Письма в ЖЭТФ, том 94, вып. 4, с. 339 – 342 © 2011 г. 25 августа

Неупругое рассеяние света дипольными экситонами

В. М. Ковалев[△○], *А. В. Чаплик*[△□1)]

[△] *Институт физики полупроводников Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

[○] *Новосибирский государственный технический университет, 630095 Новосибирск, Россия*

[□] *Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия*

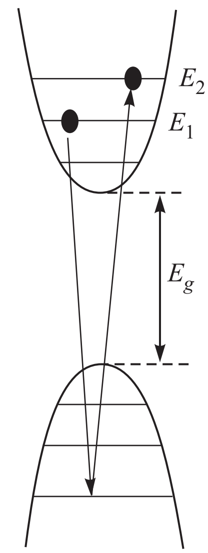
Поступила в редакцию 29 июня 2011 г.

Рассчитано сечение неупругого рассеяния света на системе пространственно непрямых экситонов. Показано, что существуют два канала резонансного рассеяния, связанные с переходами через "вакуумное" и двухэкситонное состояния кристалла, вклады которых в амплитуду рассеяния компенсируют друг друга. Поэтому при рассеянии на экситонах для частоты, близкой к ширине запрещенной зоны, фактор резонансного усиления отсутствует.

Пространственно непрямые экситоны, возникающие в двойных квантовых или достаточно широких одиночных квантовых ямах, представляют значительный интерес для исследования. Прежде всего, конечно, речь идет о бозе-конденсации и вообще о коллективных эффектах в системе взаимодействующих бозе-частиц с ненулевым дипольным моментом. Пространственное разделение электронов и дырок обеспечивает достаточно долгое время жизни дипольных экситонов для того, чтобы их можно было рассматривать как "нормальные" частицы и проводить с ними транспортные (растекание, диффузия, дрейф в неоднородном поле) и оптические эксперименты (см., например, [1, 2]).

В представляемой работе мы рассматриваем рамановское рассеяние непрямыми экситонами. Поскольку такой экситон обладает центром инверсии в плоскости структуры, ИК и комбинационные спектры подчиняются правилу альтернативного запрета, если ограничиться лишь внутризонными переходами. Тогда (как и в обычных молекулах) рамановское рассеяние дает информацию о расстояниях между уровнями внутреннего движения экситона, не связанными разрешенным электродипольным ИК-переходом.

Обычно в экспериментах по неупругому рассеянию света используется падающая электромагнитная волна с частотой ω, близкой к расстоянию между зонами кристалла. Это приводит к усилению рассеянного света: фактор резонансного усиления пропорционален $(\omega^2 - E_g^2)^{-2}$, где E_g – величина межзонной щели. Типичный пример этого приведен на рисунке. Здесь в квантовой точке заселена валентная зона и (частично) зона проводимости; изображенный



процесс соответствует стоксову спутнику со сдвигом частоты $E_2 - E_1$. Естественно было бы ожидать аналогичного резонанса и при рассеянии на экситонах, когда сдвиги частот в рассеянном излучении дают расстояния между уровнями относительного движения электрона и дырки. Однако, как будет показано ниже, в случае экситонов имеет место точная компенсация двух резонансных вкладов и усиления рассеянного света при $\omega \approx E_g$ не происходит.

Будем исходить из известной формулы Крамерса–Гейзенберга [3], применимой для нерелятивистских систем в дипольном приближении ($ka, k'a \ll 1$, где k, k' – волновые числа падающего и рассеянного фотонов, a – размер рассеивающей системы):

$$d\sigma=\frac{\omega\omega'^3}{\hbar^2c^4}\left|\sum_n\left[\frac{(\mathbf{e}'^*\mathbf{d}_{fn})(\mathbf{e}\mathbf{d}_{ni})}{E_n-E_i-\omega}+\frac{(\mathbf{e}\mathbf{d}_{fn})(\mathbf{e}'^*\mathbf{d}_{ni})}{E_n-E_f+\omega}\right]\right|^2 d\Omega, \tag{1}$$

