

Министерство образования и науки РФ
Федеральное государственное бюджетное образовательное
учреждение высшего образования
«Пензенский государственный университет»
Факультет приборостроения, информационных технологий и
электроники
Кафедра «Физика»

Курсовая работа по дисциплине:
«Физика полупроводников »
на тему: «Комбинационное рассеяние света»

Выполнил: ст. гр. 14ПФ1

Ярославцева Е.А.

Проверил: д.ф.-м.н., профессор

Кревчик В.Д.

Принято к защите _____

Дата, подпись преподавателя

Оценка _____

Оценка, подпись преподавателя

Пенза 2017 год

Министерство образования и науки РФ
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение
высшего образования

«Пензенский государственный университет»

Факультет приборостроения, информационных технологий и
электроники
Кафедра «Физика»

«УТВЕРЖДАЮ»

Заведующий кафедрой

 М.Б.Семенов
(подпись, инициалы, фамилия)

«11» декабря 2017г.

ЗАДАНИЕ

по курсовой работе студента

Ярославцева Елена Александровна

по дисциплине «Физика полупроводников»

Группа 14ПФ1

1. Тема работы: Комбинационное рассеяние света

2. Руководитель д.ф-м.н., профессор Кревчик В.Д.

3. Срок сдачи студентом законченной работы 11.12.2017

4. Перечень подлежащих разработке вопросов:

- Изучить понятие комбинационного рассеяния света.
- Ознакомиться с основными методами комбинационного рассеяния.
- Рассмотреть спектроскопию комбинационного рассеяния света.

Подпись студента

Подпись преподавателя




Содержание

Введение.....	4
1 Общие сведения.....	5
2 Рассеяние на межподзонных электронных возбуждениях	6
3 Рассеяние на размерно-квантованных оптических фононах.....	9
4 Рассеяние на акустических колебаниях со "сложенным" спектром.....	16
5 Спектроскопия комбинационного рассеяния света.....	22
6 Макроскопическая теория неупругого рассеяния света фононами.....	23
7 Микроскопическая теория рамановского рассеяния.....	27
Заключение	29
Список использованных источников	31

Введение

Рассеянием света называется явление, заключающееся в том, что взаимодействие среды со световым пучком приводит к появлению электромагнитного излучения того же или иного спектрального состава в направлениях, отличающихся от первоначального. Оно имеет место и в том случае, когда световой квант попадает в область оптической прозрачности среды и не может перевести систему на более высоколежащий реальный уровень.

Дальнейшие исследования показали, что спектр рассеянного света содержит кроме спектральных линий, характеризующих падающий на среду свет, дополнительные линии, симметрично расположенные с низкочастотной и высокочастотной сторон около спектральных линий первичного света .

Комбинационное рассеяние света наблюдается в различных средах – газах, жидкостях, кристаллах. Причиной изменения частоты рассеяния является комбинированный процесс, в результате которого под действием падающего светового кванта появляется другой световой квант и одновременно в среде происходит поглощение или освобождение определенной порции энергии.

Целью курсовой работы является освоение комбинационного рассеяния света.

Для достижения цели были поставлены следующие задачи:

- Изучить рассеяние на межподзонных электронных возбуждениях, рассеяние на размерно-квантованных оптических фононах, рассеяние на акустических колебаниях со "сложенным" спектром;
- Рассмотреть спектроскопия комбинационного рассеяния света, макроскопическая теория неупругого рассеяния света фононами, микроскопическая теория рамановского рассеяния.

1 Общие сведения

В объемных полупроводниках свет может рассеиваться на свободных носителях, включая рассеяние на флуктуациях плотности заряда (одночастичные возбуждения и плазмоны) и флуктуациях спиновой плотности (переходы с переворотом спина), на фононах, оптических (рамановское, или комбинационное рассеяние) или акустических (мандельштам - бриллюэновское рассеяние), и статических дефектах (релеевское рассеяние). В гетероструктурах с квантовыми ямами и сверхрешетках появляются дополнительные возможности: в структурах с квантовыми ямами вклад в рассеяние могут вносить не только внутриволновые переходы, но и переходы между электронными подзонами размерного квантования (рассеяние на межволновых флуктуациях плотности заряда или спиновой плотности); комбинационное рассеяние обогащается участием размерно-квантованных и интерфейсных оптических фононов, а также акустических фононов со "сложенным" спектром в

$$\omega_1$$

сверхрешетках [1]. Будем использовать обозначения ω_1 , $\mathbf{q}_1$, $\mathbf{e}_1$ и ω_2

, $\mathbf{q}_2$, $\mathbf{e}_2$ для частоты, волнового вектора и единичного вектора поляризации у исходной (первичной) и рассеянной (вторичной) электромагнитных волн соответственно. Если частица (или квазичастица), участвующая в процессе рассеяния, сталкивается с фотоном и изменяет

свою энергию и волновой вектор,

то

законы сохранения гласят:

$$\hbar\omega_1 + \hbar\mathbf{k}_1 = \hbar\omega_2 + \hbar\mathbf{k}_2, \quad \mathbf{q}_1 + \mathbf{k}_1 = \mathbf{q}_2 + \mathbf{k}_2. \quad (1.1)$$

Если же рассеяние фотона сопровождается испусканием или поглощением элементарного (квазичастичного) возбуждения, характеризуемого частотой Ω и волновым вектором $\mathbf{Q}$, то законы сохранения принимают вид

$$\omega_1 = \omega_2 + \Omega, \quad \mathbf{q}_1 = \mathbf{q}_2 + \mathbf{Q}, \quad \omega_1 + \Omega = \omega_2, \quad \mathbf{q}_1 + \mathbf{Q} = \mathbf{q}_2. \quad (1.2)$$

При испускании (поглощении) возбуждения частота фотона уменьшается (возрастает) на Ω . При этом говорят о рассеянии в стоксову или антистоксову область спектра, а процесс рассеяния называют стоксовым или антистоксовым соответственно. При одновременном поглощении света в

$\mathbf{q}_1$.

среде, когда векторы комплексны, в закон сохранения следует подставлять вещественные части соответствующих волновых векторов.

Структуры с квантовыми ямами не обладают трансляционной симметрией вдоль оси роста z . Поэтому закон сохранения компонент волновых векторов на ось z исключается из (1.1), (1.2).

