ТЕОРИЯ КОГЕРЕНТНОГО ФОТОГАЛЬВАНИЧЕСКОГО ЭФФЕКТА

Энтин М. В.

Построена теория фотогальванического эффекта (ФГЭ), обусловленного двумя когерентными световыми волнами с частотами ω и 2ω. Когерентный ФГЭ в отличие от объемного возможен в кристалле с центром инверсии и в изотропной среде.

Рассмотрены случаи поглощения света на свободных носителях и примесь-зонных переходах.

В работе [1] было предсказано возникновение стационарного тока в однородном проводящем материале под действием двух световых волн с частотами ω и 2ω. В отличие от объемного фотогальванического эффекта (ОФГЭ) когерентный ФГЭ не требует отсутствия центра инверсии и возможен даже в изотропном материале.

С феноменологической точки зрения, ток описывается выражением

$$j_i = \alpha_{ijkl} E^j_{2\omega} E^k_{-\omega} E^l_{-\omega} + \text{к. с.}, \tag{1}$$

где электромагнитное поле имеет вид

$$\mathbf{E} = 2\,\mathrm{Re}\,(\mathbf{E}_\omega e^{i\omega t} + \mathbf{E}_{2\omega} e^{2i\omega t}), \qquad \mathbf{E}_{-\omega} = \mathbf{E}^*_\omega. \tag{2}$$

Тензор четвертого ранга α_{ijkl} симметричен по последней паре индексов. В частном случае изотропного материала

$$\mathbf{j} = \alpha_1 \mathbf{E}_{2\omega} E^2_{-\omega} + \alpha_2 \mathbf{E}_{-\omega} (\mathbf{E}_{2\omega} \mathbf{E}_{-\omega}) + \text{к. с.}$$

Если ввести фазы компонент поля и элемента тензора α_{ijkl}

$$E^j_\omega = |E^j_\omega|\, e^{i\varphi_{\omega, j}}, \quad \alpha_{ijkl} = |\alpha_{ijkl}|\, e^{i\varphi_{ijkl}},$$

то (1) можно переписать в действительном виде

$$j_i = 2 \sum_{j k = l} |\alpha_{ijkl}|\, |E^j_{2\omega} E^k_{-\omega} E^l_{-\omega}| \cos(\varphi_{2\omega j} - \varphi_{\omega j} - \varphi_{\omega k} + \varphi_{ijkl}).$$

В отличие от ОФГЭ когерентный ФГЭ зависит от разности фаз полей. Как следствие, он возможен только под действием когерентного света.

В работе [2] когерентный ФГЭ рассматривался на основе квантового кинетического уравнения для модели свободных электронов, взаимодействующих с акустическими фононами в области частот $\omega\tau \gg \omega_q \tau \gg 1$, где ω_q — частота фононов. В настоящей работе это явление изучается в классической области частот $\omega \ll \varepsilon$, где ε — энергия электрона, т. е. в области поглощения на свободных носителях, а также в области примесь-зонных переходов. Там, где области применимости пересекаются, наш результат отличается от полученного в [2].

1. Область поглощения на свободных носителях

Рассмотрим действие поля E на классический изотропный электронный газ с квадратичным спектром. Кинетическое уравнение

$$\frac{\partial f}{\partial t} + e\mathbf{E}\,\frac{\partial f}{\partial \mathbf{p}} = -If,$$

где $\hat{I}$ — интеграл столкновений, следует решать с помощью теории возмущений по электрическому полю. Эффект возникает в третьем порядке по E, во втором — по $\mathbf{E}$ и в первом — по $\mathbf{E}_{2\omega}$.

