

На правах рукописи
УДК 621.378.4

Авраменко Владимир Григорьевич

**ЛИНЕЙНЫЙ И КВАДРАТИЧНЫЙ ОПТИЧЕСКИЙ ОТКЛИК
ПЕРИОДИЧЕСКИХ КВАНТОВЫХ ЯМ**

Специальность 01.04.21 - лазерная физика

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва - 2007

Работа выполнена на кафедре квантовой электроники физического факультета Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова.

Научный руководитель: кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник
Никулин Александр Александрович

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
профессор Емельянов Владимир Ильич

доктор физико-математических наук,
старший научный сотрудник
Виноградов Алексей Петрович

Ведущая организация: Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН

Защита состоится « 22 » марта 2007 г. в 16 часов 00 минут на заседании диссертационного совета Д 501.001.31 при Московском государственном университете им. М. В. Ломоносова по адресу: 119992, ГСП-2, Москва, Ленинские горы, МГУ, ул. Академика Хохлова, д.1, Корпус нелинейной оптики, аудитория им. С. А. Ахманова.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке физического факультета МГУ им. М. В. Ломоносова.

Автореферат разослан « _____ » _____ 2007 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д 501.001.31,
доцент

Т. М. Ильинова

Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена теоретическому исследованию взаимодействия лазерного излучения с периодическими квантовыми ямами (ПКЯ) — слоистыми наноструктурами (сверхрешетками), в которых квантовые ямы разделены барьерными слоями из материала с широкой запрещенной зоной, что позволяет пренебречь перекрытием волновых функций электронов в соседних квантовых ямах. В работе изучается как линейный, так и квадратичный оптический отклик этих структур.

Актуальность такого исследования обусловлена, в первую очередь, необходимостью разработки теоретических методов и моделей для объяснения экспериментальных результатов, полученных за последнее десятилетие в ходе исследований генерации оптической второй гармоники в ПКЯ, в частности, в ПКЯ-структурах $\text{Si} - \text{SiO}_2$. Технология изготовления последних позволяет получать структуры с несколькими десятками периодов и сверхтонкими квантовыми ямами (слоями аморфного кремния), парциальная толщина которых достигает субнанометровых значений — при сохранении однородности структуры вдоль слоев. Нелинейно-оптические методы, основанные на использовании генерации второй гармоники, обладают высокой чувствительностью к наличию в исследуемых объектах границ раздела и других неоднородностей с характерными пространственными масштабами, лежащими в нанометровом и субнанометровом диапазонах. Для исследования ПКЯ-структур со сверхтонкими квантовыми ямами были успешно использованы такие высокоэффективные методы, как спектроскопия и интерферометрическая спектроскопия генерации второй гармоники. В рамках существующих теоретических моделей адекватная интерпретация полученных экспериментальных данных либо затруднена, либо невозможна вообще в силу, по крайней мере, двух обстоятельств. Во-первых, в субнанометровом диапазоне толщин размерный эффект в резонансном квадратичном отклике ПКЯ, наблюдаемый в эксперименте, обнаруживает существенное отличие от теоретического результата, получаемого в рамках простейшей микроскопической модели (которая, в то же время, вполне удовлетворительно описывает соответствующий размерный эффект в нанометровом диапазоне толщин). Во-вторых, при расчете электромагнитного поля, распространяющегося в ПКЯ-структуре на частотах накачки и второй гармоники, требуется корректный учет существенной нелокальности оптического отклика квантовых ям в направлении, перпендикулярном границам раздела. Отмеченные обстоятельства делают актуальным рассмотрение соответственно микроскопического аспекта проблемы (кванто-

вомеханический расчет линейной и квадратичной нелокальной проводимости сверхтонкой квантовой ямы) и ее макроскопического аспекта (электродинамический расчет распространения излучения в слоистой среде с сильной нелокальностью в направлении, перпендикулярном к слоям). Наконец, в контексте интерпретации экспериментальных данных актуальным является и феноменологический аспект — определение набора параметров, которые характеризуют отклик системы на макроскопическом уровне, могут быть найдены из количественного анализа экспериментальных зависимостей и сохраняют свой физический смысл (в качестве феноменологических параметров) и за пределами применимости использованных микроскопических моделей.

Таким образом, являясь **целью диссертационной работы**, теоретическое изучение генерации второй гармоники при распространении света в периодических квантовых ямах состоит в рассмотрении следующих вопросов:

- квантовомеханическая задача о расчете резонансного вклада в тензоры линейной и квадратичной нелокальной проводимости при учете дополнительных физических факторов, влияющих на размерное квантование поперечного движения электронов в сверхтонких квантовых ямах;
- электродинамическая задача о распространении излучения на частотах накачки и второй гармоники в слоистой среде с существенной нелокальностью линейного и квадратичного отклика слоев в направлении, перпендикулярном границам раздела;
- параметризация квадратичного отклика ПКЯ-структуры — определение совокупности эффективных параметров, которые могут быть найдены из количественного анализа экспериментальных данных и которые сохраняют свой физический смысл в качестве феноменологических характеристик отклика и вне рамок использованных микроскопических моделей.

Научная новизна работы заключается в том, что в ней впервые

- изучено влияние (а) возмущения кристаллического потенциала вблизи границ квантовой ямы и (б) непрямозонного характера закона дисперсии для электронных состояний в объеме полупроводника на размерный эффект в резонансном квадратичном оптическом отклике ПКЯ-структуры со сверхтонкими квантовыми ямами;
- в резонансном двухуровневом приближении, с точностью до членов, линейных по тангенциальной к границам раздела компоненте волнового

вектора, включительно, получены аналитические выражения для тензоров линейной и квадратичной нелокальной проводимости квантовой ямы;

- формализм матриц распространения оптического излучения в слоистой среде обобщен на случай слоев с существенно нелокальным откликом в направлении, перпендикулярном границам раздела;
- на основе обобщения формализма токовых экранов предложен способ параметризации квадратичного оптического отклика ПКЯ-структуры.

Научно-практическая ценность работы состоит в том, что полученные в работе результаты могут быть использованы, во-первых, для качественной интерпретации и количественного анализа данных нелинейно-оптических экспериментов, во-вторых, при планировании новых экспериментов и, в-третьих, при дальнейшем теоретическом исследовании нелинейно-оптического отклика наноструктур.