[1)]e-mail: chaplik@isp.nsc.ru

где $\mathbf{d}_{ni}$ – матричные элементы дипольного момента, E_n – уровни энергии рассеивателя, $\mathbf{e}$, $\mathbf{e}'$ – векторы поляризации света. В нашем случае начальному состоянию системы E_i соответствует присутствие в ней одного экситона. Следовательно, энергия E_i близка к ширине запрещенной зоны E_g (нуль отсчета энергий выбирается на вершине валентной зоны). Резонансный вклад в рассеяние при $\omega \approx E_g$ возникает от *двух* слагаемых в формуле (1) (в этом состоит принципиальное отличие от ситуации, изображенной на рисунке):

1) $E_n = 0$, т.е. в промежуточном состоянии кристалл вернулся на свой "вакуумный" уровень, экситонов нет. Поскольку энергия кристалла с экситоном в конечном состоянии E_f также близка к E_g, возникает резонансный вклад от второго слагаемого в (1) (считаем $\omega > 0$);

2) $E_n = E_i + E_\gamma$ (где через γ обозначены квантовые числа экситона), т.е. в промежуточном состоянии имеются два экситона, i и γ. Тогда резонанс дает первое слагаемое, т.к. $E_\gamma \approx E_g \approx \omega$.

Рассмотрим для простоты линейно поляризованную падающую волну (вектор $\mathbf{e}$ лежит в плоскости структуры) и такую же рассеянную, т.е. $\mathbf{e} = \mathbf{e}'$, причем оба вектора вещественны. Тогда числители двух слагаемых суммы (1) совпадают для каждого n. Волновая функция экситона имеет вид произведения $F(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)\psi_c(\mathbf{r}_e)\psi_v(\mathbf{r}_h)$, где F – огибающая, ψ_c, ψ_v – одночастичные волновые функции зоны проводимости и валентной зоны. Вычислим произведения матричных элементов $(\mathbf{ed}_{fn})(\mathbf{ed}_{ni})$ для упомянутых выше двух случаев. При этом огибающую волновой функции экситона в состоянии вакуума кристалла запишем в виде $\delta(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h)$ (электрон и дырка находятся в одной ячейке). Это наиболее простой и наглядный способ вычисления. Более строгий подход, использующий технику вторичного квантования, приводит к тем же результатам (см. [4]).

Для случая 1 ($E_n = 0$) имеем

$$
\begin{gathered}
(\mathbf{ed}_{f0})(\mathbf{ed}_{0i}) = \\
= (\mathbf{ed}_{cv})^2 \int F_f^*(\mathbf{r}'_e, \mathbf{r}'_h)\delta(\mathbf{r}'_e - \mathbf{r}'_h) d\mathbf{r}'_e d\mathbf{r}'_h \times \\
\times \int \delta(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h) F_i(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) d\mathbf{r}_e d\mathbf{r}_h = \\
= \int F_f^*(\mathbf{r}'_e, \mathbf{r}'_e) d\mathbf{r}'_e \int F_i(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_e) d\mathbf{r}_e. \qquad (2)
\end{gathered}
$$

Для случая 2 ($E_n = E_i + E_\gamma$) имеем:

$$
\begin{gathered}
\mathbf{ed}_{ni} = \mathbf{ed}_{vc} \int F_\gamma^*(\mathbf{r}'_e, \mathbf{r}'_h) F_i^*(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)\delta(\mathbf{r}'_e - \mathbf{r}'_h) \times \\
\times F_i(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) d\mathbf{r}'_e d\mathbf{r}'_h d\mathbf{r}_e d\mathbf{r}_h = \int F_\gamma^*(\mathbf{r}'_e, \mathbf{r}'_e) d\mathbf{r}'_e; \\
\mathbf{ed}_{fn} = \mathbf{ed}_{cv} \int F_f^*(\mathbf{r}''_e, \mathbf{r}''_h)\delta(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h) F_\gamma(\mathbf{r}''_e, \mathbf{r}''_h) \times \\
\times F_i(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) d\mathbf{r}''_e d\mathbf{r}''_h d\mathbf{r}_e d\mathbf{r}_h = \delta_{f\gamma} \int F_i(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_e) d\mathbf{r}_e; \\
(\mathbf{ed}_{fn})(\mathbf{ed}_{ni}) = \\
= (\mathbf{ed}_{cv})^2 \delta_{f\gamma} \int F_\gamma^*(\mathbf{r}'_e, \mathbf{r}'_e) d\mathbf{r}'_e \int F_i(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_e) d\mathbf{r}_e. \qquad (3)
\end{gathered}
$$

