

©1994

ОБРАЗОВАНИЕ ПОЛЯРИТОННЫХ СОСТОЯНИЙ ПРОДОЛЬНЫМИ ОПТИЧЕСКИМИ ФОНОНАМИ

Д. В. Стрекалов

Поперечные оптические фононы в ионных кристаллах, отличающиеся большой плотностью дипольного момента, «перемешиваются» с электромагнитными колебаниями подходящей частоты, образуя поляритонные моды. Продольные фононы, как считалось ранее, таких мод не образуют, в частности, из-за ортогональности векторов поляризации фононов и фотонов. Показано, что поляритонные моды все-таки возникают, если учесть взаимодействие фононов с фотонами через электронное поле (отдаленный аналог механизма образования куперовских пар). С этой целью построен эффективный гамильтониан фонон-фотонного взаимодействия, осуществляемого за счет кулоновского взаимодействия фотонов и фононов с электронами, и проведена его диагонализация, которая показала возможность образования «продольных» поляритонных состояний. Сделаны оценки, показывающие реальность наблюдения таких состояний, и предложен возможный эксперимент для изучения их свойств.

Поперечные поляризационные колебания кристаллической решетки перемешиваются с колебаниями электромагнитного поля, образуя поляритоны. Гамильтониан соответствующей системы можно записать в виде [1]:

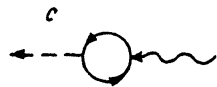
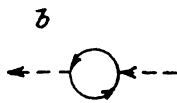
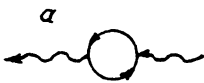
$$H = \sum_k \hbar \omega_k a_k^+ a_k + \sum_q \hbar \Omega_q b_q^+ b_q + \sum_{kq} \delta_{k,q} D_k \{ (b_q^+ - b_{-q})(a_k + a_{-k}^+) + (b_{-q}^+ - b_q)(a_{-k} + a_k^+) \}, \quad (1)$$

где индексы k и q включают в себя волновой вектор и поляризацию соответственно фотона и фонона, a_k и b_q — операторы уничтожения этих частиц, ω_k и Ω_q — их частоты, D_k — параметр взаимодействия.

Для введения поляритона диагоналируем гамильтониан (1), следуя обычной процедуре [1]. В результате диагонализации пересекающиеся дисперсионные кривые ($\omega(k) = ck/n$ и $\Omega(q) = \text{const}$, что оправдано для оптических мод вблизи центра зоны Бриллюэна) отталкиваются, образуя в точке бывшего пересечения щель шириной $\Delta\omega = 2|D_k|/\hbar$.

Таких поляритонных эффектов в случае продольных колебаний решетки — как поляризационных, так и неполяризационных — не возникает.

Однако продольные оптические фононы могут взаимодействовать со светом через электронную подсистему. Считается, что в случае поляризационных колебаний резонансное с ними электромагнитное поле



Кольцевые диаграммы, соответствующие рождению и уничтожению виртуальной электрон-дырочной пары.

не может распространяться в среде из-за отрицательной диэлектрической проницаемости. Поэтому будем рассматривать только неполяризованные продольные колебания.

Рассмотрим кристалл диэлектрика, в котором имеется продольная оптическая фононная мода с частотой Ω , причем ширина запрещенной зоны

$$E_g \gg \hbar\Omega, \quad (2)$$

$$E_g \gg T. \quad (3)$$

При этих условиях нет ни межзонного, ни внутризонного поглощения света или фононов с частотами $\omega = \Omega$. Тем не менее возможны процессы (диаграммы которых приведены на рисунке), происходящие с рождением виртуальной электрон-дырочной пары.

Обратим внимание на рисунок, *b*. Величина взаимодействия в вершинах зависит от энергии электрона, уничтоженного в валентной зоне, и электрона, родившегося в зоне проводимости (ограничимся рассмотрением этих двух зон). Усредняя по электронной подсистеме, можно заменить совокупность всех процессов такого типа одним. Тогда вместо диаграмм *b* получим эффективные диаграммы вида

$$\leftarrow \text{---} \bullet \text{---} \leftarrow \text{wavy} \rightarrow, \quad (4)$$

