

РЕЗОНАНСНОЕ ГИПЕРКОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА LO-ФОНОНАХ В КРИСТАЛЛЕ GaN

Л.Е. Семенова

Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук,
ул. Вавилова 38, 119991 Москва, Россия,
sl@kapella.gpi.ru

Представлены результаты теоретического исследования резонансного гиперкомбинационного рассеяния света на LO-фононах в кристалле GaN структуры вюрцита с учетом экситонов Ванье в качестве промежуточных виртуальных состояний электронной системы. Рассмотрены различные последовательности промежуточных экситонных состояний.

Ключевые слова: гиперкомбинационное рассеяние; полупроводник; экситон.

RESONANT HYPER-RAMAN SCATTERING OF LIGHT BY LO-PHONONS IN A GaN CRYSTAL

L.E. Semenova

Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences,
38 Vavilov Str., 119991 Moscow, Russia,
sl@kapella.gpi.ru

The theoretical treatment of the hyper-Raman scattering (HRS) of light by LO-phonons under two-photon excitation near the absorption edge is given for a GaN crystal of the wurtzite structure. The HRS is considered for the scattering geometry $z(yyz)x$. The Wannier excitons are taken into account as intermediate virtual states of an electronic system. The contributions of different sequences of intermediate excitonic states to the HRS are considered.

Keywords: hyper-Raman scattering; semiconductor; exciton.

Введение

При гиперкомбинационном рассеянии (ГКР) в результате взаимодействия двух квантов возбуждающего излучения с элементарными возбуждениями среды происходит рождение одного кванта рассеянного света. Особый интерес представляет ГКР в полупроводниках при двухфотонном возбуждении вблизи края поглощения, поскольку позволяет получать информацию о механизмах рассеяния. Резонансное ГКР света на оптических фононах наблюдалось в ряде полупроводников [1-3]. В работах [4-5] было показано, что основной вклад в ГКР вносит внутризонный фреilihовский механизм рассеяния, которому соответствует последовательность промежуточных экситонных состояний s - p - s .

В представленной работе рассматривается резонансное ГКР света на LO-фононах в кристалле GaN структуры вюрцита для геометрии рассеяния $z(yyz)x$.

Теоретическая модель

При двухфотонном возбуждении вблизи края поглощения полупроводника стоксово однофононное ГКР может описываться следующей последовательностью процессов: поглощение двух фотонов возбуждающего излучения с частотой ω_L и поляризацией ϵ_L , рождение фонона с частотой ω_F и излучение фотона рассеянного света (ω_S , ϵ_S). В представленной работе рассматриваются экситоны Ванье в качестве промежуточных состояний электронной системы и внутризонный фреilihовский механизм экситон-фононного взаимодействия в приближении нулевого волнового вектора фонона.

В кристалле GaN структуры вюрцита, как известно, валентная зона v связана с p -уровнями и в центре зоны Бриллюэна расщеплена вследствие анизотропии кристалла и спин-орбитального взаимодействия на три близко-лежащие подзоны симметрии Γ_9 , Γ_7 и Γ_7 [6-7]. Экситоны, образованные электронами с нижней зоны проводимости s и дырками с подзон Γ_9 , Γ_7 и Γ_7 относятся к экситонным сериям A, B и C, соответственно [6].

Поскольку в рассматриваемой в данной работе геометрии рассеяния $z(yyz)x$ последовательности промежуточных экситонных состояний, относящихся к одной серии, s - p - s не вносят вклад в ГКР, стоит рассмотреть процессы, включающие двухфотонные переходы в s -экситонные состояния, которые можно описывать в рамках как двухзонной, так и трехзонной моделей [8, 9]. В первом случае этому процессу соответствует последовательность промежуточных экситонных состояний p - s - p [5], т.е. он включает слабо-запрещенные дипольные переходы в экситонные состояния p -типа, которые описываются матричными элементами [8-10]:

$$\Pi_{\Lambda 0} = \epsilon_{\alpha} \sum_{j_c, j_v} M_{j_c j_v}^{\alpha' \alpha} \left(\hat{p}_{\alpha'} \chi_{j_c j_v}^{\lambda}(\vec{r}) \right) \Big|_{r=0}, \quad (1)$$