Во втором случае мы пишем несимметризованные по перестановкам экситонов волновые функции. Видно, что симметризация дала бы тот же результат изза ортогональности огибающих с разными индексами ($i \neq f \neq \gamma$). Энергетические знаменатели равны в первом случае $-E_i - \omega$ и $-E_f + \omega$, а во втором $E_\gamma - \omega$ и $E_i + \omega$. Из-за множителя $\delta_{f\gamma}$ в формуле (3) от суммы по γ во втором случае остается лишь слагаемое с $E_\gamma = E_f$, вклад которого в точности компенсирует член с $E_n = 0$ в (2). Таким образом, полный вклад резонансных слагаемых в сечение рассеяния обращается в нуль.

Причина существования двух резонансных промежуточных состояний заключается в том, что начальное (до рассеяния) состояние системы не является основным: в нем уже имеется один (долгоживущий) экситон. В аналогичном случае возбужденного атома наличие второго возбужденного электрона в промежуточном состоянии не привело бы к сокращению вкладов двух каналов рассеяния. Дело в том, что из-за электрон-электронного взаимодействия энергия состояния с двумя возбужденными электронами не равна сумме соответствующих одноэлектронных возбуждений. В результате значения энергетических знаменателей в формуле Крамерса–Гейзенберга не равны друг другу с противоположными знаками. Кроме того, волновые функции не распадаются на одноэлектронные множители. Однако в рассматриваемой нами задаче учет взаимодействия экситонов в промежуточном состоянии не спасает положения, т.к. вклад в полную энергию от короткодействующего взаимодействия пары частиц обратно пропорционален объему (площади) системы. Для двумерного случая диполь-дипольное отталкивание является короткодействующим потенциалом. Можно вычислить поправку первого порядка ΔE для потенциала межэкситонного взаимодействия

$$
\begin{gathered}
V_{\rm int} = \frac{e^2}{|\mathbf{R} - \mathbf{R}' + \dfrac{m_h}{M}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')|} + \\
+ \frac{e^2}{|\mathbf{R} - \mathbf{R}' - \dfrac{m_e}{M}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')|} -
\end{gathered}
$$

$$
-\frac{e^2}{\sqrt{\left(\mathbf{R}-\mathbf{R}'+\frac{m_h}{M}\mathbf{r}+\frac{m_e}{M}\mathbf{r}'\right)^2+d^2}}-
-\frac{e^2}{\sqrt{\left(\mathbf{R}-\mathbf{R}'-\frac{m_e}{M}\mathbf{r}-\frac{m_h}{M}\mathbf{r}'\right)^2+d^2}}, \qquad (4)
$$

где $\mathbf{R}, \mathbf{R}'$ – координаты центров масс двух экситонов, $\mathbf{r}, \mathbf{r}'$ – расстояния в плоскости структуры между электроном и дыркой в каждом из них, $M = m_e + m_h$, d – плечо диполя. Интересно, что величина ΔE не зависит от вида волновых функций внутреннего движения экситонов. Действительно, актуальны только экситоны с нулевым полным импульсом. Поэтому векторы $\mathbf{R}, \mathbf{R}'$ не входят явно в волновую функцию экситонной пары и после интегрирования (4) по $d\mathbf{R}, d\mathbf{R}'$ зависимость от внутренних координат $\mathbf{r}, \mathbf{r}'$ исчезает. Результат имеет вид

$$
\Delta E = \frac{2\pi e^2 d}{\varepsilon S}, \qquad (5)
$$

где S – площадь образца, ε – фоновая диэлектрическая проницаемость.