что очень похоже на диаграмму процесса первого порядка, описываемого гамильтонианом (1)

$$\leftarrow \text{---} \bullet \text{---} \leftarrow, \quad (5)$$

Продолжая эту аналогию, проведем диагонализацию эффективного фотон-фононного гамильтониана, описывающего процессы (4), так, как это было сделано для гамильтониана (1). Считая электрон-фононное и электрон-фотонное взаимодействие возмущением, запишем исходный гамильтониан в виде

$$H = \sum_{\mathbf{k}} \hbar\omega_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q}} \hbar\Omega_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}} + \sum_{\mathbf{p}\lambda} \varepsilon_{\lambda}(\mathbf{p}) c_{\lambda\mathbf{p}}^{\dagger} c_{\lambda\mathbf{p}} + V_{e-pht} + V_{e-phn}. \quad (6)$$

Число λ здесь обозначает энергетическую зону и принимает два значения: *v* и *c*. Импульсы фотонов, фононов и электронов будем обозначать соответственно \mathbf{k} , \mathbf{q} и \mathbf{p} ; $c_{v\mathbf{p}}$ и $c_{c\mathbf{p}}$ — операторы уничтожения электрона в валентной зоне и зоне проводимости.

Будем искать эффективный гамильтониан в виде

$$H = \sum_{\mathbf{k}} \hbar\omega_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q}} \hbar\Omega_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}} + V_{phn-phn}^{eff}. \quad (7)$$

Взаимодействие фотонов с фононами через электронную подсистему $V_{phn-pht}^{eff}$ определим при помощи следующей процедуры. Запишем (6) в представлении взаимодействия как $V_{e-phn}(t) + V_{e-pht}(t)$ и найдем волновую функцию системы с точностью до членов второго порядка теории возмущений

$$\Psi(t) = \Psi_0 - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \{V_{e-phn}(t') + V_{e-pht}(t')\} \Psi_0 dt' -$$

$$- \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t'} \{V_{e-phn}(t') + V_{e-pht}(t')\} \{V_{e-phn}(t'') + V_{e-pht}(t'')\} \Psi_0 dt' dt''. \quad (8)$$

Аналогично для (7) в первом порядке теории возмущений

$$\varphi(t) = \varphi_0 - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t V_{phn-pht}^{eff} \varphi_0 dt'. \quad (9)$$

Здесь $\varphi(t)$ относится уже к фотон-фононной системе.

Сравнивая (8) и (9) и считая, что

$$\varphi \simeq \langle \Psi \rangle_e, \quad (10)$$

найдем

$$V_{phn-pht}^{eff} = -\frac{i}{\hbar} \left\langle \left\{ V_{e-phn}(t) + V_{e-pht}(t) \right\}, \int_{-\infty}^t \left\{ V_{e-phn}(t') + V_{e-pht}(t') \right\} dt' \right\rangle_e, \quad (11)$$

где учтено, что проведенное ниже усреднение по электронной подсистеме $\langle \dots \rangle_e$ даст средние $\langle V_{e-pht} \rangle = 0$, $\langle V_{e-phn} \rangle = 0$, кроме физически не интересного случая $\mathbf{q} = 0$, $\mathbf{k} = 0$.

Равенство (10) выполняется точно в отсутствие взаимодействия, когда волновые функции факторизуются.

Получим явный вид V_{e-pht} и V_{e-phn} .

Следуя [1], запишем деформационный потенциал взаимодействия электрона с решеткой в случае, когда деформация не создает дипольного момента

$$U_d = -\sigma \text{div} \mathbf{u}(\mathbf{r}), \quad (12)$$

где $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ — поле деформаций. Проводя вторичное квантование (12), получим

$$V_{e-phn} = \sum_{\substack{\mathbf{q}\mathbf{p} \\ \lambda\lambda'}} F_{\mathbf{q}} c_{\lambda\mathbf{p}}^+ c_{\lambda'(\mathbf{p}-\mathbf{q})} (b_{\mathbf{q}} - b_{-\mathbf{q}}^+). \quad (13)$$

Выражение (13) подробно выводится в [1] для продольных длинноволновых фононов. В [2,3] формула (13) применяется к оптическим фононам. В [3] принимается

$$F_q = -iC_1q\sqrt{\frac{\hbar}{2M\Omega}}. \quad (14)$$

Там же приводится оценка по порядку величины константы $C_1 \simeq 5 \cdot 10^{-11}$ erg, которой мы воспользуемся в дальнейшем. Аналогичное выражение получается в [4]. Из сделанных там оценок следует, что $C_1 = 4.2 \cdot 10^{-11}$ erg. Отметим, что в [1-4] константа взаимодействия C_1 относится как к внутризонным, так и к межзонам переходам.