Формальное решение в третьем порядке по $\mathbf{E}$ имеет вид

$$f_3 = -\left[\left(\frac{\partial}{\partial t} + \hat{I}\right)^{-1} e\left(\mathbf{E}\,\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)\right]^3 f_0. \tag{3}$$

Выделяя члены с нулевой частотой, получим

$$\begin{aligned} f_3 = -e^3\hat{I}^{-1}\Bigg[&\left(\mathbf{E}_{2\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)\frac{1}{-2i\omega+\hat{I}}\left(\mathbf{E}_{-\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)\frac{1}{-i\omega+\hat{I}}\left(\mathbf{E}_{-\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}f_0\right)+ \\ &+\left(\mathbf{E}_{-\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)\frac{1}{i\omega+\hat{I}}\left(\mathbf{E}_{-\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)\frac{1}{2i\omega+\hat{I}}\left(\mathbf{E}_{2\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)f_0 + \\ &+\left(\mathbf{E}_{-\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)\frac{1}{i\omega+\hat{I}}\left(\mathbf{E}_{2\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)\frac{1}{-i\omega+\hat{I}}\left(\mathbf{E}_{-\omega}\frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}\right)f_0\Bigg] + \text{к. с.} \end{aligned} \tag{4}$$

Ток имеет вид

$$j_i = 2e\int\frac{d^3p}{(2\pi)^3}\,v_i f_3.$$

Пусть оператор столкновений определяется только примесями. Тогда справедливы равенства

$$\begin{aligned} \hat{I}f(\varepsilon) = 0, \quad \hat{I}\,[\mathbf{p}f(\varepsilon)] = \frac{\mathbf{p}f(\varepsilon)}{\tau_1}, \\ \hat{I}\left[\left(p_ip_j - \frac{1}{3}p^2\delta_{ij}\right)f(\varepsilon)\right] = \left(\frac{1}{\tau_2}\right)f(\varepsilon)\left(p_ip_j - \frac{1}{3}p^2\delta_{ij}\right). \end{aligned} \tag{5}$$

Из конечного результата видно, что без учета неупругости ответ расходится при $\omega \to 0$. Это неправильно, так как при $\omega \to 0$ ответ должен переходить в разогревные добавки к закону Ома. Для приближенного учета разогрева заменим $\hat{I}f(\varepsilon)$ на $f(\varepsilon)/\tau_0$, где $\tau_0 \equiv \tau_\varepsilon$ — время релаксации по энергии.

Окончательный ответ содержит вклады, определяемые τ_0 и τ_2: $\alpha_i = \alpha_i^{(0)} + \alpha_i^{(2)}$, первый из которых имеет вид

$$\alpha^{0}_{1,2} = -\frac{2^{7/2}e^4}{3\pi^2\sqrt{m}}\int\limits_0^\infty \varepsilon^{3/2}\tau_1 d\varepsilon\,\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\begin{Bmatrix} \tau_0(-2\omega)\left(1+\frac{2}{3}\varepsilon\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\right)\tau_1(-\omega)\,\frac{\partial f_0}{\partial\varepsilon} \\ \tau_0(\omega)\left(1+\frac{2}{3}\varepsilon\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\right)(\tau_1(2\omega)+\tau_1(-\omega))\,\frac{\partial f_0}{\partial\varepsilon} \end{Bmatrix}, \tag{6}$$

где $\tau_n(\omega) = \tau_n/(1+i\omega\tau_n)$. Второй член можно представить в форме

$$\alpha^{2}_{1,2} = -\frac{2^{5/2}e^4}{45\pi^2\sqrt{m}}\int d\varepsilon\begin{Bmatrix} -2a_1(\varepsilon) + 3a_2(\varepsilon) \\ 6a_1(\varepsilon) + a_2(\varepsilon) \end{Bmatrix} \tag{7}$$

где

$$a_1(\varepsilon) = \tau_1\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\left[\varepsilon^{5/2}\tau_2(-2\omega)\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\left(\tau_1(-\omega)\,\frac{\partial f_0}{\partial\varepsilon}\right)\right],$$

$$a_2(\varepsilon) = \tau_1\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\left[\varepsilon^{5/2}\tau_2(\omega)\frac{\partial}{\partial\varepsilon}(\tau_1(2\omega)+\tau_1(-\omega))\,\frac{\partial f_0}{\partial\varepsilon}\right].$$