Перейдем к рассмотрению нерезонансного рассеяния. Для доведения расчетов до конечных аналитических формул воспользуемся известной моделью непрямого экситона, в которой вертикальное расстояние между электроном и дыркой d много больше амплитуды колебаний частиц в плоскости структуры, $d \gg a$ [5]. Потенциал электрон-дырочного взаимодействия в такой модели в главном порядке по a/d является параболическим. Отделяя движение центра масс экситона [6], получим (при нулевом полном импульсе) уравнение Шредингера для относительного движения ($\hbar = 1$):

$$
\left(-\frac{\nabla^2_{\mathbf{r}}}{2\mu}-\frac{ie\gamma}{2\mu c}\left[\mathbf{r},\partial_{\mathbf{r}}\right]\mathbf{B}+\frac{\mu\Omega^2\mathbf{r}^2}{2}\right)\psi=\left(E+\frac{e^2}{\varepsilon d}\right)\psi,
$$

$$
\Omega^2=\frac{e^2B^2}{4\mu^2c^2}+\frac{e^2}{\varepsilon\mu d^3},\ \mu=\frac{m_em_h}{M},\ \gamma=\frac{m_e-m_h}{M}, \qquad (6)
$$

где $\mathbf{B}$ – магнитное поле, перпендикулярное плоскости структуры.

Собственные значения энергии в параболической модели равны

$$
E_{n,m}=\Omega(2n+|m|+1)+m\Gamma,\quad \Gamma=e\gamma B/2\mu c, \qquad (7)
$$

а волновые функции имеют вид

$$
\psi=C_{n,m}\exp(-\alpha\rho^2/2)\rho^{|m|}\Phi(-n,|m|+1,\mu\Omega\rho^2), \qquad (8)
$$

где Φ – вырожденная гипергеометрическая функция. Правила отбора по азимутальному квантовому числу m для дипольных переходов дают $\Delta m = \pm 1$. Комбинационное рассеяние (двухфотонный процесс) из основного состояния $n = 0, m = 0$ в соответствии с указанным правилом отбора может привести к переходам на пять нижних возбужденных уровней: $E_{0,\pm 1} = 2\Omega \pm \Gamma$, $E_{1,0} = 3\Omega$ и $E_{0,\pm 2} = 3\Omega \pm 2\Gamma$, причем уровень $E_{0,\pm 1}$ может быть только промежуточным. Таким образом, возможны три перехода, приводящие к изменению частоты рассеянного света: $|0,0\rangle \to |0,1\rangle \to |0,2\rangle$, $|0,0\rangle \to |0,-1\rangle \to |0,-2\rangle$ и $|0,0\rangle \to |0,\pm 1\rangle \to |1,0\rangle$. Вычисляя матричные элементы и энергии в формуле (1), убеждаемся, что сечения рассеяния всех трех процессов обращаются в нуль. Хотя спектр двумерного осциллятора в магнитном поле неэквидистантен из-за слагаемого $m\Gamma$ в (7), тем не менее, как и в случае одномерного гармонического осциллятора, смещенное рассеяние в дипольном приближении невозможно.

Ненулевой вклад в сечение неупругого рассеяния на дипольных экситонах возникает лишь при учете ангармоничности в потенциале электрон-дырочного взаимодействия в дипольном экситоне. Низшая ангармоническая поправка имеет вид

$$
U=-3e^2(\mathbf{r}_e-\mathbf{r}_h)^4/8\varepsilon d^5. \qquad (9)
$$

Учет ее приводит, во-первых, к сдвигу уровней внутренней энергии экситона, а во-вторых, к изменению матричных элементов в (1) из-за возмущения волновых функций. Сдвиги интересующих нас уровней в главном порядке по U равны

$$
\Delta_{0,0}=-\frac{3}{4}A,\quad \Delta_{0,\pm1}=-\frac{9}{4}A,\quad \Delta_{1,0}=-\frac{21}{4}A,
$$

$$
\Delta_{0,\pm2}=-9A,\quad \text{где}\quad A=\frac{e^2}{\varepsilon\mu^2\Omega^2d^5}. \qquad (10)
$$