На защиту выносятся следующие положения:

1. Учет по отдельности как возмущения кристаллического потенциала вблизи границ квантовой ямы, так и непрямоугольного характера закона дисперсии для электронных состояний в объеме полупроводника позволяет с количественным согласием описать размерный эффект, наблюдаемый в квадратичном отклике ПКЯ-структур Si – SiO₂ со сверхтонкими квантовыми ямами.
2. В рамках резонансного приближения для модели прямоугольной ямы, члены первого порядка в мультипольном разложении тензора линейной проводимости отдельной квантовой ямы по степеням компоненты волнового вектора, тангенциальной к границам раздела, дают пренебрежимо малый вклад в линейный отклик всей ПКЯ-структуры на частотах накачки и второй гармоники (по сравнению с членами нулевого порядка), в то время как аналогичные члены нулевого и первого порядка в мультипольном разложении тензора квадратичной проводимости отдельной квантовой ямы дают сравнимые по величине вклады в квадратичный отклик всей ПКЯ-структуры.
3. Матричный метод позволяет описать распространение оптического излучения на частотах накачки и второй гармоники в слоистой среде с

существенной нелокальностью линейного и квадратичного отклика в перпендикулярном к границам раздела направлении; величины, определяющие отклик каждого слоя — элементы обобщенной матрицы распространения и компоненты обобщенного вектора нелинейных источников — для факторизуемых тензоров линейной и квадратичной нелокальной проводимости задаются аналитически.

4. При уменьшении толщины квантовой ямы с 1 нм до 0.25 нм квантово-размерный сдвиг резонансной частоты в спектре квадратичного отклика ПКЯ-структуры Si — SiO₂ (~0.1 эВ в энергетических единицах) на порядок превышает сдвиг, обусловленный электромагнитным взаимодействием между квантовыми ямами в структуре (~0.01 эВ).
5. Роль феноменологических параметров, которые характеризуют линейный и квадратичный оптический отклик ПКЯ-структуры и подлежат экспериментальному определению, играют коэффициенты, связывающие моменты пространственного распределения поляризации внутри квантовой ямы в перпендикулярном к границам раздела направлении со значениями компонент локального электрического поля на ее границах.

Апробация результатов работы проводилась на международных конференциях: “Nonlinear Optics at Interfaces” (Наймеген, Голландия, 2001), “International Conference on Coherent and Nonlinear Optics” (Санкт-Петербург, 2005), “Week of Doctorial Students” (Прага, Чехия, 2005), а также семинарах кафедры квантовой электроники физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова. Основные результаты диссертационной работы отражены в публикациях в специализированных ведущих научных журналах: “Вестник МГУ. Серия 3. Физика. Астрономия”, “Applied Physics B”, “Journal of Optical Society of America B”, “Physical Review B”. По материалам диссертации опубликовано 8 печатных работ (6 статей и 2 тезиса доклада).

Личный вклад автора

Все результаты диссертационной работы получены автором лично.

Структура и объем работы

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения, трех приложений и списка цитируемой литературы. Объем работы составляет 124 страницы, включая 17 рисунков. Список цитируемой литературы содержит 83 наименования, включая 6 авторских публикаций.

Содержание диссертации

Во Введении показана актуальность темы диссертационной работы, описаны ее цели и задачи и приведено краткое содержание работы по главам.

Глава I представляет собой обзор литературы по методам описания нелокального электромагнитного отклика периодических квантовых ям (ПКЯ) и эффектам размерного квантования, возникающим в этих структурах. В §1 рассмотрена модель прямоугольной ямы (МПЯ) для описания размерных эффектов в отдельных КЯ, а также приведены общие выражения для тензоров линейной и квадратичной проводимости слоистой среды, полученные в пренебрежении корреляциями электронов в системе (приближение случайных фаз) с дополнительным предположением об однородности среды в плоскости, параллельной ее границам. В §2 рассмотрен метод матриц распространения оптического излучения для описания распространения плоской электромагнитной волны в многослойных структурах с локальным электромагнитным откликом слоев, а также описан метод учета нелокальности отклика слоев, основанный на решении интегрального уравнения для локального поля внутри каждого слоя. В §3 рассмотрены способы параметризации нелокального отклика одномерных систем с помощью d -параметров Фейбельмана, a - и b -параметров Рудника и Штерна, а также тензора проводимости токового экрана Келлера [1]¹.

Глава II посвящена исследованию оптического отклика отдельной КЯ на заданное поле накачки.

В §1 сформулированы основные задачи и перечислены основные приближения, используемые при их решении. Во-первых, МПЯ необходимо адаптировать к случаю КЯ сверхмалых толщин (меньше 1 нм), когда размерный эффект, предсказываемый стандартной МПЯ, оказывается существенно более сильным, чем наблюдаемый в нелинейно-оптическом отклике ПКЯ-структур [2]². Выделенность МПЯ для описания микроскопических свойств КЯ обусловлена тем, что эта модель позволяет получить аналитические выражения для тензоров проводимости.

Во-вторых, в рамках МПЯ необходимо свести общие выражения в квадратурах для тензоров линейной и квадратичной нелокальной проводимости слоистых сред [3]³ к простым выражениям, которые позволят рассчитывать

¹[1]. Ole Keller , Sheet-model description of the linear optical response of quantum wells, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 987 (1995)

²[2]. О. А. Акципетров, А. В. Заяц и др., Генерация резонансной второй гармоники в периодических квантовых ямах Si/SiO₂, *ЖЭТФ* **109**, 1240 (1996)

³[3]. O. Keller , Random-phase-approximation study of the response function describing

резонансный отклик КЯ аналитически.

При описании микроскопических свойств КЯ предполагается, что движение носителей заряда в плоскости, параллельной границам слоев, является движением свободной частицы с некоторой эффективной массой. При расчетах тензоров проводимости используется двухуровневое приближение.

В §2 предложены две модифицированные МПЯ, которые отдельно учитывают следующие факторы, влияющие на зависимость ширины запрещенной зоны в полупроводниковых слоях от их толщины: (а) возмущение кристаллического потенциала вблизи границ раздела и (б) непрямозонный характер закона дисперсии для электронных состояний в объеме полупроводника.

В обоих случаях, по-прежнему, предполагается, что движение носителей заряда в КЯ в плоскости ее границ является свободным, а в направлении, перпендикулярном границам, квантуется. Для вычисления энергии размерно-квантованных уровней в случае (а) предлагается использовать потенциал прямоугольной ямы с бесконечно высокими стенками, модифицированный δ -возмущениями вблизи ее границ:

$$U(z) = \begin{cases} -g \cdot \delta(d/2 - \xi - |z|), & |z| \leq d/2 \\ \infty, & |z| > \frac{d}{2} \end{cases}, \quad (1)$$

где d - толщина слоя КЯ, ξ и g - параметры модели.

В случае (б) непрямозонный дисперсионный в направлении, перпендикулярном границам КЯ, моделируется соотношениями:

$$E_c(k_z) = \Delta_0/2 + \Delta_c \left[1 - 1 / \cosh \left((k_z - k_0) \sqrt{\hbar^2 / (m_e \Delta_c)} \right) \right], \quad (2)$$

$$E_v(k_z) = -\Delta_0/2 - \Delta_v \left[1 - 1 / \cosh \left(k_z \sqrt{\hbar^2 / (m_e \Delta_v)} \right) \right], \quad (3)$$

где нижний индекс “с” обозначает зону проводимости, а “v” - валентную зону, $m_e = 9.1 \cdot 10^{-28}$ г - масса электрона, Δ_0 - ширина зоны проводимости полупроводника, а $\Delta_{c,v}$ и k_0 - параметры модели.