2 Рассеяние на межподзонных электронных возбуждениях

Рассмотрим рассеяние света на межподзонных электронных

$$eV + \hbar\omega_1 \rightarrow eV' + \hbar\omega_2$$

переходах

в структуре с квантовой

ямой n -типа, в которой валентная зона заполнена, а в зоне проводимости имеется 2D-электронный газ. Это рассеяние представляет собой двухквантовый процесс. Он включает поглощение первичного фотона с переходом электрона из валентной подзоны в подзону и последующее излучение вторичного фотона с переходом равновесного электрона e_1 в вакантное состояние в подзоне [1]. Предположим для простоты, что энергия фотона $\hbar\omega_1$ лежит вблизи запрещенной зоны квантовой ямы. Тогда при расчете вероятности рассеяния света можно учесть только резонансный вклад в матричном элементе второго порядка и записать спектральную интенсивность вторичного излучения в виде

$$I_{e_2, \omega_2} = e_2 \cdot \omega_2 \sum_{i,j} M_{ij}^2 = \sum_i f_i (1 - f_i) \frac{\delta E_i + \hbar\omega_2 - E_i - \hbar\omega_1}{\dots}$$

$$M_{ij} \propto A_0 \sum_{i,j} \frac{\langle i | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | j \rangle \langle i | \mathbf{e}_2 \mathbf{p} | j \rangle}{E_j - E_i - \hbar\omega_1}, \quad (1.3)$$

Здесь i, j - электронные состояния в подзонах соответственно, E_i - энергия электрона в состоянии i , f_i - электронная функция распределения, $\langle i | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | j \rangle$ - междузонный матричный элемент оператора $\mathbf{r}$, A_0 - скалярная амплитуда векторного потенциала первичной электромагнитной волны. Используя (1.3) и пренебрегая кулоновским взаимодействием между носителями и смешиванием валентных подзон при $\mathbf{k} \neq 0$, можно получить следующее выражение для дифференциального сечения рассеяния на междузонных возбуждениях в одиночной квантовой яме

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} = \frac{\hbar\omega_2}{J_1 S} \frac{\Delta W}{\Delta\omega_2 \Delta\Omega_2} = \frac{\hbar}{c^4 S} \left(\frac{\omega_2}{\omega_1} \right)^2 \sum_{\mathbf{v} \neq \mathbf{k}} \sum_{\mathbf{s} \neq \mathbf{s}} |\mathbf{e}_{2\alpha} \mathbf{e}_{1\beta} R_{\alpha\beta}(\mathbf{v}' \mathbf{s}', \mathbf{v} \mathbf{s})|^2 \times f_{\mathbf{v}\mathbf{k}} (1 - f_{\mathbf{v}'\mathbf{k}'})$$

где введен тензор рассеяния

$$R_{\alpha\beta}(v's^z, vs) = \frac{e^2}{m_0^2} \sum_{vv'} \frac{i_{ev^z, vv^z} i_{ev, vv^z}}{E_{ev^z k} - E_{ev^z k} - \hbar\omega_1} \sum_m p_{cs^z, vm}^{\beta} p_{vm, cs}^{\alpha} \quad (1.5)$$

ΔW - вероятность рассеяния света в единицу времени в элемент телесного угла $\Delta\Omega_z$ и в частотный интервал $\Delta\omega_z$, S - площадь образца в плоскости интерфейсов, I_1 - интенсивность исходного излучения, индекс v пробегает три валентные подзоны объемного полупроводника, включая подзоны тяжелых и легких дырок, а также подзону, отщепленную спин-орбитальным взаимодействием, m - спиновый индекс дырки, $P_{vm, cs}^{\alpha}$ - междузонный матричный элемент, рассчитанный между объемными блоховскими функциями, $\int$ - интегралы перекрытия [1]. Рассматривается геометрия рассеяния назад при нормальном падении, когда падающая и рассеянная волны распространяются навстречу друг другу и параллельно нормали к плоскости интерфейсов. В силу второго закона сохранения (1.1) волновой вектор электрона k в процессе рассеяния не меняется.

При междузонных оптических переходах четность огибающих функций сохраняется. Поэтому она сохраняется и при рассеянии на межподзонных переходах. Следовательно, рассеяние разрешено для переходов $e1 \rightarrow e3$ и запрещено для переходов $e1 \rightarrow e2$. В реальных условиях отступление от указанного правила отбора может быть связано с дополнительным рассеянием фотовозбужденных электронно-дырочных пар на статических дефектах и несовершенствах гетероструктуры, а также с гибридизацией состояний тяжелых и легких дырок при $k \neq 0$. В ассимметричных квантовых ямах, например, односторонне легированных, основной причиной рассеяния на межподзонных возбуждениях $e2 \rightarrow e1$

является асимметричная форма огибающих $\varphi_{ev}(\mathbf{z}), \varphi_{vv}(\mathbf{z})$, при которой интегралы перекрытия, $i_{ev,vv}$ могут одновременно быть отличными от нуля. Выражение (1.4) выведено в одночастичном приближении, когда переданная энергия фотона совпадает с разностью одночастичных энергий $E_1 - E_i$. Учет кулоновского взаимодействия между электронами приводит к перенормировке энергии межподзонного возбуждения, вследствие чего рамановские сдвиги при рассеянии на межподзонных возбуждениях с сохранением и переворотом спина различаются [1].

3 Рассеяние на размерно-квантованных оптических фононах

Микроскопически рассеяние света на фононах в нелегированном полупроводнике или полупроводниковой структуре описывается как процесс третьего порядка с составным матричным элементом

$$\sum_{nn'} \frac{M_{0n} V_{nn'} M_{n'0}}{(E_{nn'} - \hbar\omega_1 \pm \hbar\Omega - i\hbar\Gamma_{nn'})(E_n - \hbar\omega_1 - i\hbar\Gamma_n)} \quad (1.6)$$

где M_{0n} - матричный элемент однофотонного перехода из основного состояния системы $|0\rangle$ в возбужденное состояние $|n\rangle$, представляющее

собой электрон - дырочную пару или экситон и характеризуемое энергией

возбуждения E_n и затуханием $V_{nn'}$ - матричный элемент электрон - фононного взаимодействия, включающего также взаимодействие фонона с дыркой; Ω - частота фонона. Как и при выводе (1.3), (1.5), здесь учтен только резонансный вклад. Перед актом рассеяния электронная подсистема

находится в основном состоянии $|0\rangle$, фононная подсистема включает N

фононов с частотой Ω и волновым вектором Q , имеется $N(\omega_1)$ первичных фотонов, а фотоны с энергией кванта $\hbar\omega_2$ отсутствуют. После акта рассеяния электронная подсистема вновь оказывается в основном состоянии, число первичных фотонов уменьшается на единицу в стоксовом процессе рассеяния и убывает на единицу при антистоксовом рассеянии. Согласно (1.6) на первой ступени трехступенчатого процесса рассеяния первичный

фотон возбуждает электронную подсистему в промежуточное состояние $|n\rangle$.