В пределе $\omega\tau_1 \ll 1$ преобладает слагаемое α_i^0, в частности, при

$$\alpha_2^0 = 2\alpha_1^0 = \frac{-2^{5/2}e^4}{3\pi^2\sqrt{m}}\int\limits_0^\infty \varepsilon^{3/2}\tau_1 d\varepsilon\,\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\left[\tau_0\left(1+\frac{2}{3}\varepsilon\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\right)\left(\tau_1\frac{\partial f_0}{\partial\varepsilon}\right)\right]. \tag{8}$$

Если выполнены неравенства $\omega\tau_1 \ll 1$, $\omega\tau_\varepsilon \gg 1$, то

$$\alpha_2^0 = -4\alpha_1^0 = \frac{2^{5/2}e^4 i}{3\pi^2\omega\sqrt{m}}\int\limits_0^\infty \varepsilon^{3/2}\tau_1 d\varepsilon\,\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\left[\left(1+\frac{2}{3}\varepsilon\frac{\partial}{\partial\varepsilon}\right)\tau_1\frac{\partial f_0}{\partial\varepsilon}\right]. \tag{9}$$

Наконец, в высокочастотном пределе $\omega\tau_1 \gg 1$

$$\begin{Bmatrix} a_1 \\ a_2 \end{Bmatrix} = \frac{\sqrt{2}\, e^4 l}{90\pi^2 \sqrt{m}\, \omega^3} \int_0^\infty \varepsilon^{3/2} d\varepsilon\, \tau_1 \left(5 + \varepsilon \frac{\partial}{\partial \varepsilon}\right) \begin{Bmatrix} \dfrac{\partial}{\partial \varepsilon}\left[\left(\dfrac{39}{\tau_1} - \dfrac{4}{\tau_2}\right)\dfrac{\partial f_0}{\partial \varepsilon}\right] \\ 9\dfrac{\partial}{\partial \varepsilon}\left(\dfrac{1}{\tau_1}\dfrac{\partial f_0}{\partial \varepsilon}\right) - \dfrac{4}{\tau_2}\dfrac{\partial^2 f_0}{\partial \varepsilon^2} \end{Bmatrix}. \tag{10}$$

В этом пределе формулы работы [2] и (10) должны совпадать. Однако из [2] следует другая поляризационная зависимость, не согласующаяся с феноменологией (1). Частотная зависимость в [2] для КФГЭ имеет вид $1/\omega^4$ в отличие от зависимости $1/\omega^3$, даваемой формулой (10).

2. Область примесь-зонных переходов

В качестве модели примеси воспользуемся моделью потенциала нулевого радиуса, которая пригодна для описания состояний на мелкой нейтральной или, наоборот, на глубокой примеси.

Волновая функция удовлетворяет условию $(\psi r)' = -\varkappa\psi r$ при $r \to 0$. Величина $\varkappa$ связана с единственным уровнем энергии $\varepsilon_0 = -\varkappa^2/2m$ при $\varkappa > 0$. Волновые функции свободного и связанного состояний суть соответственно

$$e^{ipr} - \frac{1}{\varkappa + ip}\frac{e^{ipr}}{r}, \quad \sqrt{\frac{\varkappa}{2\pi}}\frac{e^{-\varkappa r}}{r}.$$

Матричные элементы перехода под действием поля E_ω имеют вид

$$a^{\omega}_{0p} = \sqrt{\frac{\varkappa}{2\pi}}\frac{4\pi}{i\omega}\frac{(\mathbf{pE}_\omega)}{\varkappa^2 + p^2}, \qquad a^{\omega}_{pp'} = \frac{1}{i\omega}\frac{4\pi}{p^2 - p'^2}\left[\frac{(\mathbf{p}'\mathbf{E}_\omega)}{\varkappa - ip} - \frac{(pE_\omega)}{\varkappa + ip}\right].$$