Показано, что при надлежащем выборе значений параметров обе модели позволяют с количественным согласием описать размерный эффект в сверхтонких ПКЯ Si – SiO₂ (см. рис. 1).

В §3 и §4 рассчитаны тензоры линейной и квадратичной нелокальной проводимости КЯ соответственно. При расчетах общие выражения для тензоров линейной и квадратичной проводимости, $\sigma(q_x, \omega, z, z')$ и $\Sigma(q_x, 2\omega, z, z', z'')$,

optical second-harmonic generation from a metal selvedge, *Phys.Rev.B* **33**, 990 (1986)

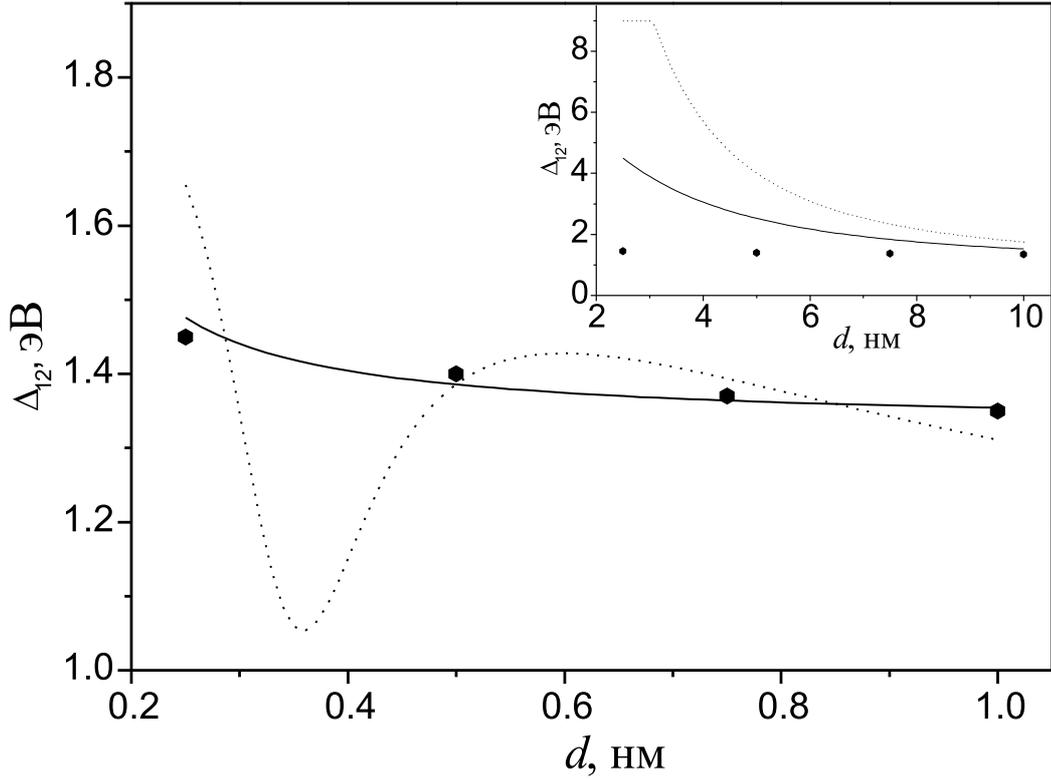


Рис. 1: Размерный эффект в КЯ Si – SiO₂. Точками показаны значения разности энергий резонансных уровней (Δ_{12}), определенные из эксперимента по генерации второй гармоники в ПКЯ Si – SiO₂, для различных толщин слоев кремния (d). Сплошная линия - аппроксимация размерного эффекта в рамках МПЯ с учетом приграничных возмущений ($\Delta_0 = 1.28$ эВ, $\xi = 0.5$ нм, $g = 1.1$ эВ·нм⁻¹); пунктирная кривая - МПЯ с модифицированным законом дисперсии ($\Delta_0 = 0.43$ эВ, $\Delta_v = 0.7$ эВ, $\Delta_c = 0.65$ эВ, $k_0 = 17.7$ нм⁻¹). Для сравнения на вставке приведены зависимости, полученные в рамках стандартной МПЯ конечной глубины (сплошная линия) и МПЯ с бесконечно высокими стенками (пунктирная линия).

раскладываются в мультипольный ряд по степеням компоненты q_x волнового вектора поля накачки, тангенциальной к границам КЯ, с точностью до квадрупольного члена:

$$\sigma(q_x, \omega, z, z') = \bar{\sigma}^{(\omega)}(z, z') + iq_x d \underline{\sigma}^{(\omega)}(z, z') + \dots \quad , \quad (4)$$

$$\Sigma(q_x, 2\omega, z, z', z'') = \bar{\Sigma}^{(2\omega)}(z, z', z'') + iq_x d \underline{\Sigma}^{(2\omega)}(z, z', z'') + \dots \quad , \quad (5)$$

где d - толщина КЯ.

Выражения для дипольных (черта вверху) и квадрупольных (черта внизу) членов получены в рамках МПЯ в двухуровневом приближении для двух

случаев: (а) отклик обусловлен внутризонными переходами (что характерно для КЯ металлического типа, например, КЯ GaAs – Al_xGa_{1-x}As) и (б) отклик обусловлен межзонными переходами (что характерно для КЯ полупроводникового типа, например, КЯ Si – SiO₂). Показано, что в случае (а) зависимость компонент тензоров проводимости от частоты накачки имеет лоренцев вид, а в случае (б) является комплексным логарифмом. Координатные зависимости компонент тензоров факторизуются.

Исследованы свойства симметрии тензоров проводимости. Показано, что если КЯ имеет плоскость симметрии, параллельную ее границам, то выполняются соотношения:

$$\int_{-d/2}^{d/2} \int_{-d/2}^{d/2} \underline{\sigma}^{(\omega)}(z, z') dz dz' = \int_{-d/2}^{d/2} \int_{-d/2}^{d/2} \int_{-d/2}^{d/2} \underline{\Sigma}^{(2\omega)}(z, z', z'') dz dz' dz'' = 0, \quad (6)$$

$$\int_{-d/2}^{d/2} \int_{-d/2}^{d/2} \underline{\sigma}^{(\omega)}(z, z') dz dz', \int_{-d/2}^{d/2} \int_{-d/2}^{d/2} \int_{-d/2}^{d/2} \underline{\Sigma}^{(2\omega)}(z, z', z'') dz dz' dz'' \neq 0, \quad (7)$$

откуда следует, что квадрупольные члены тензора квадратичной проводимости вносят существенный вклад в квадратичный отклик симметричной КЯ.