Затем рассеяние на фононе вызывает квантовый переход из $|n\rangle$ в другое

промежуточное состояние $|n'\rangle$, на заключительном этапе электронная

подсистема возвращается в основное состояние, излучая при этом рассеянный фотон [1].

Чтобы понять особенности оптических колебаний в гетероструктурах, рассмотрим слой квантовой ямы с шириной a . Оптические фононы в

объемных материалах характеризуются слабой дисперсией с ниспадающей дисперсионной кривой. При малых значениях волновых векторов можно ограничиться членами нулевого и второго порядков в разложении частоты, например, продольного оптического фонона

$$\Omega_{LO}(Q) \approx \Omega_{LO}(0) - \frac{\hbar Q^2}{2M},$$

Где для удобства введен положительный параметр M , имеющий размерность массы. Если частоты $\Omega_{LO}(0)$ в слоях ямы и барьера заметно различаются, то оптические фононы испытывают размерное квантование аналогично тому, как это происходит с электронными состояниями в квантовой яме. В результате составляющая волнового вектора фонона Q_z принимает дискретные значения, близкие к $\frac{\pi v}{a}$, где v - положительные целые числа. В континуальном приближении относительный сдвиг

$$u = u_C - u_A$$

между катионной (C) и анионной (A) подрешетками рассматривается как непрерывно изменяющаяся величина. При решении задачи о собственных колебаниях нужно вводить граничные условия для u и скалярного потенциала $\Phi(r)$ электрического поля, порождаемого этими колебаниями.

При упрощенном описании размерно-квантованных LO- фононов в периодических структурах с квантовыми ямами полагают, что на интерфейсах в нуль обращается относительный сдвиг u_z . Тогда для

$$\Phi(z) \propto \cos\left(\frac{\pi v z}{a}\right)$$

скалярного потенциала имеем , если v нечетно, и , если v четно. В работе [2] предложены решения

(1.7)

которые удовлетворяют одновременно условию обращения в нуль как для $\Phi(z)$, так и для $u_z(z)$. При этом учитывается, что линейная функция z

удовлетворяет однородному уравнению . Константы находятся из условия обращения в нуль функции и ее первой производной на интерфейсах $z = \pm \frac{a}{2}$. При таком описании мода $v=1$ исключается из набора (1.7), так как ее нужно последовательно рассматривать как интерфейсную моду. Физически интерфейсный оптический фонон представляет собой поверхностное возбуждение (поверхностный фонон), передаваемое от интерфейса к интерфейсу и распространяющееся вдоль оси z неограниченно далеко (в пренебрежении процессами рассеяния и распада оптического фонона).

В симметричных структурах с квантовыми ямами GaAs/AlAs(001) (точечная группа D_{2d}) размерно-квантованные оптические фононы характеризуются симметрией A_1 и B_2 . Напомним, что в группе D_{2d} простейшими примерами базисных функций для представлений A_1 и B_2 могут служить константа и координата z соответственно. Согласно (1.7) для фононных мод с четными v скалярный потенциал имеет симметрию A_1 , а огибающая функция $u_v(z)$ преобразуется по представлению B_2 , тогда как для

ф

фононов с нечетными v , функции и $u_v(z)$ соответствуют представлениям B_2 и A_1 . Заметим, что симметрия оптического колебания определяется симметрией скалярного потенциала .

Возвращаясь к рассмотрению рассеяния света на размерно-квантованных оптических фононах, напомним, что для краткого обозначения

геометрии рассеяния обычно используются четыре символа - два в скобках и два вне скобок - например $x(yz)y$, $z(xx)\bar{z}$ или $z(\sigma_+, \sigma_-)z$. Внутренние символы указывают поляризацию, внешние - направление распространения первичного и вторичного фотонов. В частности, конфигурация $z(xy)\bar{z}$ означает, что исходное излучение распространяется вдоль оси z и поляризовано по оси x , а рассеянный свет распространяется в обратном направлении и регистрируется его составляющая, поляризованная по y .

В рассеяние $n \rightarrow$ электронно-дырочного возбуждения на продольном

оптическом фононе, т.е в рассеяние, описываемое в (1.6) матричным элементов, вносят вклад два механизма: фрелиховский, или дальнодействующий, и деформационный, или короткодействующий. В первом механизме LO-фонон воздействует на электронную подсистему через скалярный потенциал $\Phi(z)$ электрического поля индуцированного оптическим колебанием решетки. При деформационном механизме происходит индуцированное фононом смешивание состояний тяжелых и

легких дырок, т.е в этом случае переход $n \rightarrow$ совершается за счет

взаимодействия дырки с оптическим фононом [1].

При возбуждении вблизи края фундаментального поглощения в квантовой яме GaAs/AlAs основной вклад в рассеяние вносят промежуточные состояния $e1-hh1$. Запишем огибающую двухчастичной волновой функции в виде $f_n(\rho)\varphi_e(z_e)\varphi_{hh1}(z_h)$, где $f_n(\rho)$ - огибающая относительного движения электрона и дырки в плоскости интерфейсов в

экситонных состояниях или электронно-дырочных состояниях из континуума. Тогда при рассеянии на LO-фононе за счет дальнедействующего механизма имеем

При симметричных функциях $\varphi_e^2(z)$, $\varphi_{hh1}^2(z)$ этот интеграл отличен от нуля лишь для симметричного потенциала $\Phi(z)$. Это согласуется с правилом отбора, следующим из теоретико-группового анализа: оптические моды с четными ν (симметрия A_1) рамановски активны в параллельных конфигурациях $z(xx)\bar{z}$ или $z(yy)\bar{z}$.

Деформационный механизм проявляется в недиагональном рассеянии $z(xy)\bar{z}$ на продольных оптических колебаниях симметрии B_z , т.е с нечетными ν .

