Низкочастотное поведение оптических эффектов пространственной дисперсии

© В.Н. Гриднев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: gridnev@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 7 июля 2000 г.)

Дано теоретическое объяснение наблюдавшейся недавно в полупроводниках $Cd_{1-x}Mn_xTe$, $Zn_{1-x}Mn_xTe$ и GaAs независимости от частоты невзаимного двупреломления света в области частот, меньших частоты, соответствующей краю межзонного поглощения. Показано, что при таких частотах симметрия эффекта повышается, если энергия рождаемых светом возбуждений $\hbar\omega_n(\mathbf{k})$ слабо зависит от импульса фотона $\mathbf{k}$. В этом случае невзаимное двупреломление полностью определяется тензором второго ранга — магнитоэлектрическим тензором. Указано на возможность наблюдения невзаимного двупреломления света в магнитных средах с тензорным параметром порядка.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект № 99-02-18028) и программой "Фундаментальная спектроскопия".

В недавно опубликованных работах [1,2] был экспериментально обнаружен ряд необычных свойств двупреломления света $\Delta n(\omega)$, индуцированного внешним магнитным полем в кубических полупроводниках $Cd_{1-x}Mn_xTe$, $Zn_{1-x}Mn_xTe$ и GaAs. Одно из них состоит в независимости двупреломления от частоты при энергиях кванта света $\hbar\omega$, меньших ширины запрещенной зоны E_g (исключая малую область частот $\sim 0.2\,\mathrm{eV}$ вблизи E_g). На первый взгляд в такой независимости двупреломления от частоты нет ничего удивительного, так как обычное двупреломление (в оптически анизотропных кристаллах) также практически не зависит от частоты в области прозрачности. Однако эти явления существенно различаются, поскольку магнитоиндуцированное двупреломление является эффектом линейной пространственной дисперсии, т. е. связано с зависящим от волнового вектора света $\mathbf{k}$ вкладом в тензор оптической диэлектрической проницаемости кристалла соотношением $\Delta\varepsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k},\eta) = \gamma_{ikl}^{(s)}(\omega,\eta)k_l$, где $\gamma_{ikl}^{(s)}$ — T-нечетный, симметричный по индексам i и k тензор, а символ η обозначает T-нечетную величину, характеризующую состояние среды (или внешнее магнитное поле) и в общем случае являющуюся по отношению к пространственным преобразованиям некоторым тензором. Нечетность тензора $\gamma_{ikl}^{(s)}$ по отношению к обращению времени следует из соотношений симметрии Онсагера $\Delta\varepsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k},\eta) = \Delta\varepsilon_{ki}(\omega,-\mathbf{k},-\eta)$. Как и оптическая активность, которая описывается T-четным, антисимметричным по i и k тензором $\gamma_{ikl}^{(a)}$, невзаимное двупреломление может наблюдаться только в нецентросимметричных кристаллах. Различие между обычным и невзаимным двупреломлением на феноменологическом уровне отражает существенные отличия в микроскопической природе обоих явлений.

Помимо частотной независимости $\Delta n(\omega)$ при $\hbar\omega < E_g$ в работах [1,2] была обнаружена другая особенность невзаимного двупреломления. Оказалось, что при этих частотах тензор $\gamma_{ikl}^{(s)}$ имеет более высокую симметрию по сравнению с той, которая допускается точечной группой кристалла. Другими словами, при $\hbar\omega < E_g$ между некоторыми компонентами тензора $\gamma_{ikl}^{(s)}$ возникают соотношения, указывающие на повышение его симметрии и не зависящие от исследуемого кристалла.

В настоящей работе мы дадим объяснение перечисленным выше особенностям невзаимного двупреломления. С этой целью рассмотрим зависимость от частоты тензора оптической диэлектрической проницаемости кристалла при частотах, меньших частот электронных переходов. Зависящий от волнового вектора вклад $\Delta\varepsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k})$ в действительную часть тензора диэлектрической проницаемости при нулевой температуре имеет вид [3]

$$\Delta\varepsilon_{ik}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{4\pi}{\hbar\omega^2 V} \times \sum_n \left[\frac{J^i_{0,n-\mathbf{k}}(\mathbf{k})J^k_{n-\mathbf{k},0}(-\mathbf{k})}{\omega_{n-\mathbf{k}}-\omega} + \frac{J^k_{0,n\mathbf{k}}(-\mathbf{k})J^i_{n\mathbf{k},0}(\mathbf{k})}{\omega_{n\mathbf{k}}+\omega}\right], \quad (1)$$

где $\mathbf{J}(\mathbf{k})$ — Фурье-компонента оператора тока, $\mathbf{r}_\alpha$ и $\mathbf{v}_\alpha$ — операторы координаты и скорости α-й частицы соответственно, $\hbar\omega_{n\mathbf{k}}$ — энергия перехода из основного состояния $|0\rangle$ в возбужденное $|n\mathbf{k}\rangle$.