Глава III посвящена исследованию распространения оптического излучения в ПКЯ-структурах с учетом квадратичной нелинейности отклика отдельных КЯ.

В §1 сформулированы основные задачи и перечислены основные приближения, используемые при их решении. Во-первых, метод матриц оптического распространения [4]⁴ необходимо обобщить на случай многослойных структур с существенно нелокальным откликом (как линейным, так и нелинейным) в направлении, перпендикулярном границам слоев. С одной стороны, обобщенный метод должен корректно учитывать нелокальность отклика слоев, а с другой стороны, метод не должен приводить к возрастанию вычислительных затрат при увеличении числа слоев в структуре (к чему приводит метод расчета, основанный на решении интегрального уравнения для локального поля внутри квантовой ямы).

Во-вторых, в рамках обобщенного метода необходимо рассчитать спектры интенсивности излучения второй гармоники, генерируемого ПКЯ-структурой Si – SiO₂, и на основе сравнения этих спектров с экспериментальными данными вычислить энергии резонансных переходов в КЯ Si – SiO₂.

В Главе III существенно используется предположение об однородности КЯ в плоскости, параллельной ее границам, так как это требование является обя-

⁴[4]. D.S. Bethune, Optical harmonic generation and mixing in multilayer media: analysis using optical transfer matrix techniques, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 910 (1989)

зательным при использовании интегрального уравнения для локального поля внутри квантовой ямы, на решении которого базируется обобщенный метод.

В §2 исследуется распространение оптического излучения в многослойной структуре с чередующимися слоями с локальным и нелокальным откликом в отсутствие нелинейных источников тока.

Для описания распространения поля в такой структуре предлагается обобщенный метод матриц распространения оптического излучения. Основная идея метода состоит в следующем. Рассмотрим n -ый слой структуры, в отклике которого выделим локальную компоненту (зададим ее диэлектрической функцией $\varepsilon_{\omega}^{\text{qw}}(z)$, которую для простоты будем считать постоянной внутри слоя: $\varepsilon_{\omega}^{\text{qw}}(z) = \varepsilon_{\omega}^{\text{qw}}$) и нелокальную компоненту (зададим ее тензором проводимости $\sigma^{(\omega)}(z, z')$).

Вклад в локальное поле внутри слоя дают токи внутри n -го слоя и токи во всех остальных слоях структуры. Такая система эквивалентна КЯ с тензором проводимости $\sigma^{(\omega)}(z, z')$, выращенной в бесконечном слое диэлектрика (проницаемость $\varepsilon_{\omega}^{\text{qw}}$) и эффективными токовыми экранами, помещенными на обеих ее границах. Вклад токовых экранов в локальное поле внутри КЯ определяется амплитудами волн, падающих на КЯ справа и слева. Таким образом, локальное поле $\mathbf{E}_{\omega}^{(\alpha)}$ ($\alpha = s, p$ определяет поляризацию волны накачки) внутри n -го слоя удовлетворяет интегральному уравнению:

$$\mathbf{E}_{\omega}^{(\alpha)}(z) = \tilde{\mathbf{T}}_{\omega}^{(\alpha)}(z) \cdot \begin{pmatrix} E_{\omega, \alpha}^{(n, l)} \\ \bar{E}_{\omega, \alpha}^{(n, r)} \end{pmatrix} - 4i\pi(\omega/c^2) \times \\ \times \int_{-d/2}^{d/2} \int_{-d/2}^{d/2} \mathcal{G}_{\omega}(z, z') \cdot \sigma^{(\omega)}(z', z'') \cdot \mathbf{E}_{\omega}^{(\alpha)}(z'') dz' dz'', \quad (8)$$

и, следовательно, определяется амплитудами прямой ($E_{\omega, \alpha}^{(n, l)}$) и обратной ($\bar{E}_{\omega, \alpha}^{(n, r)}$) волн на, соответственно, левой и правой границах слоя. В уравнении (8) $\mathcal{G}_{\omega}(z, z')$ - функция Грина волнового уравнения в бесконечном слое с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_{\omega}^{\text{qw}}$, а $\tilde{\mathbf{T}}_{\omega}^{(\alpha)}(z)$ - блочный вектор:

$$\tilde{\mathbf{T}}_{\omega}^{(\alpha)}(z) = \left(\mathbf{e}_{\omega, \alpha}^{(\text{qw})} \exp(z + d/2) \quad \bar{\mathbf{e}}_{\omega, \alpha}^{(\text{qw})} \exp(d/2 - z) \right), \quad (9)$$

где $\mathbf{e}_{\omega, \alpha}^{(\text{qw})}$ и $\bar{\mathbf{e}}_{\omega, \alpha}^{(\text{qw})}$ - вектора поляризации, соответственно, прямой и обратной волны в среде с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_{\omega}^{\text{qw}}$.

Решая уравнение (8) и рассчитывая амплитуды расходящихся от слоя волн ($E_{\omega, \alpha}^{(n, r)}$ и $\bar{E}_{\omega, \alpha}^{(n, l)}$), приходим, в итоге, к матричному соотношению, связывающе-

му амплитуды прямой и обратной волн на противоположных границах слоя:

$$\begin{pmatrix} E_{\omega,\alpha}^{(n,r)} \\ \bar{E}_{\omega,\alpha}^{(n,r)} \end{pmatrix} = \mathbb{M}_{\omega,\alpha}^{\gg\text{qw}} \cdot \begin{pmatrix} E_{\omega,\alpha}^{(n,l)} \\ \bar{E}_{\omega,\alpha}^{(n,l)} \end{pmatrix}. \quad (10)$$

Матрица $\mathbb{M}_{\omega,\alpha}^{\gg\text{qw}}$ является обобщением стандартной матрицы распространения оптического излучения в слое с локальным откликом. Расчет поля в структурах с чередующимися слоями с локальным и нелокальным откликом сводится к перемножению стандартных и обобщенных матриц оптического распространения. В §2 описаны процедура расчета коэффициента отражения от ПКЯ-структуры, процедура расчета собственных мод в ПКЯ-структуре, и приведено сравнение результатов расчета коэффициента линейного отражения, полученных в рамках предложенного метода, стандартного метода матриц распространения и метода токовых экранов.