Оператор V_{e-pht} можно получить, переходя к обобщенному импульсу электрона в электромагнитном поле $\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p} - \mathbf{A}e/c$, а считая поле слабым, разложить $\varepsilon(\mathbf{p} - \mathbf{A}e/c)$ в ряд по $\xi = eA/(\hbar c) \ll 1$. Для плоской волны условие $\xi \ll 1$ дает ограничение по интенсивности $I \ll 10^{10}$ W/cm².

Рассмотрим две модели законов дисперсии электронов — модели слабой и сильной связи. В первом случае

$$\varepsilon_v = E_g - \frac{p^2}{2m_v^*}, \quad \varepsilon_c = \frac{p^2}{2m_c^*}. \quad (15)$$

Тогда оператор взаимодействия электронов с электромагнитным полем в представлении Шредингера, учитывающий только межзональные переходы, имеет вид

$$V_{e-pht} = Q \sum_{\substack{\mathbf{k}\mathbf{p} \\ \lambda \neq \lambda'}} \frac{\mathbf{e}_{\mathbf{k}\mathbf{p}}}{\sqrt{\omega_k \hbar}} c_{\lambda\mathbf{p}}^+ c_{\lambda'(\mathbf{p}-\mathbf{k})} (a_{\mathbf{k}} + a_{-\mathbf{k}}^+),$$

где

$$Q = -\frac{e}{m_0} \hbar \sqrt{\frac{2\pi \hbar}{V}}, \quad (16)$$

m_0 — масса свободного электрона.

Перейдем к представлению взаимодействия и подставим $V_{e-pht}(t)$ и $V_{e-phn}(t)$ в (11). Проведя необходимые вычисления, получим искомый эффективный гамильтониан в представлении взаимодействия

$$V_{phn-pht}^{eff}(t) = V_1^{eff}(t) + V_2^{eff}(t) + V_3^{eff}(t), \quad (17)$$

где слагаемое соответствует изображенному на рисунке, b типу взаимодействия

$$V_3^{eff}(t) = 2Q \sum_{\mathbf{k}\mathbf{p}} \frac{\mathbf{e}_{\mathbf{k}\mathbf{p}}}{\sqrt{\omega_k \hbar}} F_{\mathbf{k}} \left\{ (b_{\mathbf{k}} e^{-i\Omega t} + b_{-\mathbf{k}}^+ e^{i\Omega t}) \times \right. \\ \times \left[\frac{a_{-\mathbf{k}} e^{-i\omega_k t}}{\varepsilon_v(\mathbf{p} + \mathbf{k}) - \varepsilon_c(\mathbf{p}) + \hbar\omega_k} - \frac{a_{\mathbf{k}}^+ e^{i\omega_k t}}{\varepsilon_v(\mathbf{p} + \mathbf{k}) - \varepsilon_c(\mathbf{p}) - \hbar\omega_k} \right] + \\ \left. + (a_{\mathbf{k}} e^{-i\omega_k t} + a_{-\mathbf{k}}^+ e^{i\omega_k t}) \left[\frac{b_{-\mathbf{k}} e^{-i\Omega t}}{\varepsilon_v(\mathbf{p} + \mathbf{k}) - \varepsilon_c(\mathbf{p}) + \hbar\Omega} - \frac{b_{\mathbf{k}}^+ e^{i\Omega t}}{\varepsilon_v(\mathbf{p} + \mathbf{k}) - \varepsilon_c(\mathbf{p}) - \hbar\Omega} \right] \right\}.$$

Напомним, что в гамильтониане (17) сохранены члены, соответствующие межзональным виртуальным переходам. Множитель 2 в каждом из

входящих в выражение (17) слагаемых учитывает спиновое вырождение электронных состояний. Возникающее при усреднении условие пространственного синхронизма $\mathbf{q} = \mathbf{k}$ приводит к замене индексов у фоновых операторов на \mathbf{k} .