где $\hat{p}_{\alpha} = -i\hbar \partial / \partial r_{\alpha}$, $\chi_{cv}^{\lambda}(\mathbf{r})$ – волновая функция относительного электронно-дырочного движения, j_c и j_v обозначают состояния электрона в вырожденной зоне проводимости s и дырки в вырожденной зоне валентности v , соответственно. Параметр $M_{cv}^{\alpha\beta}$ определяется соотношением [8, 10]:

$$M_{cv}^{\alpha\beta} = \frac{1}{m} \sum_i \left[\frac{\pi_{ci}^{\alpha} \pi_{iv}^{\beta}}{E_{ci}} + \frac{\pi_{ci}^{\beta} \pi_{iv}^{\alpha}}{E_{vi}} \right], \quad (2)$$

где π_{cv} – межзонный матричный элемент оператора импульса. Поскольку зонная структура кристалла известна, то с применением правил отбора можно определить ненулевые параметры $M_{cv}^{\alpha\beta}$. Матричные элементы дипольных переходов между s - и p -экситонными состояниями имеют вид [9]:

$$\Pi_{\Lambda\Lambda'} = \varepsilon_{\alpha} \sum_{j_c, j_v, j_c', j_v'} [\delta_{j_c j_c'} M_{j_c j_c'}^{\alpha\alpha} - \delta_{j_c j_v'} M_{j_c j_v'}^{\alpha\alpha}] \times \langle \chi_{j_c j_c'}^{\lambda'} | \hat{p}_{\alpha} | \chi_{j_c j_v'}^{\lambda} \rangle \quad (3)$$

В рамках трехзонной модели для двухфотонных переходов в экситоны s -типа в качестве промежуточных состояний рассматриваются s -экситоны, связанные с более глубокой зоной валентности v' или вышележащей зоной проводимости c' [9]. Таким образом, рассматриваемый процесс ГКР может описываться с помощью двухзонной и трехзонной моделей [5].

Результаты и их обсуждение

В геометрии рассеяния $z(yyz)x$ возможны процессы ГКР, включающие двухфотонные переходы в s -экситонные состояния В и С серий. Были рассмотрены вклады трехзонной модели и последовательностей промежуточных экситонных состояний, относящихся к одной серии, p - s - p в ГКР. Поскольку расщепление между подзонами много меньше, чем ширина запрещенной зоны, можно показать, что вклады этих процессов рассеяния в сечение ГКР зависят от $C_{13} = M_{c_1 v_3}^{ZZ} M_{c_1 v_3}^{XX}$, где предполагается, что v_3 относится к подзоне В (Γ_7).

Вследствие сложной расщепленной валентной зоны кристалла также возможны дипольные переходы между s - и p -экситонами, относящимися к разным подзонам. С учетом этих переходов в рассматриваемой геометрии рассеяния последовательность промежуточных экситонных состояний s - p - s также вносит вклад в ГКР, который зависит от параметров $M_{j_c j_v}^{\alpha\alpha}$.

Для GaN были выполнены оценки частотной зависимости сечения ГКР $d\sigma/d\Omega$ с учетом вкладов последовательностей промежуточных состояний s - p - s , последовательностей промежуточных экситонных состояний одной серии p - s - p , и механизма рассеяния, который включает двухфотонный переход в s -экситонные состояния и описывается в рамках трехзонной модели. При этом предполагалось, что основной вклад в $M_{j_c j_v}^{\alpha\alpha}$ вносят члены, связанные с дипольными переходами в ближайшую разрешенную зону, которая в рассматриваемом случае является нижней зоной проводимости c . Матричные элементы межзонных дипольных переходов оценивались с помощью модели почти свободных электронов. При суммировании по промежуточным экситонным состояниям использовался метод функций Грина [5,11]. Расчеты были выполнены с учетом $\hbar\omega_P = 0.091$ эВ [12], полуширины экситонных линий $\Gamma_A = \Gamma_B = 0.006$ эВ и $\Gamma_C = 0.014$ эВ [13] и параметров кристалла, полученных в работе [6]: ширина запрещенной зоны $E_{cv} = 3.504$ эВ; расщепление