В §3 рассматривается распространение поля на частоте второй гармоники. В этом случае матричное уравнение, связывающее амплитуды волн на частоте 2ω , приобретает следующий вид:

$$\begin{pmatrix} E_{2\omega,\alpha}^{(n,r)} \\ \bar{E}_{2\omega,\alpha}^{(n,r)} \end{pmatrix} = \mathbb{M}_{2\omega,\alpha}^{\gg\text{qw}} \cdot \begin{pmatrix} E_{2\omega,\alpha}^{(n,l)} \\ \bar{E}_{2\omega,\alpha}^{(n,l)} \end{pmatrix} + \Upsilon_{2\omega,\alpha}^{\gg(n)}, \quad (11)$$

где обобщенный вектор нелинейных источников $\Upsilon_{2\omega,\alpha}^{\gg(n)}$ выражается через амплитуды волн на частоте накачки:

$$\Upsilon_{2\omega,\alpha}^{\gg(n)} = \sum_{\beta,\gamma=s,p} \mathbb{S}_{2\omega,\alpha}^{\gg(\beta,\gamma)} : \mathbf{E}_{\omega,\beta}^{(n,l)} \mathbf{E}_{\omega,\gamma}^{(n,l)}. \quad (12)$$

В §3 получены соотношения, связывающие компоненты тензора $\mathbb{S}_{2\omega,\alpha}^{\gg(\beta,\gamma)}$ с компонентами тензоров линейной и квадратичной проводимости слоя.

Соотношение (11) позволяет рассчитывать квадратичный отклик структуры в полной аналогии со стандартным методом матриц распространения. В §3 получены выражения для амплитуд расходящихся от ПКЯ-структуры волн на частоте второй гармоники.

В §4 в рамках формализма обобщенных матриц распространения и с использованием найденных в резонансном приближении тензоров линейной и квадратичной проводимости квантовых ям рассчитаны спектры интенсивности излучения второй гармоники, генерируемого ПКЯ-структурой Si – SiO₂, для различных значений числа КЯ в структурах: 30, 40, 50 и 70. Толщины слоев кремния в этих структурах равны: 0.25, 0.5, 0.75 и 1 нм соответственно. На основании сравнения рассчитанных зависимостей с экспериментально

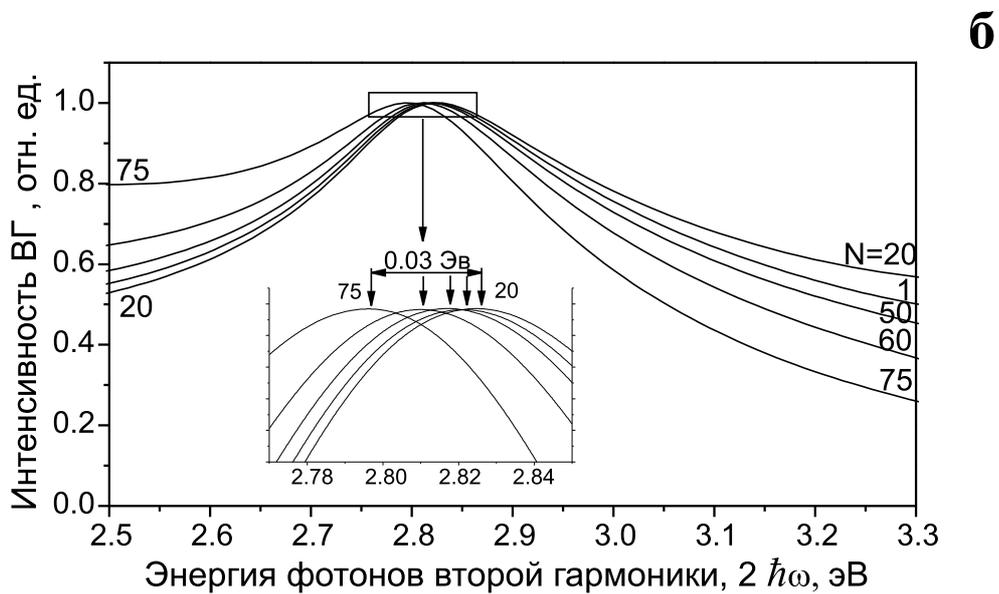
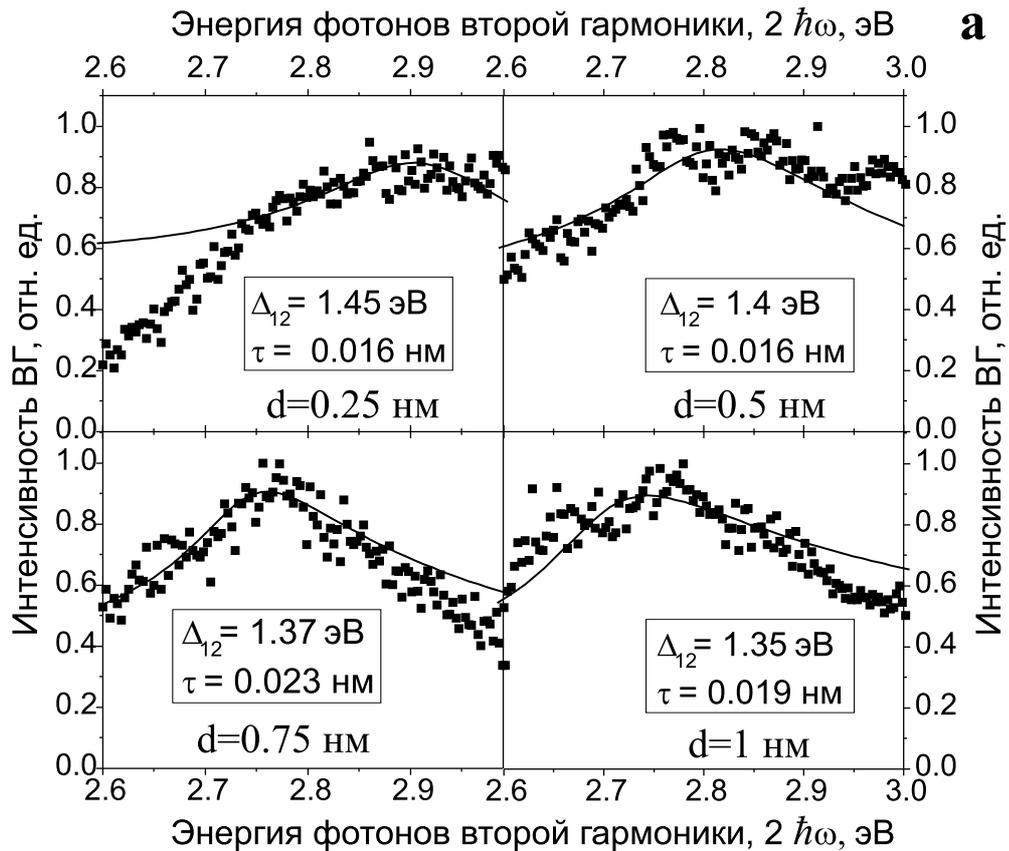


Рис. 2: Спектры интенсивности излучения второй гармоники (ВГ), генерируемого ПКЯ-структурой Si – SiO₂. Рис. 2(а): аппроксимация экспериментально измеренных спектров. В рамках указаны параметры микроскопической модели, Δ_{12} и τ , которые обеспечивают наилучшее согласие. Рис. 2(б): спектры интенсивности ПКЯ-структур Si – SiO₂ ($d = 5$ нм, $\Delta_{12} = 1.4$ эВ, $\tau = 0.016$ пс) с различным числом слоев N .