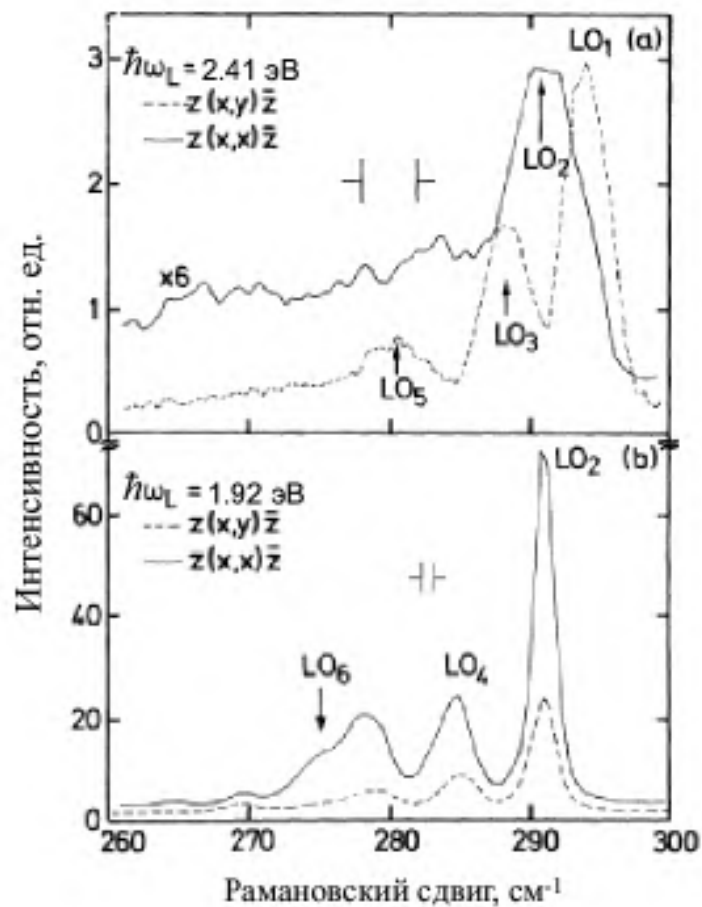


Рисунок 1.1

Рисунок 1.1 - спектры нерезонансного (а) и резонансного (b) комбинационного рассеяния на размерно-квантованных оптических фононах в толстобарьерной сверхрешетке GaAs/AlAs с шириной слоев $a = 20\text{\AA}$, $b = 60\text{\AA}$. Пик справа от частоты фонона LO_6 обусловлен интерфейсной модой.

На (рис.1.1) показаны спектры комбинационного рассеяния на размерно-квантованных оптических фононах, измеренные на толстобарьерной сверхрешетке GaAs/AlAs, содержащей 400 двойных слоев шириной $a = 20\text{\AA}$, $b = 60\text{\AA}$. Фононные моды с квантовым числом v обозначены в виде LO_v . При нерезонансном возбуждении сечения рассеяния на фононах LO_1 и LO_{21} , наблюдаемые соответственно в конфигурациях $z(xy)\bar{z}$ и $z(xx)\bar{z}$, сопоставимы по величине. В согласии с предсказаниями микроскопической теории при резонансном возбуждении, когда $\hbar\omega_{1,2} \approx E_{e1,hh1}^0$ и фрелиховский механизм преобладает над деформационным, наблюдается только рассеяние на LO_{21} -фононах. Наличие тех же линий LO_{21} , хотя и заметно меньшей интенсивности, в скрещенной геометрии $z(xy)\bar{z}$ может быть связано с влиянием статических дефектов на фрелиховское взаимодействие носителей с оптическими фононами.

В работе [2], влияние пьезоэлектрических полей ультразвуковых колебаний на комбинационное рассеяние света в гетероструктурах GaAs/AlGaAs:

представлен теоретический анализ резонансных электроупругих колебаний гибридной структуры GaAs/AlGaAs-LiNbO₃ с границей раздела скользящего типа, а также эффекта перераспределения концентрации двумерного электронного газа в гетероструктуре генерируемыми пьезоэлектрическими полями. Расчеты проведены методом конечных элементов. Экспериментально зарегистрированные спектры комбинационного рассеяния света с временным разрешением обнаруживают

особенности поведения LO-фонон-плазмонной моды, соответствующие теоретически рассчитанному перераспределению концентрации.

Комбинационное рассеяние в сверхрешетках и квантовых ямах является привлекательной альтернативой неупругому рассеянию нейтронов для определения дисперсии оптических фононов в объемном полупроводнике [1].

4 Рассеяние на акустических колебаниях со "сложенным" спектром

Ограничимся здесь рассмотрением рассеяния света на продольных акустических (LA) колебаниях в полупроводниковых сверхрешетках. Дисперсионное уравнение для таких колебаний по форме совпадает с уравнением

$$\cos(Kd) = \cos(\mathbf{k}_A \mathbf{a}) \cos(\mathbf{k}_B \mathbf{b}) - \frac{1}{2} \left(N + \frac{1}{N} \right) \sin(\mathbf{k}_A \mathbf{a}) \sin(\mathbf{k}_B \mathbf{b})$$

в котором нужно подставить в качестве $\mathbf{k}_{A,B}$ волновой вектор фонона $\mathbf{k}_j = \frac{\Omega}{s_j}$

(Ω - частота фонона, s_j - скорость продольного звука в материале $j=A,B$), а параметром T является отношение $\frac{\rho_B s_B}{\rho_A s_A}$ (ρ_j - плотность вещества j). Учитывая далее, что для типичных полупроводниковых сверхрешеток параметр

$$T = \frac{\rho_B s_B}{\rho_A s_A}$$

мал по сравнению с единицей, уравнение дисперсии удобно представить в виде

$$\cos(Qd) = \cos(\mathbf{k}_A \mathbf{a} + \mathbf{k}_B \mathbf{b}) - \frac{1}{2} \sin(\mathbf{k}_A \mathbf{a}) \sin(\mathbf{k}_B \mathbf{b}) \epsilon^2, \quad (1.8)$$

где Q - волновой вектор, описывающий распространение блоховского фонона

вдоль главной оси сверхрешетки z , $d=a+b$ - период структуры. В пренебрежении слагаемыми, пропорциональными ϵ^2 , получаем линейную дисперсию

$$Qd = \mathbf{k}_A \mathbf{a} + \mathbf{k}_B \mathbf{b} = \Omega \frac{\mathbf{d}}{\mathbf{s}}, \mathbf{s} = \mathbf{d}(\mathbf{a}\mathbf{s}_A^{-1} + \mathbf{b}\mathbf{s}_B^{-1})^{-1}. \quad (1.9)$$

В схеме приведенных зон волновой вектор задается в первой зоне Бриллюэна

сверхрешетки: $|Q| \leq \frac{\pi}{d}$. В этом случае линейная зависимость (1.9)

