zener, Proc. R. Soc. London, Ser. **A145**, 523 (1932).
 3. N.W.Ashcroft and N.D.Mermin, Solid State Physics, Holt-Saunders Int. Ed., Philadelphia, 1981.
 4. J.Feldmann et al., Phys. Rev. **B46**, 7252 (1992).
 5. K.Leo et al., Solid State Commun. **84**, 943 (1992).
 6. P.Leisvhiing et al., Phys. Rev. **B50**, 14389 (1994).
 7. R.Martini et al., Phys. Rev. **B54**, R14325 (1996).
 8. T.Dekorsy et al., Phys. Rev. **B50**, 8106 (1994).
 9. K.Unterrainer et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 2973 (1996).
 10. M.Ben Dahan et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 4508 (1996).
 11. V.G.Lyssenko, G.Valusis, F.Loser et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 301 (1997).
 12. F.Loser, M.Sudzius, V.Lyssenko et al., Phys. Stat. Sol. (b) **206**, 445 (1998).
 13. E.E.Mendez, F.Agullo-Rueda, and J.M.Hong, Phys. Rev. Lett. **60**, 2426 (1988).
 14. P.Voisin et al., Phys. Rev. Lett. **61**, 1639 (1988).
 15. M.M.Digman and J.E.Sipe, Phys. Rev. Lett. **64**, 1797 (1990).
 16. К.Л.Литвиненко, А.Горшунов, В.И.Гринев и др., ЖЭТФ **109**(2), 665 (1996).
 17. T.Yajima and Y.Taira, J. Phys. Soc. Jap. **47**, 1620 (1979).
 18. J.Erland et al., Phys. Rev. **B50**, 15047 (1994).