

ТЕОРИЯ ФОТОГАЛЬВАНИЧЕСКИХ ЭФФЕКТОВ В КРИСТАЛЛАХ СО СЛОЖНОЙ ЗОННОЙ СТРУКТУРОЙ ПРИ ДВУХФОТОННОМ ПОГЛОЩЕНИИ СВЕТА

Р. Я. Расулов, У. У. Ганиев, Х. А. Сидикова

Ферганский государственный педагогический институт им. Улугбека,
712007, Фергана, Узбекистан
(Получена 10.06.1992. Принята к печати 3.11.1992)

Теоретически рассматриваются механизмы линейного фотогальванического эффекта (ЛФГЭ) в кристаллах со сложной зонной структурой при двухфотонном поглощении света.

Получены частотная и температурная зависимости тока фотонного механизма баллистического ЛФГЭ в квадратичном по волновому вектору приближении в энергетическом спектре свободных носителей.

Анализируются температурная зависимость тока сдвигового, двухфотонного линейного фотогальванического эффекта.

Указано на возможность обнаружения тока баллистического ЛФГЭ, квадратичного по интенсивности возбуждающего света, в кристаллах без центра инверсии.

Под фотогальваническим эффектом (ФГЭ) понимают возникновение фототока в однородных пьезоэлектрических кристаллах при их однородном освещении.

При двухфотонном поглощении света в пьезоэлектриках возникает квадратичный по интенсивности (I) света фототок [¹]

$$j_{\alpha} = \chi_{\alpha\beta\gamma\mu\nu}^{(2)} I^2 e_{\beta} e_{\gamma} e_{\mu} e_{\nu}^*, \quad (1)$$

где e — вектор поляризации света, $\chi^{(2)}$ — тензор двухфотонного ФГЭ ($\alpha, \beta, \gamma, \mu, \nu = x, y, z$).¹

Для простоты далее не учитываем эффекта увлечения свободных носителей фотонами, т. е. пренебрегаем волновым вектором фотона (q'). Для классификации перепишем (1), исходя из соображений симметрии. При этом учтем, что симметризованные $(e_{\alpha} e_{\beta}^* + e_{\beta}^* e_{\alpha}^*)/2$ и антисимметризованные $(e_{\alpha} e_{\beta}^* - e_{\beta}^* e_{\alpha}^*)/2$ произведения преобразуются по независимым представлениям. Тогда

$$j_{\alpha} = I^2 \left[A_{\alpha\beta\gamma\mu\nu} \frac{e_{\beta} e_{\gamma}^* + e_{\gamma} e_{\beta}^*}{2} \cdot \frac{e_{\mu} e_{\nu}^* + e_{\nu} e_{\mu}^*}{2} + i C_{\alpha\beta\mu\nu} (e \cdot e^*)_{\beta} \frac{e_{\mu} e_{\nu}^* + e_{\nu} e_{\mu}^*}{2} + D_{\alpha\beta\gamma} (e \cdot e^*)_{\beta} (e \cdot e^*)_{\gamma} \right], \quad (2)$$

где псевдовектор $(e \cdot e^*)$ определяет степень циркулярной поляризации света \mathcal{P}_c ; например, для поперечного электромагнитного излучения имеется следующее соотношение:

$$(e \cdot e^*) = \mathcal{P}_c (-i) q/q.$$

¹ Однофотонные механизмы ФГЭ, описываемые тензором третьего ранга, рассматривались в ряде работ (см., например, [²⁻⁴] и имеющиеся в них ссылки).

Тензоры A , C , D в (2) вещественны. Тензор пятого ранга A симметричен по двум последним парам индексов и имеет отличные от нуля компоненты лишь в кристаллах без центра инверсии. Псевдотензоры C имеют отличные от нуля компоненты в кристаллах любой симметрии. Тензор третьего ранга D , как и A , имеет отличные от нуля компоненты в кристаллах без центра инверсии. Фототок, связанный с первым (четвертым) слагаемым в (2), отличен от нуля лишь для линейно (циркулярно) поляризованного света и не возникает при возбуждении циркулярно (линейно) поляризованным светом. Поэтому ФГЭ, описываемый тензором A (D), удобно называть линейным (циркулярным) ФГЭ (ЛФГЭ или ЦФГЭ) при двухфотонном поглощении света (ДФПС).

Например, в арсениде галлия [кристаллографический класс $T_d(\bar{4}3m)$] имеются три линейно независимые компоненты тензора A , через которые выражаются остальные 9 (всего 12) отличные от нуля компоненты.