между подзонами $E_{AB} = 0.006$ эВ и $E_{BC} = 0.037$ эВ; экситонный ридберг $R_A = R_B = 0.02$ эВ и $R_C = 0.018$ эВ; приведенная масса экситона $\mu_A = \mu_B = 0.13m$ и $\mu_C = 0.12m$, где m – масса электрона. При вычислении вклада трехзонной модели в ГКР в качестве промежуточных состояний рассматривались экситоны, образованные электроном с вышележащей зоны проводимости c' и дыркой с верхней валентной зоны v . При этом предполагалось, что $E_{cv} \approx 10$ эВ [14]. В подзонах Γ_7 происходит смешивание волновых функций u_1 и u_5 , преобразующихся по неприводимым представлениям Γ_1 и Γ_5 , соответственно [7]. Для $|q_7|^2$, определяющего часть волновых функций u_1 в верхней валентной зоне Γ_7 , из измеренных сил осцилляторов в работе [15], было получено, что $|q_7|^2 \approx 0.28$. Поскольку параметры $M_{cv}^{\alpha\beta}$ неизвестны, в данной работе расчеты были выполнены для трех случаев $C_{13} = 1, 2$ и 5 . Результаты представлены на рис.1. Как видно из рисунка, на частотной зависимости $d\sigma/d\Omega$ небольшой пик, соответствующий двухфотонному резонансу с экситонным уровнем $B_{n=1}$, заметен при $C_{13} = 5$.

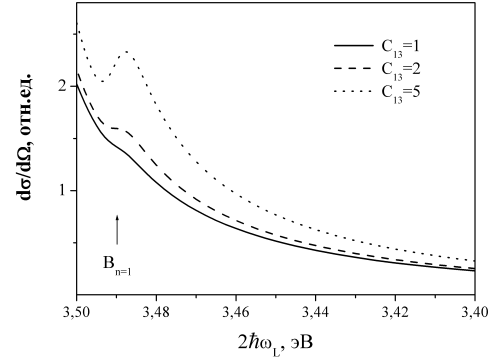


Рис. 1. Поперечное сечение ГКР света на LO-фононах в зависимости от удвоенной энергии фотонов возбуждающего излучения

Fig. 1. The cross section of the HRS of light by LO-phonons as a function of the doubled energy of photons of exciting radiation

Процесс ГКР, соответствующий последовательности промежуточных состояний p - s - p , также может включать дипольные переходы между экситонами, относящимися к разным подзонам. Причем, их влияние на частотную зависимость сечения процесса ГКР, включающего двухфотонные переходы на s -экситонные состояния, может оказаться заметным, т.к. вклады трехзонной модели и последовательностей промежуточных состояний одной серии p - s - p противоположны по знаку [5, 9]. Были получены выражения для вкладов в ГКР последовательностей промежуточных состояний, относящихся к разным подзонам, p - s - p , которые, как оказалось, зависят не только от $M_{c_1 v_3}^{ZZ}$ и $M_{c_1 v_3}^{XX}$, но и $M_{c_1 v_1}^{ZX}$, где v_1 относится к подзоне А (Γ_9). А для оценки соответствующих параметров $M_{j_c j_v}^{\alpha\alpha}$ в этом случае необходимо также учитывать переходы на нижележащую валентную зону v' ($E_{vv'} \approx 1.1$ эВ [13]). На рис. 2 показана частотная зависимость сечения рассеяния, вычисленная для процесса ГКР, включающего

двухфотонные переходы в s -экситонные состояния с учетом переходов между подзонами. Расчеты были выполнены для $|M_{c1v3}^{XX}| = |M_{c1v1}^{ZX}|$ (кривая 1), $|M_{c1v1}^{ZX}| \ll |M_{c1v3}^{XX}|$ (кривая 2), $|M_{c1v3}^{ZX}|/|M_{c1v3}^{XX}| = 2$ (кривая 3). На рисунке также показано сечение ГКР, при вычислении которого не учитывались переходы между экситонами, относящимися к разным подзонам (кривая 4).