Вероятность перехода из основного состояния в свободное во втором порядке теории возмущений состоит из двух слагаемых, соответствующих изменению энергии электрона на 2ω и ω, $W = W_1 + W_2$:

$$W_1 = 2\pi\delta(\varepsilon_p + |\varepsilon_0| - \omega)\,\mathrm{Re}\left\{a^{-\omega}_{0p}\int\frac{d^3p'}{(2\pi)^3}\left[\frac{a^{2\omega}_{pp'}a^{-\omega}_{p'0}}{\varepsilon_{p'} + |\varepsilon_0| + \omega - i\gamma} + \frac{a^{-\omega}_{pp'}a^{2\omega}_{p'0}}{\varepsilon_{p'} + |\varepsilon_0| - 2\omega - i\gamma}\right]\right\},$$

$$W_2 = 2\pi\delta(\varepsilon_p + |\varepsilon_0| - 2\omega)\,\mathrm{Re}\left\{a^{-2\omega}_{0p}\int\frac{d^3p'}{2\pi^3}\frac{a^{\omega}_{pp'}a^{\omega}_{p'0}}{\varepsilon_{p'} + |\varepsilon_0| - i\gamma - \omega}\right\}.$$

Подставляя в (11) матричные элементы, получаем

$$W_2 = \frac{16m\varkappa\pi}{3}\frac{1}{\varkappa^2 + p^2}\delta(\varepsilon_p + |\varepsilon_0| - 2\omega)\,\mathrm{Re}\left[\frac{(\mathbf{pE}_{-2\omega})E^2_\omega C}{\varkappa - ip}\right],$$

где

$$C = \pi\left\{\frac{1}{\varkappa^2 - s}\left[-\frac{\varkappa^3}{p^2 + s} + \frac{|s|^{3/2}}{p^2 + s}(\theta(s) + i\theta(-s)) + \frac{ip^3}{(\varkappa^2 + p^2)(p^2 + s)}\right]\right\},$$

$s = 2m(|\varepsilon_0| - \omega)$. Аналогично для W_1 находим

$$W_1 = \frac{16m\varkappa\pi}{3}\frac{1}{\varkappa^2 + p^2}\,\mathrm{Re}\left[\frac{(\mathbf{pE}_\omega)(\mathbf{E}_{-2\omega}\mathbf{E}_\omega)}{\varkappa - ip}(C' + C'')\right],$$

где C' и C'' отличаются от C заменой s на $s' = 2m(|\varepsilon_0| + \omega)$ и на $s'' = 2m \times (|\varepsilon_0| - 2\omega)$:

$$C' = \pi\left\{-\frac{\varkappa^3}{(\varkappa^2 - s')(p^2 + \varkappa^2)} + \frac{|s'|^{3/2}}{(\varkappa^2 - s')(p^2 + s')} + \frac{ip^3}{(\varkappa^2 + p^2)(p^2 + s')}\right\},$$

$$C'' = \pi\left\{-\frac{\varkappa^3}{(\varkappa^2 - s'')(p^2 + \varkappa^2)} + \frac{i|s''|^{3/2}}{(\varkappa^2 - s'')(p^2 + s'')} + \frac{ip^3}{(\varkappa^2 + p'')(p^2 + s'')}\right\}.$$

Подставляя в выражение для тока

$$j = eN_i\int v\tau_1 W(p)\frac{d^3p}{(2\pi)^3},$$

где N_i — концентрация примесей, находим

$$j = \frac{16m}{9\pi} \int d\varepsilon \frac{\varepsilon\varkappa}{\varkappa^2 + p^2} N_i \operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{\varkappa - ip} \left[E_{2\omega} E^2_{-\omega} C \delta (\varepsilon_p + |\varepsilon_0| - 2\omega) + \right.\right.$$

$$\left.\left. + E_\omega (E_{-2\omega} E_\omega) (C' + C'') \delta (\varepsilon_p + |\varepsilon_0| - \omega) \right] \right\}.$$