Поведение тензоров A , C , D при операции инверсии времени приведено в таблице. Уместно заметить, что тензоры A и D нечетны к инверсии времени. Поэтому ЛФГЭ и ЦФГЭ при ДФПС в отличие от однофотонного ЦФГЭ принципиально обусловлены процессами диссипации.

Тензор	Название эффекта	Четность к инверсии времени	Существуют ли в кристаллах с центром инверсии
A	Линейный ФГЭ при ДФПС	Нечетная	Нет
C	Линейно-циркулярный ФГЭ при ДФПС	Нетная	Да
D	Циркулярный ФГЭ при ДФПС	Нечетная	Нет

Заметим, что имеются два вклада в ФГЭ при ДФПС.

1. Баллистический вклад, обусловленный асимметрией процессов рассеяния (см. рисунок).

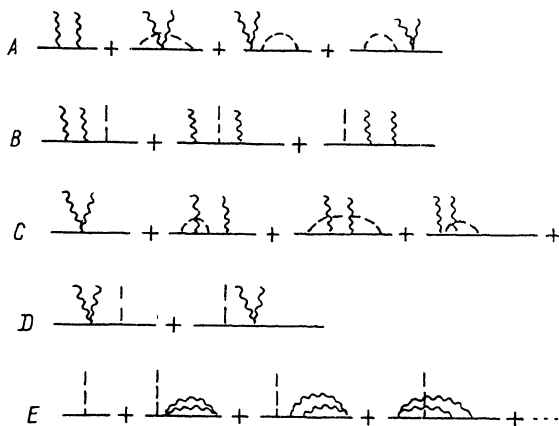
2. Сдвиговой вклад, связанный со сдвигом центра тяжести волновых пакетов свободных носителей при двухфотонных квантовых переходах.

В квантово-механическом приближении ток двухфотонного ЛФГЭ (ДЛФГЭ) определяется выражением

$$\mathbf{j} = e \sum_{nk, n'k'} \hat{v}_{n'k', nk} \rho_{nk, n'k'} \quad (3)$$

Здесь e — элементарный заряд, $\hat{v}_{n'k', nk}$ и $\rho_{nk, n'k'}$ — матричный элемент оператора скорости и матрицы плотности соответственно. Индекс n нумерует подзоны сложной зоны, а для кристаллов с вырожденной зоной и вырожденные состояния. Отметим здесь, что баллистический ДЛФГЭ определяется диагональной по зонным индексам компонентой матрицы плотности, а сдвиговой ДЛФГЭ — недиагональной по номерам подзон компонентой $\rho_{nk, n'k'}$. В первом случае $\hat{v}_{nk, nk} = \frac{1}{\hbar} \nabla E_{nk}$ — групповая скорость (E_{nk} — спектр носителей в зоне n), а во втором случае $\hat{v}_{n'k', nk}$ — межзонный матричный элемент скорости.

Для Больцмановской статистики свободных носителей выражение для тока баллистического ДЛФГЭ в приближении времени релаксации τ_{nk} определяется асимметричной частью вероятности перехода $W_{n'k', nk}$ из состояния (n, k) в (n', k') при двухфотонном поглощении света с участием фонона, возникающей из-за наличия слагаемых разной четности по волновому вектору в операторе взаимо-



Диаграммы Фейнмана—Келдыша, дающие вклад в БЛФГЭ в кристаллах со сложной зоной. Сплошная линия — электрон, волнистая — фотон, штриховая — фотон.

действия свободных носителей с фононами (фононный механизм) или фотонами (фотонный механизм)

$$j = e \sum_{nk, n'k'} v_{n',k'} \tau_{n'k'} W_{n'k', nk}^{(as)} \quad (4)$$

Для расчета вероятности оптического перехода, определяемой стандартной формулой квантовой механики [5], необходимо вычислить матричный элемент амплитуды рассеяния во втором порядке теории возмущения при одновременном поглощении двух фотонов.

Как и в случае однофотонного баллистического ЛФГЭ [2-4], прямые двухфотонные оптические переходы между подзонами сложной зоны не дают вклады в $W^{(as)}$. Вклад в $W^{(as)}$, определяющий баллистический ДЛФГЭ, дает интерференция двух матричных элементов третьего порядка (канал B) и интерференция матричных элементов первого и пятого (канал C), второго и четвертого порядков (канал A, см. рисунок). При этом такой вклад возникает лишь при выполнении закона сохранения энергии не только для начального и конечного состояний, но и для одного из промежуточных состояний.