превращается в "сложенную" линию, прямые ветки которой описываются формулой

$$\Omega_{lQ} = \bar{s} \left(\frac{2\pi}{d} |l| + |Q| \text{sign} l \right). \quad (1.10)$$

Отсюда следует, например, что в точке $Q=0$ имеются колебания с частотами

Ω , кратными частоте $\Omega_1 = \frac{2\pi\bar{s}}{d}$. Для обозначения ветвей вводится индекс l , пробегающий значения $0, \pm 1, \pm 2, \dots$. Заметим, что при $l=0$ в (1.10) вместо $\text{sign} l$ нужно подставить единицу. При учете второго слагаемого в правой части (1.8) в спектре "сложенных" акустических фононов в точках излома

$Q=0, \left| \pm \frac{\pi}{d} \right|$ появляются запрещенные зоны. При малых значениях ϵ ширина

запрещенной минизоны вблизи частоты Ω_1 равна $2 \left(\frac{\pi}{d} \right) \epsilon \sin[k_A(\Omega_1)a]$.

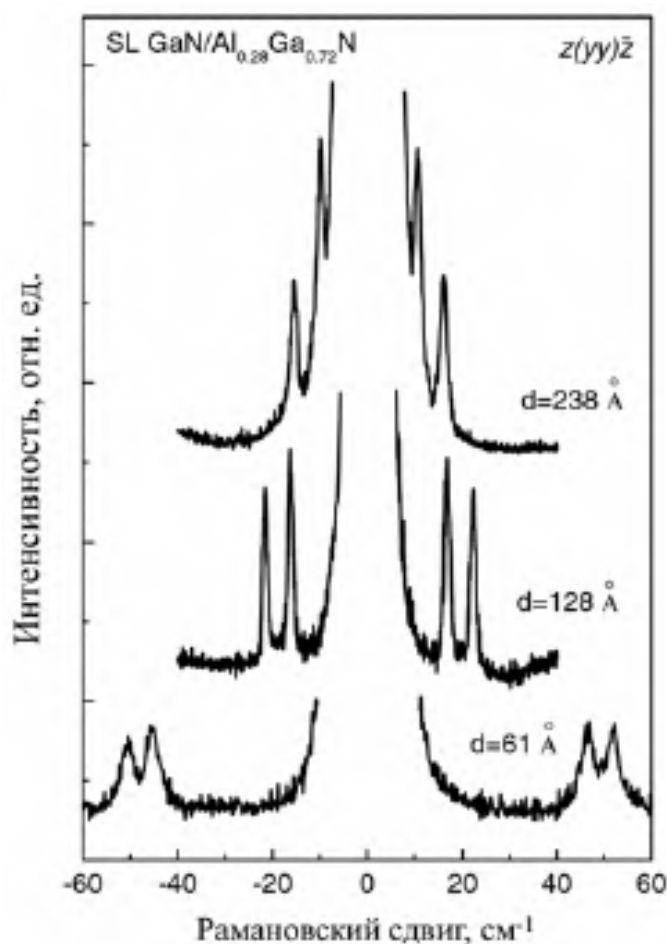


Рисунок 1.2

Рисунок 1.2- спектры рассеяния, измеренные при комнатной температуре в

сверхрешетках $\text{GaN} \frac{\text{Al}_{0.28}}{\text{Al}_0} \text{Ga}_{0.72}\text{N}$ с тремя различными периодами $d = 61, 128$ и $238 \text{ \AA}$. Возбуждение осуществлялось светом длиной волны $\lambda_1 = 488 \text{ нм}$.

Феноменологически рассеяние света на акустических фононах можно описывать, добавляя к материальному соотношению между диэлектрической поляризацией среды P и электрическим полем первичной световой волны E вклад

$$\delta P_a = \delta \chi_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, t) E_\alpha = P_{\alpha\beta\lambda\mu} E_\alpha u_{\lambda\mu}(\mathbf{r}, t).$$

Здесь $u_{\lambda\mu}(\mathbf{r}, t)$ - тензор деформации, возникающей при акустическом колебании, $P_{\alpha\beta\lambda\mu}$ - тензор фотоупругих коэффициентов, который в сверхрешетке зависит от координаты z . При таком описании спектральная интенсивность рассеянного света пропорциональна среднему квадрату флуктуации диэлектрической восприимчивости

где E_0 - амплитуда первичной волны, $\delta\chi(q, \Omega)$ - пространственная и временная фурье-компоненты флуктуации $\delta\chi(\mathbf{r}, t)$.

При рассеянии на LA-фононах в параллельной конфигурации $z(xx)\bar{z}$ или $z(yy)\bar{z}$ вклад вносит только фотоупругий коэффициент $P_{xxzz} = P_{12}$. Разложим функцию $P_{12}(z)$ в ряд Фурье

$$P_{12}(z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} [P^{(m)} \exp(iG_m z)],$$

$$G_m = 2\pi m$$

где

$$(m \neq 0).$$

Блоховская акустическая волна, распространяющаяся в сверхрешетке, представляет собой набор пространственных гармоник с волновыми векторами $\mathbf{G}_m$

векторами $\mathbf{Q} + \mathbf{G}_m$. Оценки показывают, что обычно при рассеянии в сверхрешетках пространственная модуляция фотоупругого коэффициента играет более существенную роль, чем смешивание пространственных гармоник в акустическом фоне. Поэтому сечение рассеяния света на сложном акустическом фоне пропорционально $P(l)^2$.

В короткопериодной сверхрешетке волновой вектор света мал по сравнению с $\frac{\pi}{d}$ и в рассеянии участвуют фононы с малым значением

$$\mathbf{Q} = \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2 \approx 2\mathbf{q}_1$$

. С другой стороны, при рассеянии назад это значение достаточно велико, чтобы можно было использовать линейно-ломанную дисперсию (1.10). В результате спектр рассеяния, помимо пика мандельштам-бриллюэновского рассеяния, отвечающего фонону ветви $l=0$, содержит дублеты ± 1 с не зависящим от l расщеплением $\Delta\omega = 2\bar{s}q_1$ и со средним рамановским сдвигом $\omega_1 - \omega_2 = \pm \frac{\pi \bar{s} |l|}{d}$. Здесь знак $\pm$ отвечает рассеянию в стоксову и антистоксову области спектра.