Для линейной поляризации вклады в ток, соответствующие изменению энергии на ω и 2ω, направлены по E_ω и $E_{2\omega}$. Они имеют разные пороги. Первый вклад определяется интерференцией процесса однофотонного поглощения кванта 2ω и двухфотонного поглощения $\omega+\omega$. Второй вклад связан с интерференцией поглощения кванта 2ω с индуцированным испусканием ω и однофотонного поглощения кванта ω.

Рассмотренный эффект является когерентным процессом. Если использовать монохроматический, но малокогерентный свет, то стационарный ток превратится в знакопеременный флуктуационный со временем корреляции, соответствующим времени когерентности пучков. Поскольку реальные лазеры имеют как правило не очень большое время когерентности, при использовании двух лазеров с частотами ω и 2ω ток будет флуктуировать. Однако если использовать один лазер и нелинейную среду для получения второй гармоники, то поля будут строго сфазированы, а именно $\varphi_{2\omega}=2\varphi_\omega+\varphi_0$, так что из ответа флуктуации фазы выпадут.

Другое замечание касается роли волнового вектора. В формуле (1) мы им пренебрегли. С учетом волнового вектора q ток, однородный в пространстве, определяется соотношением

$$j_i = \sum_{q_1 q_2} a_{ijkl} E^j_{2\omega,\, q_1+q_2} E^k_{-\omega,\, -q_1} E^l_{-\omega,\, -q_2} + \text{к. с.}$$

При наличии двух волн $q_1=q_2$. Условия синхронизма имеют вид $\omega(q_1)=\omega$, $\omega(2q_1)=2\omega(q_1)$, где $\omega_q=cq$. В пренебрежении дисперсией они выполняются, если волны колинеарны.

При учете изотропной дисперсии $\omega^2(q)=c^2q^2-aq^4$ синхронизм нарушается и ток становится зависящим от координат по закону $\sin(r\cdot\Delta q)$ с волновым вектором $\Delta q=3aq_1^2/c^2$. Величину a можно оценить, если принять диэлектрическую проницаемость равной $\chi=1-[\omega_p^2/(\omega^2-\omega_0^2)]$. Тогда для закона дисперсии получим при малых q

$$\omega^2 = q^2c^2 - \frac{\chi_0 - \chi_\infty}{\omega_0^2} (qc)^4,$$

откуда $\Delta q/q_1=3(\omega/\omega_0)^2(\chi_0-\chi_\infty)$. В анизотропном кристалле без учета дисперсии условия синхронизма, так же как в изотропном, выполняются только для колинеарных волн. Причина состоит в квадратичной зависимости $\omega^2(q) \sim q^2$.

Для наблюдения КФГЭ можно воспользоваться тонким образцом. Если свет направлен перпендикулярно поверхности, а толщина образца меньше $1/\Delta q$, то ток однороден по сечению образца

Отметим, наконец, что фазовая чувствительность эффекта требует тщательности постановки эксперимента: точного соблюдения колинеарности пучков, сохранения во времени разности оптических путей, подавления дифракции.

Список литературы

[1] Поляновский В. М., Шмелев Г. М., Нгуен Хонг Шон // Тез. докл. II Респ. конф. по фотоэлектрическим явлениям в полупроводниках. Киев, 1982. С. 194—195.

[2] Шмелев Г. М., Нгуен Хонг Шон, Цуркан Г. И. // Изв. вузов СССР. Физика. 1985. Т. 28. В. 2. С. 84—88.

Институт физики полупроводников
СО АН СССР
Новосибирск

Получена 6.10.1988
Принята к печати 15.02.1989