Имеются три типа оптических переходов, дающих вклады в $W^{(as)}$, показанные на рисунке.

A. Переходы с двухфотонным поглощением света и поглощением или испусканием фонона.

B. Переходы с двухфотонным поглощением света, в которых фононы участвуют лишь в промежуточных переходах.

C. Переходы с поглощением или испусканием фонона, в которых фотоны участвуют в промежуточных переходах.

В вышеперечисленных случаях начальные состояния могут соответствовать как разным, так и одной и той же ветви спектра.

Здесь не приводим выражения для $W^{(as)}$, соответствующие процессам A—C, из-за их чрезвычайной громоздкости.

В связи с отсутствием экспериментальных исследований по двухфотонному фотогальваническому эффекту в дальнейшем ограничимся лишь модельным рассмотрением ДЛФГЭ.

Далее рассмотрим механизм баллистического линейного фотогальванического эффекта (БЛФГЭ) в *n*-GaP, обусловленный наличием слагаемых различной четности в операторе электрон-фотонного взаимодействия.

В отличие от ранее рассмотренного однофотонного фотогальванического эффекта БЛФГЭ имеет вклады от нижеперечисленных двух отдельных оптических каналов.

1. Одновременное поглощение двух фотонов.

2. Последовательное (двухступенчатое) поглощение двух отдельных фотонов. Считаем, что энергетическая щель в точке X зоны Бриллюэна n -GaP больше, чем тепловая энергия электронов $k_B T$.

Эффективный гамильтониан электронов $\mathcal{H}(\mathbf{k})$ вблизи точки X зоны Бриллюэна в линейном и квадратичном по \mathbf{k} приближении имеет вид, представленный в [6] [формула (1)].

Оператор взаимодействия электронов с длинноволновыми оптическими фононами выберем как

$$D_q = iC_F \frac{u_q q}{q^2}, \quad (5)$$

где C_F — константа фрелиховского электрон-фононного взаимодействия, u_q — амплитуда относительных смещений подрешеток при их оптическом колебании, $q = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$ — волновой вектор фонона.

Тогда после несложных, но громоздких вычислений имеем выражение для тока БЛФГЭ в виде

$$\begin{aligned} j = & 3 \frac{(2\pi)^2}{\hbar^2} e \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} f_{1\mathbf{k}} C_F^2 u_q^2 q^{-2} \text{Im} (M_{3'1'}^{(2)} M_{31}^{(2)*}) \times \\ & \times \left[\frac{\delta(E_{3'1'} - 2\hbar\omega \pm \hbar\Omega)}{E_{3'1'} - 2\hbar\omega} \delta(E_{31} - 2\hbar\omega) (v_3 \tau_3 - v_3 \tau_{3'}) + \right. \\ & + \frac{\delta(E_{1'1} \pm \hbar\Omega)}{E_{3'1'} + 2\hbar\omega} \delta(E_{31} - 2\hbar\omega) (v_1 \tau_{1'} - v_3 \tau_3) + \\ & \left. + \frac{\delta(E_{1'1} \pm \hbar\Omega)}{E_{31} - 2\hbar\omega} \delta(E_{3'1'} - 2\hbar\omega) (v_3 \tau_3 - v_1 \tau_{1'}) \right] \left(N_\Omega + \frac{1 \pm 1}{2} \right), \quad (6) \end{aligned}$$

где $\hbar\Omega$ — энергия LO -фонона, $E_{n'm} = E_{n\mathbf{k}'} - E_{m\mathbf{k}}$, E_m — энергетический спектр электронов в подзоне m , $M_{mn}^{(2)}$ — матричный элемент оператора электрон-двухфотонного взаимодействия:

$$M_{mn}^{(2)} = \left(\frac{eA_0}{c\hbar} \right)^2 (-\mathcal{H}(\mathbf{e}))_{mn} + \sum_l \frac{M_{m'l}^{(1)} M_{ln}^{(1)}}{E_{ln} - \hbar\omega}, \quad (7)$$

$M_{l'm'}^{(1)}$ — определяется матричным элементом оператора импульса между состояниями $|l\mathbf{k}'\rangle$ и $|m\mathbf{k}'\rangle$, $\mathcal{H}(\mathbf{e}) \equiv \mathcal{H}(\mathbf{k})|_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{e}}$. Здесь считали, что фотоны имеют одинаковую поляризацию и частоту (A_0 — амплитуда вектор-потенциала электромагнитной волны).