измеренными спектрами [5]⁵, были определены микроскопические параметры структур: энергия резонансных переходов в КЯ, Δ_{12} , и время релаксации электронной подсистемы, τ . Результаты сравнения и значения параметров микроскопической модели представлены на рис. 2(а). Рассчитанные спектральные зависимости находятся в согласии с экспериментальными данными в области спектра вблизи резонанса.

Для исследования влияния электромагнитного взаимодействия между различными КЯ структуры на генерацию второй гармоники квадратичный отклик ПКЯ-структуры были рассчитаны спектры излучения второй гармоники, генерируемого ПКЯ-структурами Si – SiO₂ с различным числом КЯ, которое варьировалось от 1 до 75; при этом толщина слоев кремния была одинаковой и равной 0.5 нм. Как видно из рис. 2(б), электромагнитное взаимодействие приводит к тому, что левое (относительно положения резонанса) крыло спектра немного поднимается, а правое опускается. Положение резонанса немного сдвигается (для больших чисел КЯ) в красную область спектра. “Электромагнитный” сдвиг ($\simeq 0.01$ эВ) существенно меньше сдвига, обусловленного квантово-размерными эффектами ($\simeq 0.1$ эВ).

Глава IV посвящена параметризации линейного и квадратичного оптического отклика ПКЯ-структур.

В §1 сформулированы основные задачи и перечислены основные приближения, используемые при их решении. Главной задачей является получение соотношений, которые связывают величины, определяющие распространение излучения в ПКЯ-структурах с квадратичной нелинейностью (обобщенная матрица распространения и обобщенный вектор нелинейных источников) с некоторым набором эффективных параметров, характеризующих микроскопические свойства отдельных КЯ в структуре. Эти параметры, во-первых, должны иметь прозрачный физический смысл, а во-вторых, должны являться наблюдаемыми величинами, которые возможно определить из спектров отклика ПКЯ-структур.

Обобщенная матрица распространения и обобщенный вектор нелинейных источников параметризуются с точностью до членов порядка $(d\omega/c)^2$, включительно. С одной стороны, пренебрежение квадратичными членами приводит к существенной ошибке: в случае линейного отклика ошибка проявляется при большом числе КЯ в структуре, а в случае квадратичного отклика ошибка проявляется уже для одной симметричной КЯ, так как отклик такой КЯ в

⁵[5]. V. G. Avramenko, T. V. Dolgova, A. A. Nikulin et al., Subnanometer-scale size effects in electronic spectra of Si/SiO₂ multiple quantum wells: Interferometric second-harmonic generation spectroscopy, *Phys.Rev.B* **73**, 155321 (2006).

первом порядке по $d\omega/c$ равен нулю. С другой стороны, члены третьего и более высоких порядков не вносят существенного вклада в оптический отклик ПКЯ-структур.

В Главе IV (также как и в Главе III) используется предположение об однородности КЯ в плоскости, параллельной ее границам, так как это предположение лежит в основе обобщенного метода матриц распространения оптического излучения, в рамках которого и параметризуется отклик ПКЯ-структуры.

В §2 предложен способ параметризации линейного отклика отдельной КЯ. Для этого в тензоре линейной проводимости, $\sigma(q_x, \omega, z, z')$, с помощью разложения (4) выделяется явная зависимость от тангенциальной компоненты волнового вектора, q_x , а, следовательно, и от угла падения волны накачки θ . Этот тензор используется при расчете обобщенной матрицы оптического распространения с точностью до членов порядка $(d\omega/c)^2$, методом, описанным в Главе III. В итоге, в матрице распространения выделяется явная зависимость от угла падения волны накачки:

$$\overset{\gg}{\mathbf{M}}_{\omega, \alpha}^{\text{qw}}(\theta, \vartheta_{\omega}^{(\parallel)}, \vartheta_{\omega}^{(\perp)}, \{\mu_{\omega, \alpha}^{(m)}\}) = \mathbf{M}_0^{(\omega, \alpha)}(\theta, \vartheta_{\omega}^{(\parallel)}, \vartheta_{\omega}^{(\perp)}) + \sum_{m=1}^{M_{\alpha}} \mu_{\omega, \alpha}^{(m)} \mathbf{M}_m^{(\omega, \alpha)}(\theta), \quad (13)$$

где M_{α} зависит от поляризации волны накачки $\alpha = s, p$. Компоненты матриц $\mathbf{M}_0^{(\omega, \alpha)}(\theta, \vartheta_{\omega}^{(\parallel)}, \vartheta_{\omega}^{(\perp)})$ и $\mathbf{M}_m^{(\omega, \alpha)}(\theta)$ зависят от угла падения θ известным образом. В §2 получены явные выражения для этих матриц.

Параметры $\vartheta_{\omega}^{(\parallel)}, \vartheta_{\omega}^{(\perp)}$ и $\{\mu_{\omega, \alpha}^{(m)}\}$, где $m = 1..M_{\alpha}$, полностью определяют линейный отклик отдельной КЯ. Они зависят от частоты и не зависят от угла падения излучения накачки. Они могут быть выражены через коэффициенты, связывающие нулевой ($\mathbf{P}_{\omega}^{(\alpha, 0)}$) и первый ($\mathbf{P}_{\omega}^{(\alpha, 1)}$) моменты пространственного распределения поляризации внутри КЯ в перпендикулярном к границам раздела направлении:

$$\mathbf{P}_{\omega}^{(\alpha, m)} = \frac{1}{-i\omega} \int_{-d/2}^{d/2} z^m \mathbf{J}_{\omega, 0}^{(\alpha)}(z) dz, \quad m = 0, 1, \quad (14)$$

где $\mathbf{J}_{\omega, 0}^{(\alpha)}(z)$ - ток внутри КЯ, со значениями компонент локального поля на границах КЯ. Явные выражения параметров $\vartheta_{\omega}^{(\parallel)}, \vartheta_{\omega}^{(\perp)}$ и $\{\mu_{\omega, \alpha}^{(m)}\}$ через компоненты тензора линейной проводимости приведены в Приложении 3.

В §3 предложена параметризация линейного отклика ПКЯ-структуры как целого. Зная матрицу распространения $\overset{\gg}{\mathbf{M}}_{\omega, \alpha}^{\text{qw}}$, можно рассчитать поле внутри

ПКЯ-структуры, а также амплитуды отраженной и прошедшей через структуру волн. Таким образом, в предположении об одинаковости всех КЯ внутри структуры параметры $\vartheta_\omega^{(\parallel)}$, $\vartheta_\omega^{(\perp)}$ и $\{\mu_{\omega,\alpha}^{(m)}\}$, $m = 1..M_\alpha$, задают и отклик ПКЯ-структуры как целого.

Подход аналогичен расчету отклика реальных фотонных кристаллов, когда отклик слоев параметризуется с помощью значения эффективного коэффициента преломления слоев, причем этот параметр считается одинаковым для “одинаковых” слоев фотонного кристалла.