Чтобы учесть вклад от поправок к волновым функциям, воспользуемся известной формулой для возмущения матричного элемента [7]. Учитывая, что $\langle\rho^4\rangle_{nm}^{n'm'} \propto \delta_{m,m'}$, получим, например, для d_{00}^{01}

$$
(d_{00}^{01})^{(1)}=(d_{00}^{01})^{(0)}+
+\sum_{k,l}\frac{U_{00}^{k0}(d_{01}^{kl})^{(0)}}{E_{00}-E_{kl}}+\sum_{k,l}\frac{U_{k1}^{01}(d_{kl}^{00})^{(0)}}{E_{01}-E_{kl}}. \qquad (11)
$$

Здесь подразумевается, что в первой сумме k и l не равны нулю одновременно, а во второй в суммирование не входит член с $k = 0, l = 1$. Верхние индексы “(0)” и “(1)” означают порядок по учету ангармоничности. Вычисляя радиальные интегралы, убеждаемся в существовании правил отбора для матричного элемента дипольного момента между основным ($n = 0$) и произвольным высшим состояниями:

$d^{01}_{k0} = d^{00}_{k1} \propto \delta_{k0}$ ($\int_0^\infty \exp(-\rho^2)\rho^2\Phi(-n,2,\rho^2)\rho d\rho = = F(-n,2,2,1) \propto \delta_{n0}$, где F – гипергеометрическая функция). Поэтому первая поправка к матричному элементу обращается в нуль, т.е. достаточно учесть лишь эффект, связанный со сдвигом уровней. Окончательно находим, например, для перехода $|0,0\rangle \to |0,-1\rangle \to |0,-2\rangle$, дающего наименьший сдвиг частоты стоксовой линии $\triangle\omega = 2(\Omega - \Gamma)$:

$$d\sigma = (\mathbf{ed}_{cv})^4 \left[\frac{21}{4}\frac{A}{(\omega-\Omega+\Gamma)^2}\right]^2 \frac{\omega(\omega-\triangle\omega)^3 d\Omega}{\hbar^2 c^4}, \quad (12)$$

где в знаменателе мы пренебрегли сдвигом уровней за счет ангармонизма. Соответствующий параметр малости есть $d \gg a^*, a^* = \hbar^2\varepsilon/\mu e^2$.

Итак, мы показали, что неупругое рассеяние света на “заранее приготовленном” экситоне не имеет резонансного усиления при частоте возбуждения, близкой к ширине запрещенной зоны. В случае непрямых экситонов в двойной квантовой яме при условии $d \gg a^*$ возникает дополнительная малость сечения рассеяния, связанная с обращением в нуль сечения для гармонического двумерного осциллятора (то же и в магнитном поле). Конечный результат получается лишь при учете ангармонизма.

Благодарим Э.Г. Батыева и М.В. Энтина за полезные замечания. Работа поддержана РФФИ (грант # 11-02-00060), фондом “Династия” и программами РАН.

1. A. A. High, E. E. Novitskaya, L. V. Butov et al., Science **321**, 229 (2008); A. A. High, A. K. Thomas, G. Grosso et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 087403 (2009); G. Grosso, J. Graves, A. T. Hammack et al., Nature Photonics **3**, 577 (2009).
2. А. В. Горбунов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **80**, 210 (2004); Письма в ЖЭТФ **83**, 178 (2006); Письма в ЖЭТФ **84**, 390 (2006); Письма в ЖЭТФ **87**, 797 (2008).
3. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Релятивистская квантовая теория*, М.: Наука, 1968, § 60.
4. Ч. Киттель, *Квантовая теория твердых тел*, М.: Наука, 1967.
5. Yu. E. Lozovik and A. M. Ruvinsky, JETP **112**, 1791 (1997); В. М. Ковалев, А. В. Чаплик, Письма в ЖЭТФ **92**, 208 (2010).
6. Л. П. Горьков, И. Е. Дзялошинский, ЖЭТФ **53**, 717 (1967).
7. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика, Нерелятивистская теория*, М.: Наука, 1989, § 38.