Анализируя $\text{Im} (\mathcal{H}_{3'1'}(\mathbf{e}) \mathcal{H}_{31}^*(\mathbf{e}))$ с учетом (4) в случае $|P_{k_z}|, |Dk_x k_y| \ll 2\Delta$, нетрудно убедиться в том, что процессы, обусловленные с одновременным поглощением двух фотонов, не дают вклады в БЛФГЭ в n -GaP, поскольку $\text{Im} (\mathcal{H}_{3'1'}(\mathbf{e}) \mathcal{H}_{31}^*(\mathbf{e})) = 0$. Это означает, что в рассматриваемом нами случае не возникает асимметричное распределение по импульсу фотовозбужденных электронов при одновременном двухфотонном поглощении света; оно

возникает при последовательном поглощении двух фотонов с участием LO -фононов.

Тогда в сферическом приближении в спектре электронов

$$E_{1,3} = A_{1,3}k^{(2)} \pm \Delta \quad (8)$$

окончательно имеем выражение для тока БЛФГЭ

$$j_a = j_0 \sum_{s=\pm 1} s \left[N_{\Omega}^{(-s)} \frac{A_3}{A_1} F_c^a - N_{\Omega}^{(s)} (F_A^a + F_B^a) \right], \quad (9)$$

где

$$F_c^a = \left(\frac{A_3/A_1}{1 + s \frac{A_3 - A_1}{A_1} a} - 1 \right) \eta_c^{-3} \frac{\tau_{3k_0} \sigma_a^{(C)} \tau_{1k_c} \frac{A_1}{A_3} \sigma_a^{(C)}}{\tau_{1k_0} (1 + \eta_c^2)},$$

$$F_A^a = \left(\frac{A_3/A_1}{1 - s \frac{A_3 - A_3}{A_1} a} - 1 \right) \eta_A^{-3} \frac{\tau_{3k_0} \sigma_a^{(A)} - \tau_{3k_A} \sigma_a^{(A)'}}{\tau_{1k_0} (1 + \eta_A^2)},$$

$$F_B^a = \left(\frac{A_3/A_1}{1 - s \frac{A_3 - A_1}{A_3} a} - 1 \right) \eta_B^{-3} \frac{(A_1/A_3) \tau_{1k_B} \sigma_a^{(B)} \tau_{3k_0} \sigma_B^{(B)}}{\tau_{1k_0} (1 + \eta_B^2)}, \quad (10)$$

$$\tau_{nk_j} = \tau_n [E_n(k_i)], \quad a = \Omega/\omega, \quad \eta_c = k_0/k_c, \quad \eta_{A,B} = k_{A,B}/k_0,$$

$$k_0^2 = 2(\hbar\omega - \Delta)/(A_3 - A_1), \quad k_c^2 = \frac{1}{A_1} \left[\frac{2A_1}{A_3 - A_1} (\hbar\omega - \Delta) + s\hbar\Omega \right],$$

$$k_A^2 = \frac{1}{A_3} \left[\frac{2A_1}{A_3 - A_1} (\hbar\omega - \Delta) - s\hbar\Omega \right], \quad k_B^2 = \frac{1}{A_1} \left[\frac{2A_1}{A_3 - A_1} (\hbar\omega - \Delta) - s\hbar\Omega \right],$$

$$j_0 = 48eP\mathcal{D}C^2 u_T^2 \left(\frac{I}{\hbar\omega} \right)^2 \frac{1}{n_w^2} \left(\frac{e^2}{c\hbar} \right)^2 \frac{A_1 k_0^4 A_3 \tau_{1k_0}}{(A_3 - A_1) \hbar\Omega (\hbar\omega)^4} f_{1k_0},$$

$$N_{\Omega}^{(s)} = N_{\Omega} + \frac{1+s}{2}, \quad N_{\Omega} - \text{число заполнения фононов,}$$

$$f_{1k_0} = \exp [(\mu - A_1 (A_3 - A_1)^{-1} (\hbar\omega - \Delta))/k_B T],$$

$$\sigma_a = (kk')^{-2} \frac{1}{(4\pi)^2} \int d\Omega_1 d\Omega_2 (\mathbf{ek})(\mathbf{ek}') \left[1 - 2 \frac{kk'\mu}{k^2 + k'^2} \right]^{-1} \times$$