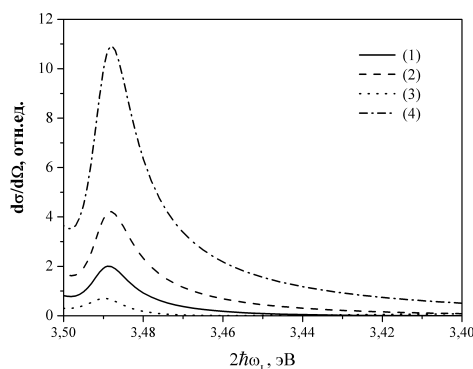


Рис. 2. Поперечное сечение ГКР, вычисленное с учетом механизма рассеяния, который включает двухфотонные переходы в s -экситонные состояния.

Fig. 2. The HRS cross section calculated, taking into account the scattering mechanism including the two-photon transitions to the s -exciton states.

Закключение

В работе представлен анализ резонансного ГКР света на LO-фононах в GaN для геометрии рассеяния $z(yyz)x$ с учетом различных последовательностей промежуточных экситонных состояний. Показано, что процессы ГКР включающие дипольные переходы между s - и p -экситонами, связанными с разными подзонами, могут оказывать влияние на частотную зависимость сечения рассеяния.

Библиографические ссылки

- Inoue K., Yoshida K., Minami F., Kato Y. Two-photon resonant hyper-Raman scattering by optic phonons due to the 2P exciton of ZnSe. *Phys. Rev B* 1992; 45(15): 8807-8810.
- Watanabe K., Inoue K., Minami F. Resonant phenomena of hyper-Raman scattering of optic phonons in TiO₂ crystal. *Phys. Rev. B* 1992; 46(4): 2024-2033.
- Maslov V.A., Ondriash K.K., Polivanov Yu.N., Prokhorov K.A., Semenova L.E., Chuzavkov Yu.L. Observation of resonant hyper Raman scattering of light in CdS crystal using a tunable optical parametric oscillator. *Laser Physics* 1996; 6(1): 132-143.
- Garcia-Cristobal A., Cantarero A., Trallero-Giner C., Cardona M. Resonant hyper-Raman scattering in semiconductors. *Phys. Rev. B* 1998; 58(16): 10443-10451.
- Semenova L.E., Prokhorov K.A. Theoretical investigation of the resonant hyper-Raman scattering by optical phonons. *Журнал экспериментальной и теоретической физики* 2003; 123(5): 1048-1058.
- Chen G.D., Smith M., Lin J.Y., Jiang H.X., Wei S.-H. Khan M.A. et al. Fundamental optical transitions in GaN. *Appl. Phys. Lett.* 1996; 68(20): 2784-2786.
- Gutsche E., Jahne E. Spin-orbit splitting of the valence band of wurtzite type crystals. *Phys. Stat. Sol.* 1967; 19(2): 823-832.