Экспериментальные спектры рассеяния света в области переданных частот, отвечающей акустическим колебаниям, показаны на рисунке 1.2. Измерения проводились в конфигурации $z(y\bar{y})\bar{z}$ на трех гексональных

сверхрешетках $\text{GaN} \frac{\text{Al}_x}{\text{Al}_0} .28 \text{ Ga}_{0.72} \text{ N}$ с тремя различными периодами. Для каждой структуры в стоксовой и антистоксовой областях спектра удалось наблюдать только дублет, отвечающий "сложенным" акустическим фононам с $\mathbf{l} = \pm 1$. В согласии с теорией расщепление дублета для трех сверхрешеток принимает практически одно и то же значение, а средний рамановский сдвиг этого дублета возрастает по мере убывания периода [1].

В работе [3], резонансное комбинационное рассеяние света и атомно-силовая микроскопия многослойных наноструктур InGaAs/GaAs с квантовыми точками:

Методами атомно-силовой микроскопии, фотолюминесценции и комбинационного рассеяния света исследован переход от двухмерного (2D) псевдоморфного роста к трехмерному (3D) (наноостровковому) в многослойных структурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As/GaAs}$, полученных молекулярно-лучевой эпитаксией. Номинальная концентрация In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ варьировалась от $x=0.20$ до 0.50 . Толщина осаждаемых слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и GaAs составляли 14 и 70 монослоев соответственно. Показано, что при данных толщинах переход 2D--3D имеет место при $x \geq 0.27$. Установлено, что формирование квантовых точек $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ (наноостровков) не сводится к классическому механизму Странского--Крастанова, а существенно модифицируется процессами вертикальной сегрегации атомов In и интердиффузии атомов Ga. В результате $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ может моделироваться 2D слоем с пониженной концентрацией In ($x < 0.20$), переходящим в тонкий слой, включающий наноостровки, обогащенные In ($x > 0.60$). Для многослойных структур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ можно реализовать латеральное выстраивание квантовых точек в цепочки в направлении $[110]$ и улучшение однородности их размеров.

5 Спектроскопия комбинационного рассеяния света

Хотя большая часть света, распространяющегося в среде, пропускается или поглощается в соответствии с законами отражения и преломления (следующими из закона сохранения волнового вектора k), очень малая его часть рассеивается во всех направлениях неоднородностями внутри среды. Эти неоднородности могут быть статическими или динамическими. Такие дефекты, как дислокации в кристалле, являются статическими рассеивателями и рассеивают свет упруго (т.е. без изменения частоты). Флуктуации плотности среды, связанные с колебаниями атомов, представляют собой пример динамических рассеивателей [4]. Другими примерами таких механизмов рассеяния в полупроводниках являются флуктуации плотности заряда или спина. Неупругое рассеяние света акустическими фононами было теоретически предсказано Бриллюэном [5] и позднее, независимо, Мандельштамом [6]. Неупругое рассеяние света молекулярными колебаниями впервые обнаружено Раманом [7], который в 1930 г. был удостоен за свое открытие Нобелевской Премии.

В работе [8], спектрометрия ионного рассеяния и комбинационное рассеяние света в монокристаллах GaS, подвергнутых облучению водородом с энергией 140 кэВ:

методами комбинационного рассеяния света и резерфордовского обратного рассеяния исследована степень структурного беспорядка слоистых кристаллов GaS до и после имплантации водородом (H^+) с энергией 140 кэВ. Показано, что распределение компонентов кристалла по глубине однородно и до доз $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ стехиометрический состав компонентов соединения соблюдается. Экспериментальное значение критической дозы начала аморфизации составляет около $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ и находится в соответствии с вычисленным значением. Результаты, полученные методом комбинационного рассеяния света, подтверждают сохранение кристалличности структуры и начала процесса аморфизации.

В настоящее время рамановское рассеяние и резонансное рамановское рассеяние стали стандартными спектроскопическими методами исследования полупроводников. Далее мы приведем сначала макроскопическую теорию рамановского рассеяния на фононах в твердых телах, а затем рассмотрим микроскопическую теорию и обсудим резонансное рамановское рассеяние.

6 Макроскопическая теория неупругого рассеяния света фононами.

Рассмотрим бесконечную среду с электрической восприимчивостью χ . Временно будем считать среду изотропной, так что χ может быть представлена скаляром. Если в среде существует плоское синусоидальное электромагнитное поле, которое описывается выражением

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \mathbf{r} - \omega_i t), \quad (2.1)$$

то индуцируется синусоидная поляризация $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \mathbf{r} - \omega_i t). \quad (2.2)$$

Ее частота и волновой вектор те же самые, что и у падающего электромагнитного излучения, а амплитуда равна

$$\mathbf{P}(\mathbf{k}_i, \omega_i) = \chi(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \quad (2.3)$$

Если среда находится при конечной температуре, то в χ существуют флуктуации, связанные с термически возбужденными колебаниями атомов. Смещения атомов $\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t)$, соответствующие фононам, могут быть представлены в виде плоских волн:

$$(2.4)$$

с волновым вектором $\mathbf{q}$ и частотой ω_q . Эти атомные колебания приводят к изменению χ . Предположим, что характеристические частоты электронов,

которые определяют χ много больше, чем ω_0 , и, следовательно, можно считать χ функцией Q .

Последнее называется квазистатическим или адиабатическим приближением. Обычно амплитуды таких колебаний при комнатной температуре малы по сравнению с постоянной решетки и мы можем разложить χ в ряд Тейлора по $Q(r, t)$:

$$\chi(\mathbf{k}_i, \omega_i; Q) = \chi_0(\mathbf{k}_i, \omega_i) + (\partial\chi/\partial Q)_0 Q(r, t) + \dots, \quad (2.5)$$

где χ_0 - электрическая восприимчивость среды, в которой флуктуации отсутствуют. Второй член в (2.5) соответствует осциллирующей восприимчивости, индуцированной решеточной волной $Q(r, t)$. Подставив (2.5) в (2.3) выразим поляризацию среды в присутствии атомных колебаний $P(r, t, Q)$ как

$$P(r, t, Q) = \epsilon_0 E(r, t) + P_1(r, t, Q), \quad (2.6)$$

где

$$P_1(r, t, Q) = F_1(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \mathbf{r} - \omega_i t) \quad (2.7)$$

представляет собой поляризацию, колеблющуюся в фазе с падающим излучением, а

$$F_1(\mathbf{k}_i, \omega_i) = \epsilon_0 \chi_1(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \mathbf{r} - \omega_i t) \quad (2.8)$$

является волной поляризации, индуцированной фононом (или другой подобной флуктуацией). Волны поляризации могут также индуцироваться непрямым путем продольными оптическими (LO) фононами посредством их макроскопических электрических полей [4], однако мы временно пренебрежем этим эффектом.