Возмущения V_1^{eff} , V_2^{eff} и V_3^{eff} можно рассматривать независимо, пренебрегая в первом порядке теории возмущений их взаимным влиянием. В дальнейшем мы будем интересоваться лишь областью резонанса $\omega_k = \Omega$. Сильное неравенство (2) позволяет опустить слагаемые $\pm \hbar\Omega$ в знаменателях V_3^{eff} . Кроме того, можно заменить сумму по зоне Бриллюэна интегралом

$$I = \frac{1}{\hbar^4} \int \frac{e_{\mathbf{k}} p d^3 p}{\varepsilon_v(\mathbf{p} + \mathbf{k}) - \varepsilon_c(\mathbf{p})}.$$

Возвращаясь после этих преобразований к представлению Шредингера, получим из (17) искомое взаимодействие

$$V_{phn-pht}^{eff} = \sum_{\mathbf{k}} \frac{QVF_k I}{2\pi^3 \sqrt{\Omega}} \left\{ (b_{\mathbf{k}}^+ - b_{-\mathbf{k}}) (a_{\mathbf{k}} + a_{-\mathbf{k}}^+) + (b_{-\mathbf{k}}^+ - b_{\mathbf{k}}) (a_{-\mathbf{k}} + a_{\mathbf{k}}^+) \right\}. \quad (18)$$

Видим, что гамильтониан (7) с взаимодействием (18) в точности совпадает с поляритонным гамильтонианом (1), если

$$D_k = \frac{QVF_k I}{2\pi^3 \sqrt{\Omega}}.$$

Это позволяет оценить величину расщепления частот поляритонного состояния, перемешивающего продольные оптические фононы и электромагнитное поле

$$\Delta\omega_k = C_1 \frac{e\hbar n}{\pi^2 c m_0 \sqrt{\pi} \rho} |I|. \quad (19)$$

Для проведения численных оценок будем считать зону Бриллюэна кубом с ребром $2\pi/a$ и положим $a = 5.65 \cdot 10^{-8}$ см, $n = 3, 4$, $\rho = 5.32$ г/см³ (данные для GaAs).

Результат приближенного вычисления $|I|$ в случае закона дисперсии электронов (15) имеет вид

$$|I| \simeq \frac{4\pi^2 m_0 k}{3a\hbar^2} \frac{m_c^2 m_v}{(m_c + m_v)^2} \ln \left[1 + \frac{4\pi}{\pi^2 + 2E_g m_0 a^2 \hbar^{-2} m_v m_c / (m_v + m_c)} \right],$$

где $m_{v,c}$ — безразмерные эффективные массы.

При получении этой оценки было учтено сильное неравенство $ka \ll 1$ и считалось, что поляризация $e_{\mathbf{k}}$ и волновой вектор \mathbf{k} параллельны сторонам куба. Взяв значения $E_g = 1.5\text{eV} = 2.4 \cdot 10^{-12}$ эрг, $m_c = 0.075$, $m_v = 0.5$ (данные для GaAs), найдем для k , соответствующего 300 см⁻¹ или $5.6 \cdot 10^{13}$ с⁻¹, $\Delta\omega = 2.5 \cdot 10^5$ с⁻¹. Эта величина намного меньше ширины фоновой линии и, следовательно, не является наблюдаемой.

Отметим, что приближение свободных электронов (15) для нашей задачи неудачно. Действительно, в сферических координатах, где полярная ось совпадает с \mathbf{k} , а угол φ отсчитывается от плоскости поляризации, I принимает вид

$$I = \int \frac{p \sin \theta \cos \varphi}{\Delta \varepsilon(p, k, q, \theta)} \sin \theta p^2 dp d\varphi d\theta,$$

обращаясь в нуль для любого кругового цилиндра с осью \mathbf{k} . Остается лишь вклад от краев зоны, для которых (15) не справедливо. Поэтому проведем оценку в рамках приближения сильной связи электронов [5]

$$\varepsilon'_c(k) = E_{c1} + 2E_{c2} \sum_{\alpha=x,y,z} \cos(ak_\alpha),$$

$$\varepsilon'_v(k) = E_{v1} + 2E_{v2} \sum_{\alpha=x,y,z} \cos(ak_\alpha),$$

$$E_{c1} - E_{v1} = E_g, \quad (20)$$

которая лучше описывает поведение электронов вблизи краев зоны, чем (15). Взаимодействие электрона с электромагнитным полем теперь будет иметь вид

$$V'_{e-ph} = \frac{Q}{a} \sum_{\substack{\mathbf{kp} \\ \lambda \neq \lambda'}} \frac{1}{\sqrt{\omega}} c_{\lambda\mathbf{p}}^+ c_{\lambda'(\mathbf{p}-\mathbf{k})} (\mathbf{a}_\mathbf{k} + \mathbf{a}_{-\mathbf{k}}^+) \sum_{\alpha=x,y,z} e_\alpha \sin\left(\frac{a}{\hbar} p_\alpha\right). \quad (21)$$