$$\times [e_x(k'_y - k_y) + e_y(k'_x - k_x)] k_a, \quad (11)$$

$\sigma_a^{(A)} = \sigma_a(k' = k_A)$, $\sigma'_a = \sigma_a(k_a \rightarrow k'_a)$, $\mu = \cos(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$, Ω_1, Ω_2 — телесные углы векторов \mathbf{k}, \mathbf{k}' , n_w — показатель преломления света на частоте ω . Например:

$$\sigma_x^{(j)} = e_x e_y [3(Q_2 - \eta_i^{-1} Q_1) + e_x^2 (10Q_0 + 2Q_2 - 12\eta_i^{-1} Q_1)] / 45,$$

$$\sigma'_x^{(i)} = e_x e_y [3(\eta_i Q_1 - Q_3) + e_x^2 (12\eta_i Q_1 - 10Q_0 + 2Q_2)]/45, \quad (12)$$

$$\sigma'_z^{(i)} = 2e_x e_y e_z^2 (5Q_0 + Q_2 - 6\eta_i^{-1} Q_1)/45,$$

$$\sigma'_z^{(i)} = 2e_x e_y e_z^2 (6\eta_i Q_1 - 5Q_0 - Q_2)/45,$$

$$Q_n = \frac{1}{2} \int_{-1}^{+1} d\mu \left[1 - 2 \frac{kk'}{k^2 + k'^2 \mu} \right]^{-1} P_n(\mu),$$

$P_n(\mu)$ — полином Лежандра n -порядка.

Таким образом, спектральная и температурная зависимость тока баллистического ДЛФГЭ описывается формулой (9) с учетом (10)—(12).

Из-за отсутствия экспериментальных исследований по двухфотонному БЛФГЭ не имеем возможности сравнить теоретические результаты с экспериментальными данными. Поэтому укажем лишь на возможность обнаружения тока БЛФГЭ, квадратичного (нелинейного) по интенсивности возбуждающего света, в кристаллах без центра инверсии.

Следует отметить, что коэффициенты двух- и однофотонного поглощения линейно поляризованного света в n -GaP при прямых оптических переходах между подзонами X_3 и X_1 зоны проводимости связаны между собой соотношением

$$\frac{K^{(2)}}{K^{(1)}} = \frac{3}{5} \frac{I}{I_0} e^{-\beta E_1^*} (1 + e^{-\beta \hbar \omega}) \frac{2\hbar\omega - \Delta}{\hbar\omega} \left(\frac{2\hbar\omega - \Delta}{\hbar\omega - \Delta} \right)^{3/2}, \quad (13)$$

где $E_1^* = A_3 \hbar\omega (A_3 - A_1)^{-1}$, $\beta^{-1} = k_B T$ и введена характерная интенсивность

$$I_0 = \frac{cn_w (\hbar\omega)^3}{3\pi e^2 (A_3 - A_1)}. \quad (14)$$

Тогда оценка показывает, что при $T = 300$ К, $\hbar\omega - \Delta = 14$ мэВ баллистический двухфотонный ток линейного фотогальванического эффекта становится сравнимым с однофотонным при интенсивности $I \approx 0.22$ МВт/см². При оценке мы приняли, что $A_3 - A_1 = \hbar^2/2m^*$, $m^* = 0.36m_0$, $\hbar\Omega = 51$ мэВ, $n_w = 3$, $\Delta = 335$ мэВ [7].

Заметим, что и при двухфотонном поглощении света может возникать сдвиговый ДЛФГЭ, и нетрудно показать, что температурная зависимость тока сдвигового ДЛФГЭ определяется температурной зависимостью коэффициента двухфотонного поглощения света.

В заключение авторы выражают благодарность Н. С. Аверкиеву за ценные замечания.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Р. Я. Расулов. Изв. АН РУ. Сер. физ.-мат. лит., № 6, 58 (1988).
- [2] А. В. Андрианова, Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус, Р. Я. Расулов, И. Д. Ярошецкий. ЖЭТФ, 81, 2080 (1981).
- [3] Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус. В сб.: Проблемы современной физики, 275. Л. (1980).
- [4] В. И. Белиничер, Б. И. Стурман. УФН, 130, 415 (1980).
- [5] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Квантовая механика. Нерелятив. теория. Т. III, 752. М. (1974).
- [6] Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус. ФТП, 13, 992 (1979).
- [7] A. F. Gibson, S. Kothari, C. B. Hatch, N. F. Kimmit, A. Serafetinides. J. Phys. C.: Sol. St. Phys., 10, 905 (1977).