- Mahan G.D. Theory of two-photon spectroscopy in solids. *Phys. Rev.* 1968; 170(3): 825-838.
- Rustagi K.C., Pradere F., Mysyrowicz A. Two-photon absorption in Cu₂O. *Phys. Rev. B* 1973; 8(6): 2721-2732.
- Denisov M.M., Makarov V.P. Longitudinal and transverse excitons in semiconductors. *Phys. Stat. Sol. (b)* 1973; 56(1): 9-59.
- Hostler L. Coulomb Green's functions and the furry approximation. *J. Math. Phys.* 1964; 5(5): 591-611.
- Siegle H., Kaczmarczyk G., Filippidis L., Litvinchuk A.P., Hoffmann A., Thomsen C. Zone-boundary phonons in hexagonal and cubic GaN. *Phys. Rev. B* 1997; 55(11): 7000-7004.
- Tchounkeu M., Briot O., Gil B., Alexis J.P., Aulombard R.-L. Optical properties of GaN epilayers on sapphire. *J. Appl. Phys.* 1996; 80(9): 5352-5360.
- Rubio A., Corkill J.L., Cohen M.L., Shirley E.L., Louie S.G. Quasiparticle band structure of AlN and GaN. *Phys. Rev. B* 1993; 48(16): 11810-11816.
- Gil B., Alemu A. Optical anisotropy of excitons in strained GaN epilayers grown along the <1010> direction. *Phys. Rev. B* 1997; 56(19): 12446-12453.

References

- Inoue K., Yoshida K., Minami F., Kato Y. Two-photon resonant hyper-Raman scattering by optic phonons due to the 2P exciton of ZnSe. *Phys. Rev B* 1992; 45(15): 8807-8810.
- Watanabe K., Inoue K., Minami F. Resonant phenomena of hyper-Raman scattering of optic phonons in TiO₂ crystal. *Phys. Rev. B* 1992; 46(4): 2024-2033.
- Maslov V.A., Ondriash K.K., Polivanov Yu.N., Prokhorov K.A., Semenova L.E., Chuzavkov Yu.L. Observation of resonant hyper Raman scattering of light in CdS crystal using a tunable optical parametric oscillator. *Laser Physics* 1996; 6(1): 132-143.
- Garcia-Cristobal A., Cantarero A., Trallero-Giner C., Cardona M. Resonant hyper-Raman scattering in semiconductors. *Phys. Rev. B* 1998; 58(16): 10443-10451.
- Semenova L.E., Prokhorov K.A. Theoretical investigation of the resonant hyper-Raman scattering by optical phonons. *JETP* 2003; 96(5): 922-931.
- Chen G.D., Smith M., Lin J.Y., Jiang H.X., Wei S.-H. Khan M.A. et al. Fundamental optical transitions in GaN. *Appl. Phys. Lett.* 1996; 68(20): 2784-2786.
- Gutsche E., Jahne E. Spin-orbit splitting of the valence band of wurtzite type crystals. *Phys. Stat. Sol.* 1967; 19(2): 823-832.
- Mahan G.D. Theory of two-photon spectroscopy in solids. *Phys. Rev.* 1968; 170(3): 825-838.
- Rustagi K.C., Pradere F., Mysyrowicz A. Two-photon absorption in Cu₂O. *Phys. Rev. B* 1973; 8(6): 2721-2732.
- Denisov M.M., Makarov V.P. Longitudinal and transverse excitons in semiconductors. *Phys. Stat. Sol. (b)* 1973; 56(1): 9-59.
- Hostler L. Coulomb Green's functions and the furry approximation. *J. Math. Phys.* 1964; 5(5): 591-611.
- Siegle H., Kaczmarczyk G., Filippidis L., Litvinchuk A.P., Hoffmann A., Thomsen C. Zone-boundary phonons in hexagonal and cubic GaN. *Phys. Rev. B* 1997; 55(11): 7000-7004.
- Tchounkeu M., Briot O., Gil B., Alexis J.P., Aulombard R.-L. Optical properties of GaN epilayers on sapphire. *J. Appl. Phys.* 1996; 80(9): 5352-5360.
- Rubio A., Corkill J.L., Cohen M.L., Shirley E.L., Louie S.G. Quasiparticle band structure of AlN and GaN. *Phys. Rev. B* 1993; 48(16): 11810-11816.
- Gil B., Alemu A. Optical anisotropy of excitons in strained GaN epilayers grown along the <1010> direction. *Phys. Rev. B* 1997; 56(19): 12446-12453.