Для того, чтобы определить частоту и волновой вектор $\mathbf{P}_{ind}$

$$\mathbf{P}_{ind} \cdot \mathbf{r}$$

перепишем в виде

$$\times F_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t) = \quad (2.9 \text{ a})$$

$$(\mathbf{k}_i, \omega_i t) \times \\ \times \{ \cos[(\mathbf{k}_i + \mathbf{q})\mathbf{r} - (\omega_i + \omega_0)t] + \cos[(\mathbf{k}_i - \mathbf{q})\mathbf{r} - (\omega_i - \omega_0)t] \} \quad (2.9 \text{ б})$$

Поляризация $\mathbf{P}_{ind}$ состоит из двух синусоидных волн: волны,

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k} - \mathbf{q}$$

сдвинутой в стоксову сторону, с волновым вектором и частотой $\omega_s = \omega_i - \omega_0$ и волны, сдвинутой в антистоксову сторону, с волновым вектором

$$\mathbf{k}_{AS} = \mathbf{k} + \mathbf{q}$$

и частотой $\omega_{AS} = \omega_i + \omega_0$.

Излучение, связанное с этими двумя индуцированными волнами поляризации, называется стоксовым рассеянным светом и антистоксовым рассеянным светом соответственно. Поскольку энергия фонона равна ω_i

разности между частотой падающего фотона и частотой рассеянного фотона ω_s , эта разность называется рамановской частотой или

рамановским сдвигом (употребляются также выражения стоксов сдвиг и антистоксов сдвиг). Обычно рамановские спектры представляют в виде зависимости интенсивности рассеянного света от рамановской частоты.

На языке нелинейной оптической спектроскопии рассеяние света можно рассматривать как параметрический процесс, поскольку в нем происходит периодическое изменение параметра (а именно, электрической восприимчивости) среды. Однако вызванное изменение линейно относительно смещения фонона и электрического поля и, следовательно, рассеяние света не является нелинейным оптическим процессом, как оптические параметрические процессы, т.е. вызванное рамановское рассеяние представляет собой нелинейный оптический процесс. Фононная модуляция восприимчивости на частоте ω_0 создает боковые полосы на частотах $\omega_i \pm \omega_0$ относительно возбуждающего излучения с частотой ω_i [4]. В терминологии радиотехники рассеяние света можно рассматривать как вид частотной модуляции (FM). Возбуждающее излучение играет роль несущей волны.

Отметим, что в рассмотренных выше процессах рассеяния происходит сохранение как частоты, так и волнового вектора. В результате последнего волновой вектор q фононов при однофононном рамановском рассеянии должен быть меньше удвоенного волнового вектора фотона. Если для возбуждения рамановского рассеяния используются лазеры в видимом диапазоне и показатель преломления образца примерно равен 3, то q имеет порядок 10^6 см^{-1} . Эта величина составляет примерно 1/100 часть от размера зоны Бриллюэна в полупроводнике. Поэтому в однофононном рамановском рассеянии зондируются только фононы центра зоны Бриллюэна. В таких экспериментах можно обычно считать q равным нулю [4].

Разложение (2.5) можно легко продолжить до второго и более высоких порядков по смещениям фононов. Члены второго порядка приводят к индуцированной поляризации с частотами, сдвинутыми от лазерной частоты на $\pm \omega_a \pm \omega_b$ (где $\omega_a > \omega_b$ частоты двух участвующих в процессе

фононов). Эти индуцированные поляризации приводят к двухфононному рамановскому рассеянию. В случае двух различных фононов пики с рамановскими частотами называют суммарными и разностными модами соответственно. Если два фонона идентичны, результирующий двухфононный рамановский пик называется обертоном. Сохранение волнового вектора при двухфононном рамановском рассеянии удовлетворяется, если $\mathbf{q}_a \pm \mathbf{q}_b \approx 0$, где $\mathbf{q}_a$ и $\mathbf{q}_b$ - волновые векторы двух фононов a и b соответственно. При рассеянии на обертоне это условие означает, что $\mathbf{q}_a = -\mathbf{q}_b$, т.е. оба фонона имеют одинаковые по величине и противоположно направленные волновые векторы. Таким образом, при двухфононном рамановском рассеянии на величины индивидуальных волновых векторов не накладываются такие ограничения, как при однофононном рассеянии (только их сумма должна быть близка к нулю). Поэтому спектр рамановского рассеяния на обертоне после деления рамановской частоты пополам, является мерой фононной плотности состояний, хотя и модифицированной множителем, зависящим от заполнения фононов и от эффективности рассеяния.

Для рамановского рассеяния в высокомонохроматичных рентгеновских лучах нельзя предполагать, что $\mathbf{q} \approx 0$. Действительно, волновые векторы рассеяния, охватывающие всю зону Бриллюэна, могут быть получены изменением угла между векторами $\mathbf{k}$ падающего и рассеянного фотонов [9], [10].

7 Микроскопическая теория рамановского рассеяния

Для микроскопического описания неупругого рассеяния света в полупроводниках на фононах необходимо указать состояние трех систем, принимающих в нем участие:

- падающий и рассеянный фотоны с частотами соответственно;
- электроны в полупроводнике;

- фонон, принимающий участие в рассеянии.

В начальном состоянии $|i\rangle$ (до того, как происходит рассеяние) имеется, соответственно, $N(\omega_i)$ и $N(\omega_s)$ фотонов с частотами ω_i и ω_s . В полупроводнике существует также N_q фононов (предполагается, что температура T не равна нулю), а все электроны находятся в основном состоянии (т.е. валентные зоны полностью заполнены, а зона проводимости

пуста). В конечном состоянии $|f\rangle$, после стоксова рамановского рассеяния,

$N(\omega_i)$ уменьшается на единицу, в то время как $N(\omega_s)$ и N_q

увеличиваются на единицу. С электронами изменений не происходит. На первый взгляд может показаться, что электроны не принимают участия в этом процессе рассеяния, и поэтому его можно описать гамильтонианом взаимодействия только между фотонами и фононами. Однако интенсивность данного взаимодействия очень мала, если только частоты фотонов и фононов не сравнимы по величине. Хотя возможность прямого (спонтанного) процесса рассеяния фотонов на фононах и рассматривалась теоретически [11], такой процесс, насколько нам известно, не был обнаружен экспериментально. Не исключено, что основным препятствием для подобного эксперимента является отсутствие лазеров и приемников отдельных фотонов в далекой инфракрасной области [4].