При малых волновых векторах $\mathbf{k}$ матричный элемент $J^i_{n\mathbf{k},0}(\mathbf{k})$ можно разложить по степеням $\mathbf{k}$. В линейном по $\mathbf{k}$ приближении имеем

$$J^i_{n\mathbf{k},0}(\mathbf{k}) = i\omega_n\left(D^i_{n0} + Q^{il}_{n0}k_l\right) + ie_{ils}M^s_{n0}k_l, \qquad (2),$$

где $\omega_n = \omega_{n0}$ и $|n\rangle = |n\mathbf{k}=0\rangle$. Это разложение является общим, однако явный расчет параметров разложения D^i_{n0}, Q^{il}_{n0} и M^s_{n0} зависит от принятой модели электронных состояний кристалла.

Подставляя (2) в (1) и сохраняя линейные по $\mathbf{k}$ члены, получим тензоры $\gamma_{ikl}^{(a)}$ и $\gamma_{ikl}^{(s)}$, определяющие естественную оптическую активность и невзаимное двупреломление соответственно. Поскольку нас интересует $\Delta\varepsilon_{ik}(\omega, \mathbf{k})$ при частотах, малых по сравнению с частотами электронных переходов ω_n, разложим выражение (1) по степеням параметра ω/ω_n и удержим первые два члена разложения. Непосредственным вычислением легко убедиться, что первый член разложения (содержащий нулевую степень параметра ω/ω_n) антисимметричен по индексам i и k. Поскольку мы рассматриваем линейные по $\mathbf{k}$ слагаемые, этот член мог бы вносить вклад в оптическую активность. Однако в силу хорошо известных в теории оптической активности правил сумм [4] этот член в точности равен нулю. Ненулевой вклад в оптическую активность возникает только при учете квадратичных по параметру ω/ω_n членов разложения (1). Соответствующие выражения хорошо известны, и мы не будем их здесь приводить. Отметим только, что поворот плоскости поляризации пропорционален ω^2 в рассматриваемой области частот.

Перейдем теперь к рассмотрению невзаимного двупреломления, описываемого линейными по параметру ω/ω_n членами разложения (1). Действительно, эти члены симметричны по индексам i и k и, как следствие соотношений Онсагера, являются T-нечетными. Таким образом, получаем следующее выражение для $\gamma_{ikl}^{(s)}$:

$$\gamma_{ikl}^{(s)} = e_{ils}\alpha_{ks} + e_{kls}\alpha_{is} + \sigma_{ikl}, \tag{3}$$

где

$$\alpha_{is} = \frac{4\pi}{\hbar\omega V}\sum_n \frac{D_{0,n}^i M_{n,0}^s + D_{n,0}^i M_{0,n}^s}{\omega_n}, \tag{4}$$

$$\alpha_{ikl} = \frac{4\pi}{\hbar\omega V}\sum_n \frac{D_{0n}^i D_{n0}^k + D_{n0}^k D_{0n}^i}{\omega_n}\frac{\partial\omega_{n\mathbf{k}}}{\partial k_l}\bigg|_{\mathbf{k}\to 0}. \tag{5}$$

Как видно из этих формул, матричные элементы оператора электрического квадрупольного момента Q_{n0}^{il} не входят в выражения (3)–(5), определяющие $\gamma_{ikl}^{(s)}$ при низких частотах. Последнее слагаемое в (3), т.е. тензор σ_{ikl}, отражает существующую в трансляционно-инвариантной среде зависимость энергии возбуждения (электрон-дырочной пары) от $\mathbf{k}$ и не равно нулю, только если $\omega_{n\mathbf{k}} \neq \omega_{n-\mathbf{k}}$. В [5] было получено общее выражение для тензора $\gamma_{ikl}^{(s)}$, справедливое при любой частоте света. Однако рассмотрение в [5] велось применительно к антиферромагнетику–магнитоэлектрику Cr_2O_3, свойства симметрии которого диктуют равенство $\omega_{n\mathbf{k}} = \omega_{n-\mathbf{k}}$. По этой причине полученное в [5] выражение для тензора $\gamma_{ikl}^{(s)}$ не содержит вклада, обусловленного производной $\partial\omega_n/\partial\mathbf{k}$. В полупроводниках со структурой цинковой обманки зависимость ω_n от $\mathbf{k}$ в магнитном поле в экситонной области спектра исследовалась в [6,7].