Замена (16) на (20) не приводит к принципиальным изменениям в рассуждениях. Вместо (19) теперь получим

$$\Delta\omega'_k = C_1 \frac{e\hbar n}{\pi^2 c m_0 \sqrt{\pi\rho}} \frac{|I'|}{a}, \quad (22)$$

где

$$I' = \frac{1}{\hbar^3} \sum_{\alpha=x,y,z} \int \frac{e_\alpha \sin(ap_\alpha) d^3 p}{\varepsilon'_v(\mathbf{p} + \mathbf{k}) - \varepsilon'_c(\mathbf{p})}.$$

Оценим $\Delta\omega'_k$ в той же геометрии, что и $\Delta\omega_k$. Для этого потребуем, чтобы в центре зоны закон дисперсии электронов (20) переходил в (15). Это дает соотношения

$$2E_{c2} \simeq -\frac{\hbar^2}{m_c^* a^2}, \quad 2E_{v2} \simeq \frac{\hbar^2}{m_v^* a^2}.$$

Отсюда, ориентируясь на приведенные выше значения, получим оценку

$$|I'| \simeq \frac{8\pi}{E_g a^3} \left[1 - \frac{2\hbar^2}{E_g a^2 m_0} \frac{m_c + m_v}{m_c m_v} \right],$$

$$\Delta\omega' \simeq C_1 \frac{8e\hbar n}{\pi c m_0 E_g a^4 \sqrt{\pi\rho}} = 7 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}.$$

Эта величина соответствует 0.37 cm^{-1} и обычно не превышает ширины линии фонона, однако увеличение параметра $n/(E_g a^4)$ в 10–15 раз сделало бы ее наблюдаемой.

Можно предложить и другой способ регистрации интересующего нас эффекта. Если электромагнитную моду k возбудить при помощи внешней накачки, связанная с ней условиями синхронизма фононная мода также будет возбуждаться за счет связи между ними, причем стационарные населенности будут равны. Поскольку интенсивность антистоксового комбинационного рассеяния света пропорциональна населенности рассеивающей моды $N = \langle a^\dagger a \rangle$ [6], то в области электронного поляритона в КР-спектре можно ожидать, что обнаружим яркую точку с контрастом N/N_0

$$N_0 = \left[\exp \left\{ \frac{\hbar\omega}{kT} \right\} - 1 \right]^{-1},$$

который может быть весьма высок.

Условием раскачки электронного поляритона внешним полем является превышение скорости фотон-фононных переходов над скоростью фононной релаксации.

Оценка величины расщепления поляритонного состояния, образующегося при взаимодействии продольной фононной моды с резонансным электромагнитным полем, показывает, что эффект может быть наблюдаемым. Для более точных вычислений требуется знать точный вид законов дисперсии электронов и проводить численный расчет интеграла I с учетом формы зоны Бриллюэна кристалла.

Автор благодарен Ю.А.Ильинскому и Н.А.Гишпиусу за плодотворное обсуждение работы.

Список литературы

- [1] Давыдов А.С. Теория твердого тела М.: Наука, 1976. 639 с.
- [2] Конуэл Э. Кинетические свойства полупроводников в сильных электрических полях. М.: Мир, 1970. 384 с.
- [3] Киттель Ч. Квантовая теория твердых тел. М.: Наука. 1967. 491 с.
- [4] Ильинский Ю.А., Келдыш Л.В. Взаимодействие электромагнитного излучения с веществом. М.: МГУ, 1989. 300 с.
- [5] Займан Дж. Принципы теории твердого тела. М.: Мир, 1966. 416 с.
- [6] Клышко Д.Н. Фотоны и нелинейная оптика. М.: Наука, 1980. 256 с.

Московский государственный
университет им. М.В. Ломоносова

Поступило в Редакцию
10 января 1994 г.