Параметры могут быть определены из экспериментально измеренной зависимости энергетического коэффициента отражения от ПКЯ-структуры от угла падения излучения накачки, $R(\theta_j)$, $j = 1..\bar{N}$. Для определения параметров $\vartheta_\omega^{(\parallel)}$, $\vartheta_\omega^{(\perp)}$ и $\{\mu_{\omega,\alpha}^{(m)}\}$ необходимо минимизировать (по значениям параметров) квадратичную невязку:

$$D_\omega^{(\alpha)}(\vartheta_\omega^{(\parallel)}, \vartheta_\omega^{(\perp)}, \{\mu_{\omega,\alpha}^{(m)}\}) = \frac{1}{\bar{N}} \sum_{j=1}^{\bar{N}} \left[|r_{\omega,\alpha}^{\text{mqw}}(\theta, \vartheta_\omega^{(\parallel)}, \vartheta_\omega^{(\perp)}, \{\mu_{\omega,\alpha}^{(m)}\})|^2 - R(\theta_j) \right]^2, \quad (15)$$

где $r_{\omega,\alpha}^{\text{mqw}}(\theta, \vartheta_\omega^{(\parallel)}, \vartheta_\omega^{(\perp)}, \{\mu_{\omega,\alpha}^{(m)}\})$ - коэффициент отражения от ПКЯ-структуры, рассчитанный методом, описанным в Главе III, с использованием матрицы распространения (13).

В §3 получены численные оценки значений параметров $\vartheta_\omega^{(\parallel)}$, $\vartheta_\omega^{(\perp)}$ и $\{\mu_{\omega,\alpha}^{(m)}\}$, $m = 1..M_\alpha$, с использованием тензоров проводимости, найденных в двухуровневом приближении в Главе II. Показано, что отклик ПКЯ-структуры на s -поляризованное излучение накачки носит нерезонансный характер, а отклик на p -поляризованное излучение задается единственным параметром $\vartheta_\omega^{(\perp)}$, который по своему физическому смыслу близок к d_\perp -параметру Фейбельмана. Также показано, что учет членов разложения порядка $(d\omega/c)^2$ приводит лишь к незначительному уточнению результатов расчета линейного отклика ПКЯ-структур, не превышающему несколько процентов.

В §4 предложен способ параметризации квадратичного отклика отдельной КЯ. Для этого используются разложения (4) и (5) при расчете обобщенного вектора нелинейных источников $\mathbf{Y}_{2\omega,\alpha}^{\gg(n)}$:

$$\mathbf{Y}_{2\omega,\alpha}^{\gg(n)} = \sum_{m=1}^{\tilde{M}_\beta} \eta_\omega^{(\beta,m)} \mathbf{X}_\omega^{(\beta,m)}(\theta) \Omega_{\omega,n}^{(\beta,m)}(\theta), \quad (16)$$

где $\mathbf{X}_\omega^{(\beta,m)}(\theta)$, $m = 1..\tilde{M}_\beta$, - вектор, компоненты которого известным образом зависят от частоты ω и угла падения θ волны накачки, $\Omega_{\omega,n}^{(\beta,m)}(\theta)$ является (из-

вестным) произведением амплитуд волн на левой границе n -ой КЯ на частоте накачки

Совокупность параметров $\eta_{\omega}^{(\beta,m)}$, $m = 1 \dots \tilde{M}_{\beta}$, определяет квадратичный отклик КЯ. Они зависят от частоты и не зависят от угла падения излучения накачки. В §4 показано, что они линейно выражаются через коэффициенты, которые связывают нулевой и первый моменты поляризации внутри КЯ на удвоенной частоте (см. (14)) с компонентами локального поля на границах КЯ на частоте накачки.

Вид разложения (16) зависит от геометрии нелинейно-оптического отклика, обозначаемой в (16) верхним индексом β ⁶. В работе рассматриваются следующие геометрии: $s(in) - p(out)$, $p(in) - p(out)$, а также $mixed(in) - s(out)$.

Явные выражения параметров $\eta_{\omega}^{(\beta,m)}$, $m = 1 \dots \tilde{M}_{\beta}$, через компоненты тензоров линейной и квадратичной проводимости приведены в Приложении 3.

В §5 предложен способ параметризации квадратичного отклика ПКЯ-структуры как целого. Как и в случае линейного отклика, предполагается одинаковость всех КЯ структуры. Таким образом, квадратичный отклик всей структуры также задается набором параметров $\eta_{\omega}^{(\beta,m)}$, $m = 1 \dots \tilde{M}_{\beta}$, зная которые, можно рассчитать распределение поля внутри структуры, а также амплитуды расходящихся от ПКЯ-структуры волн на частоте 2ω .

Параметры $\eta_{\omega}^{(\beta,m)}$, $m = 1 \dots \tilde{M}_{\beta}$, могут быть определены из экспериментальной измеренной зависимости энергетического коэффициента (квадратичного) отражения от ПКЯ-структуры от угла падения излучения накачки, $\tilde{R}(\theta_j)$, $j = 1 \dots \tilde{N}$:

$$\tilde{R}(\theta_j) \equiv \frac{c}{4\pi} \frac{I_{2\omega}(\theta_j)}{[I_{\omega}(\theta_j)]^2}, \quad (17)$$

где $I_{\omega}(\theta_j)$ и $I_{2\omega}(\theta_j)$ - интенсивности волн накачки и второй гармоники соответственно.

Для определения параметров $\eta_{\omega}^{(\beta,m)}$ необходимо минимизировать квадратичную невязку:

$$\tilde{D}_{\omega}^{(\beta)}(\{\eta_{\omega}^{(\beta,m)}\}) = \frac{1}{\tilde{N}} \sum_{j=1}^{\tilde{N}} \left[|\tilde{r}_{\omega,\beta}^{mqw}(\theta, \{\eta_{\omega}^{(\beta,m)}\})|^2 - \tilde{R}(\theta_j) \right]^2, \quad (18)$$

где $\tilde{r}_{\omega,\beta}^{mqw}(\theta, \{\eta_{\omega}^{(\beta,m)}\})$ - коэффициент квадратичного отражения от ПКЯ-структуры, рассчитанный с использованием обобщенного вектора нелинейных источников (16).

⁶под геометрией отклика подразумевается комбинация поляризаций излучения накачки (in) и волны второй гармоники (out). Под волной с поляризацией *mixed* понимается суперпозиция s - и p -поляризованных волн.