В оптических экспериментах по распространению света $\mathbf{k}$ и ω связаны соотношением $ck(\omega)/\omega = n(\omega)$, где $n(\omega)$ — показатель преломления, причем в области частот $\omega < \omega_n$ $n(\omega) \simeq \text{const}$. Поскольку невзаимное двупреломление $\Delta n \propto \gamma_{ikl}^{(s)} k_l$, то, как следует из (3)–(5), $\Delta n(\omega) \simeq \text{const}$ в рассматриваемой области частот. Именно такое поведение $\Delta n(\omega)$ и было обнаружено экспериментально [1,2] в полупроводниках $Cd_{1-x}Mn_xTe$, $Zn_{1-x}Mn_xTe$ и GaAs при $\hbar\omega < E_g$.

Рассмотрим теперь симметрийные свойства тензора $\gamma_{ikl}^{(s)}$, представленного выражением (3). Два первых слагаемых в правой части (3) определяются тензором второго ранга α_{is}. При переходе к однородному полю вклад этих слагаемых в электромагнитный отклик среды соответствует магнитоэлектрическому эффекту [8]. Поэтому тензор α_{is}, определяемый выражением (4), можно интерпретировать как часть полного магнитоэлектрического тензора, обусловленную электронными переходами, а соответствующий вклад в $\gamma_{ikl}^{(s)}$ мы будем называть магнитоэлектрическим. Последнее слагаемое в (3), т.е. тензор σ_{ikl}, в общем случае нельзя свести к тензору второго ранга; другими словами, он содержит в себе неприводимый тензор третьего ранга, который, следуя [5], мы будем называть квадрупольным. Важно, что квадрупольный и магнитоэлектрический вклады в невзаимное двупреломление можно разделить экспериментально [1,2]. Это разделение основано на различной угловой зависимости невзаимного двупреломления, обусловленного магнитоэлектрическим и квадрупольным вкладами в $\gamma_{ikl}^{(s)}$, от ориентации кристалла. Анализ этой зависимости для кубических полупроводников $Cd_{1-x}Mn_xTe$ и $Zn_{1-x}Mn_xTe$ ($x \simeq 0.4$), выполненный в [1,2], показал, что в области прозрачности при $\hbar\omega < E_g$, где $\Delta n(\omega) \simeq \text{const}$, квадрупольный вклад в $\Delta n(\omega)$ значительно меньше магнитоэлектрического. Аналогичное поведение было обнаружено в диэлектриках Cr_2O_3 [9] и $Co_3B_7O_{13}I$ [10]. Первый их них является антиферромагнетиком–магнитоэлектриком, поэтому невзаимное двупреломление является в нем спонтанным эффектом. В парамагнетике $Co_3B_7O_{13}I$ двупреломление создавалось внешним магнитным полем.

Отсутствие заметного квадрупольного вклада в диэлектиках Cr_2O_3 и $Co_3B_7O_{13}I$ легко объяснить, если учесть, что этот вклад, как видно из (5), пропорционален $\partial\omega_n/\partial\mathbf{k}$, т.е. зависит от дисперсии электронных возбуждений. Однако в диэлектриках с большой шириной запрещенной зоны, какими и являются эти кристаллы, дисперсия мала (а в Cr_2O_3 $\partial\omega_k/\partial\mathbf{k} = 0$ при $\mathbf{k} = 0$ по условиям симметрии), а следовательно, мал квадрупольный вклад в $\gamma_{ikl}^{(s)}$.