Если для возбуждения рамановского рассеяния в полупроводниках используются фотоны в видимой области спектра, то они в основном взаимодействуют с электронами посредством гамильтониана электрон-

$$H_{eR} = \mathbf{v} \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$$

излучательного взаимодействия . Рассеяние происходит в результате трех этапов.

Этап 1. Падающий фотон возбуждает полупроводник в промежуточное состояние $|a\rangle$ путем создания электрон-дырочной пары (или экситона).

Этап 2. Электрон-дырочная пара рассеивается в промежуточное состояние $|b\rangle$, испуская фонон посредством гамильтониана электрон-фононного взаимодействия H_{e-ph} .

Этап 3. Электрон-дырочная пара совершает излучательную рекомбинацию из состояния $|b\rangle$, испуская рассеянный фотон.

Таким образом, электроны оказываются посредниками в процессе рамановского рассеяния на фононах, хотя их состояние не меняется по окончании процесса рассеяния . Поскольку переходы электронов являются виртуальными, сохранение энергии для них не обязательно, но волновой вектор должен сохраняться.

Заключение

Видно, что спонтанное излучение рассеянного фотона происходит на этапе 3, поэтому описанный нами процесс называется спонтанным рамановским рассеянием, в отличие от стимулированного рамановского рассеяния. В принципе, такие спонтанные процессы рассеяния могут быть строго описаны только при квантовании поля излучения. Постараемся избежать этого, применив, полуклассический подход. Предположим, что существует векторный потенциал $\mathbf{A}(\omega_s)$, связанный с полем рассеянного излучения, что позволит рассчитать вероятности рамановских переходов. Затем эту вероятность стимулированного рамановского излучения можно

будет преобразовать в вероятность спонтанного рамановского излучения, используя соотношение (2.1) между коэффициентами Эйнштейна A и B .

В таких процессах, как поглощение и отражение частота падающей на образец электромагнитной волны не меняется при взаимодействии с образцом. Микроскопическая теория функции показывает, что фотоны взаимодействуют с электронами в полупроводниках главным образом путем возбуждения межзонных и внутризонных переходов. Межзонные переходы из валентных зон в зону проводимости приводят к возникновению пиков и «плат» в оптических спектрах, которые можно сопоставить с сингулярностями Ван-Хова. Эти сингулярности можно значительно усилить с помощью метода модуляционной спектроскопии в котором измеряются производные от некоторых оптических функций отклика в зависимости от частоты или при внешней модуляции (такой, как электрическое поле или поле напряжений). Коэффициент отражения становится особенно высоким для фотонов с частотами между частотами TO и LO фононов, приводя к давно известному явлению, называемому отражением на остаточных лучах.

Такого процесса излучения как рамановское является чрезвычайно информативным методом для определения частот и симметрии колебательных мод в конденсированных средах. Изучение спектров возбуждения такого рассеяния (называемого резонансным рамановским) представляющее зависимость поперечного сечения рассеяния от энергии падающего фотона, также очень информативно. Было показано, что с их помощью можно определять уровни энергии электронов, электрон-фононное взаимодействие и дисперсию экситонов. Поскольку при резонансном рамановском рассеянии возбуждаются реальные электрон-дырочные пары, как и в случае люминесценции, различие между этими двумя процессами отчасти стирается. В связи с этим появилась следующая точка зрения: что процессы резонансного рассеяния света, особенно многофононные, могут

рассматриваться как форма нетермализованной люминесценции, или горячей люминесценции.

Список использованных источников

1. Федоров А.В. Физика и технология гетероструктур, оптика квантовых наноструктур. Учебное пособие. – СПб: СПбГУ ИТМО, 2009. - 195 с.
2. В.В. Курилюк , О.А. Коротченков., Влияние пьезоэлектрических полей ультразвуковых колебаний на комбинационное рассеяние света в гетероструктурах GaAs/AlGaAs. ФТП.-СПб.:Наука.Т.43,2009. - 449 с.
3. М.Я. Валах , В.В. Стрельчук, А.Ф. Коломыс, Yu.I. Mazur , Z.M. Wang , M. Xiao , G.J. Salamo., Резонансное комбинационное рассеяние света и атомно-

силовая микроскопия многослойных наноструктур InGaAs/GaAs с квантовыми точками. ФТП.-СПб.:Наука.Т.39,2005. - 140 с.

4. Ю П., Кардона М. Основы физики полупроводников / Пер. с англ. И.И. Решиной. Под ред. Б.П. Захарчени. - 3-е изд. - М.: ФИЗМАТЛИТ, 2002. - 560 с.

5. Brillouin L. Scattering of light and X-rays by a transparent homogeneous body: Influence of the thermal agitation (in French)// Ann. Physique. 1922. V. 17. P. 88-122 с.

6. Mandelstam L.I. On light scattering by an inhomogeneous medium (in Russian)// Zh. Russko Fiz. Khim. Obshch (J. Russian Physico-chemical Soc). 1926. V.58. P. 381 с.

7. Raman C.V. A new class of spectra due to secondary radiation// Ind. J. Phys. 1928. V.2. P. 387-400 с.

8. А.А. Гарибов, Р.С. Мадатов, Ф.Ф. Комаров, В.В. Пилько , Ю.М. Мустафаев , Ф.И. Ахмедов , М.М. Джахангиров., Спектрометрия ионного рассеяния и комбинационное рассеяние света в монокристаллах GaS, подвергнутых облучению водородом с энергией 140 кэВ. ФТП.-СПб.:Наука.Т.49,2015. - 599 с.

9. Ruf Г., Serrano J., Cardona M., Pavone P., Pabst M., Krisch M., D'Astuto M., Sushi T., Grzegory /., Leszczynski M. Phonon Dispersion curves in wurtzite-structure GaN determined by inelastic x-ray scattering// Phys. Rev. Lett. 2001. V.

10. Schwoerer-Bohning M., Macrauder A.T., A. Arms D. Phonon Dispersion in Diamond measured by inelastic X-ray scattering// Phys. Rev. Lett. 1998. V. 80. P. 5572-5575.

11. Humphreys L.B., Maradudin A.A. Ionic Raman effect. III. First and second order ionic Raman effect// Phys. Rev. 1972. V. B 6. P. 3886-3897.