В §5 получены численные оценки значений параметров $\eta_{\omega}^{(\beta,m)}$, $m = 1 \dots \tilde{M}_{\beta}$, с использованием тензоров проводимости, найденных в двухуровневом приближении в Главе II. Показано, что квадратичный отклик ПКЯ-структуры в геометрии $p(in) - p(out)$ определяется двумя (комплексными) параметрами, а в геометриях $s(in) - p(out)$ и $mixed(in) - s(out)$ - одним (комплексным) параметром. Кроме того, показано, что квадрупольная компонента тензора квадратичной проводимости, $\Sigma^{(2\omega)}(z, z', z'')$, дает вклад в отклик, сравнимый (а в некоторых случаях и превышающий) со вкладом дипольной компоненты, $\overline{\Sigma}^{(2\omega)}(z, z', z'')$.

В **Заключении** сформулированы основные результаты, полученные в диссертационной работе.

В **Приложении 1** получено выражение для матрицы $\tilde{T}_{\omega}^{(\alpha)}(z)$ (см. уравнение 8) и рассчитана функция Грина $\mathcal{G}_{\omega}(z, z')$ в случае трехслойной структуры.

В **Приложении 2** рассмотрено решение интегрального уравнения (8) в случае факторизуемого тензора линейной проводимости КЯ.

В **Приложении 3** приведены явные выражения параметров, определяющих линейный и квадратичный отклик КЯ ($\vartheta_{\omega}^{(||)}, \vartheta_{\omega}^{(\perp)}, \{\mu_{\omega,\alpha}^{(m)}\}$ и $\{\eta_{\omega}^{(\beta,m)}\}$), через компоненты тензоров линейной и квадратичной проводимости КЯ.

Основные результаты работы

1. Предложены две микроскопические модели, которые отдельно учитывают факторы, влияющие на зависимость ширины запрещенной зоны в полупроводниковых слоях от их толщины и, как следствие, на размерный эффект в оптическом отклике ПКЯ: (а) возмущение кристаллического потенциала вблизи границ раздела и (б) непрямозонный характер закона дисперсии для электронных состояний в объеме полупроводника. Показано, что обе модели способны удовлетворительно описать размерный эффект, наблюдавшийся в экспериментах по генерации второй гармоники ПКЯ-структурами Si – SiO₂ в субнанометровом диапазоне толщин слоев кремния.
2. В резонансном приближении рассчитаны тензоры линейной и квадратичной нелокальной проводимости квантовых ям для двух случаев: (а) когда резонансная пара размерно-квантованных уровней электронной энергии лежит в зоне проводимости и (б) когда уровни из резонансной пары лежат в валентной зоне и зоне проводимости. Показано, что в

мультипольном разложении тензоров проводимости по степеням компоненты волнового вектора, тангенциальной к границам раздела, члены первого порядка вносят вклад лишь в резонансный квадратичный отклик, отсутствуя в резонансной составляющей линейного отклика.

3. Метод матриц распространения оптического излучения в слоистой среде обобщен на случай слоев с существенно нелокальным откликом в направлении, перпендикулярном границам раздела. Показано, что вычисление компонент обобщенных матриц распространения сводится к решению интегрального уравнения для локального поля внутри отдельного нелокального слоя; для квантовых ям с факторизуемым тензором линейной нелокальной проводимости интегральное уравнение, в свою очередь, сводится к алгебраическому. В рамках предложенного формализма описано распространение излучения на частотах накачки и второй гармоники в ПКЯ с произвольным числом слоев.
4. В рамках формализма обобщенных матриц распространения и с использованием найденных в резонансном приближении тензоров линейной и квадратичной проводимости квантовых ям рассчитаны спектры интенсивности излучения второй гармоники, генерируемого ПКЯ-структурой Si – SiO₂, для различных (субнанометровых) значений толщины слоев кремния. Показано, что при уменьшении толщины квантовой ямы с 1 нм до 0.25 нм квантово-размерный сдвиг резонансной частоты в спектре квадратичного отклика ПКЯ (в энергетических единицах - порядка 0.1 эВ) существенно превышает сдвиг, обусловленный электромагнитным взаимодействием между квантовыми ямами в структуре (порядка 0.01 эВ). Рассчитанные спектральные зависимости находятся в согласии с экспериментальными данными.
5. С точностью до членов, квадратичных по тангенциальной компоненте волнового вектора, включительно, величины, которые определяют распространение излучения в ПКЯ-структурах с квадратичной нелинейностью (обобщенная матрица распространения и обобщенный вектор нелинейных источников), выражены через набор эффективных параметров, которые связывают нулевой и первый моменты поляризации внутри квантовой ямы с компонентами локального поля на ее границах. Показано, что значения этих параметров могут быть найдены из зависимостей от угла падения коэффициентов линейного и квадратичного отражения от ПКЯ-структур.

Основные результаты опубликованы в работах:

[1] *Dolgova T. V., Avramenko V. G., Nikulin A. A., Marowsky G., Pudonin F. A., Fedyanin A. A., Aktsipetrov O. A.* Second-harmonic spectroscopy of electronic structure of Si/SiO₂ multiple quantum well// Book of abstracts of Conference on Nonlinear Optics at Interfaces, Nijmegen, The Netherlands, October 16-19, 2001 - N2.

[2] *Dolgova T. V., Avramenko V. G., Nikulin A. A., Marowsky G., Pudonin F. A., Fedyanin A. A., Aktsipetrov O. A.* Second-harmonic spectroscopy of electronic structure of Si/SiO₂ multiple quantum well// *Appl. Phys. B* - v. 74 - pp. 671-675.

[3] *Avramenko V. G., Nikulin A. A.* Method of calculation of non-linear optical response of multiple quantum wells// Technical Digest of International Conference on Coherent and Nonlinear Optics, St. Petersburg, Russia, May 11-15, 2006 - IFM26.

[4] *Avramenko V. G., Nikulin A. A.* Si/SiO₂ multiple quantum wells: electronic and optical properties// *WDS'05 Proceedings of Contributed Papers. Part III* - 2005. - pp. 489-494.

[5] *Avramenko V. G., Dolgova T. V., Nikulin A. A., Fedyanin A. A., Aktsipetrov O. A., Pudonin F. A., Sutyurin A. G., Prokhorov D. Yu., Lomov A. A.* Subnanometer-scale size effects in electronic spectra of Si/SiO₂ multiple quantum wells: interferometric second-harmonic generation spectroscopy// *Phys. Rev. B* - 2006. - v. 73 - № 15 - p. 155321.

[6] *Avramenko V. G., Nikulin A. A.* Method of calculation of non-linear optical response of multiple quantum wells// *Proc. of SPIE* - 2006. - v. 6259 - p. 625906.

[7] *Avramenko V. G.* Generalized optical transfer-matrix technique: application to the nonlinear response of multiple quantum wells// *J. Opt. Soc. Am. B* - 2006. - v. 23 - № 9 - pp. 1872-1881 (2006).

[8] *Авраменко В. Г., Никулин А. А.* Матричное описание распространения оптического излучения в многослойных структурах с нелокальным откликом// *Вестник МГУ. Серия 3. Физика. Астрономия* - 2006. - № 3 - с. 78-79.