Сложнее понять причины относительной малости квадрупольного вклада в магнитных полупроводниках $Cd_{1-x}Mn_xTe$ и $Zn_{1-x}Mn_xTe$, где дисперсия электронных возбуждений существенна. Учитывая, что эксперименты проводились на образцах со значительной концентрацией ионов Mn^{2+} ($x \simeq 0.4$), можно предположить, что существенный вклад в эффект вносят $d{-}d$-переходы в ионе Mn^{2+}. Обычно вклад этих переходов в оптические константы твердых тел мал, поскольку матричные элементы оператора электрического дипольного момента D_{0n} для них отличны от нуля лишь благодаря относительно слабой нецентросимметричной части кристаллического поля. Однако эта малость сказывается лишь на оптических эффектах, существующих в электродипольном приближении (в частности, без учета магнитодипольных переходов), и не играет роли в данном случае, поскольку произведение матричных элементов $D^{i}_{0,n}M^{s}_{n,0}$ всегда отлично от нуля лишь благодаря нецентросимметричности кристалла. Поэтому вклад $d-d$-переходов в ионе Mn^{2+} в магнитоэлектрический тензор (4) может быть сравним с вкладом в этот тензор от междузонных переходов. В то же время $d-d$-переходы хорошо локализованы и поэтому не вносят существенного вклада в квадрупольный тензор σ_{ikl}. Это предположение можно было бы проверить, определяя относительную роль квадрупольного вклада в невзаимное двупреломление в полупроводниках, не содержащих ионы Mn^{2+}. Измерения частотно-независимого невзаимного двупреломления в CdTe, ZnTe и GaAs были выполнены в [11], однако из-за малости Δn, связанной в том числе с отсутствием обменного усиления междузонных переходов ионами Mn^{2+}, надежное разделение магнитоэлектрического и квадрупольного вкладов в Δn оказалось невозможным. Тем не менее, несмотря на остающуюся неопределенность в интерпретации этих экспериментов, из предыдущего рассмотрения можно сделать вывод о существенном влиянии дисперсии электронных возбуждений на невзаимное двупреломление. Такое влияние — характерная черта оптических эффектов пространственной дисперсии, причем в данном конкретном случае оно проявляется особенно отчетливо, определяя не только величину, но и симметрию эффекта.

В заключение укажем на возможность наблюдения невзаимного двупреломления в среде, магнитная структура которой характеризуется тензорным параметром порядка, а именно тройным коррелятором микроскопической плотности магнитного момента $\langle m_i(\mathbf{r}_1)m_k(\mathbf{r}_2)m_l(\mathbf{r}_3)\rangle$, при условии, что такой коррелятор является нечетным относительно пространственной инверсии. При этом среднее значение $\langle \mathbf{m}(\mathbf{r})\rangle$ может быть равным нулю. Действительно, в этом случае тензор σ_{ikl} в (3), имеющий такие же свойства симметрии, можеть быть отличен от нуля. Такую магнитную структуру трудно обнаружить с помощью традиционных резонансных и рентгенографических методов. Если же тройной коррелятор плотности магнитного момента является четным относительно пространственной инверсии, то в среде с такой магнитной структурой должно наблюдаться квадратичное по волновому вектору света $\mathbf{k}$ фарадеевское вращение [12]. Разлагая (1) по степеням $\mathbf{k}$ и ω/ω_n, легко показать, что при малых частотах угол поворота плоскости поляризации света $\phi \propto \omega^2$, т.е. ведет себя так же, как и при обычном фарадеевском вращении. В то же время при высоких частотах квадратичное по $\mathbf{k}$ фарадеевское вращение $\phi(\omega) \simeq \mathrm{const}$ [12].

Автор благодарит Б.Б. Кричевцова и Р.В. Писарева за обсуждение затронутых в статье вопросов.

Список литературы

[1] B.B. Krichevtsov, R.V. Pisarev, A.A. Rzhevsky, V.N. Gridnev, H.-J. Weber. Phys. Rev. **B57**, *23*, 14 611 (1998).
[2] Б.Б. Кричевцов, Р.В. Писарев, А.А. Ржевский, В.Н. Гриднев, Х.-Ю. Вебер. ЖЭТФ **114**, *3*, 1018 (1998).
[3] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1979). 432 с.
[4] В.М. Агранович. Теория экситонов. Наука, М. (1968). 382 с.
[5] R.M. Hornreich, S. Shtrikman. Phys. Rev. **171**, *3*, 1065 (1968).
[6] О.В. Гоголин, В.А. Цветков, Е.Г. Цицишвили. ЖЭТФ **87**, *3*, 1038 (1984).
[7] Е.Г. Цицишвили. ФТП **20**, *2*, 650 (1986).
[8] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. Наука, М. (1992). 661 с.
[9] B.B. Krichevtsov, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, V.N. Gridnev. Phys. Rev. Lett. **76**, *26*, 4628 (1996).
[10] B.B. Krichevtsov, A.A. Rzhevsky, H.-J. Weber. Phys. Rev. **B61**, *15*, 10 084 (2000).
[11] Б.Б. Кричевцов, Р.В. Писарев, А.А. Ржевский, Х.-Ю. Вебер. Письма в ЖЭТФ **69**, *7*, 506 (1999).
[12] В.Н. Гриднев. Письма в ЖЭТФ **69**, *7*, 510 (1999).