

УДК 537.311.31

©1995

ЭЛЕКТРОННАЯ СТРУКТУРА И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА АЛЮМИНИЯ В ЛАЗЕРНОМ ПОЛЕ

И.В.Макавчик, В.И.Симаков, В.С.Демиденко

Сибирский физико-технический институт, Томск

(Поступила в Редакцию 12 апреля 1994 г.)

В окончательной редакции 10 ноября 1994 г.)

Предложен метод расчета квазиэнергетического зонного спектра электронов твердых тел, находящихся в когерентном электромагнитном поле. Метод основан на введении модельного гамильтониана. Выполнены расчеты квазиэнергетической зонной структуры алюминия. Проведен анализ изменений электронной структуры и оптических свойств этого материала при воздействии лазерного излучения.

В связи с широким распространением лазеров и их применением в различных технологических процессах растет интерес к проблеме взаимодействия лазерного излучения (ЛИ) с веществом. Следует, однако, отметить, что интенсивность исследований распределилась внутри этой проблемы очень неравномерно. В центре внимания находятся такие вопросы, как воздействие мощного ЛИ на атомы, молекулы, полимеры и твердые тела, сопровождающееся ионизацией, диссоциацией молекул, разрушением исходного вещества в сопровождении процессов плазмообразования [1]. Однако не менее интересны как с фундаментальной, так и с прикладной точки зрения специфические явления, возникающие в кристалле под действием внешнего когерентного электромагнитного поля (ЭМП), изменяющего исходное состояние без образования тепловых или ударных эффектов.

В этом случае для понимания возникающих эффектов одним из наиболее перспективных подходов является подход, основанный на введении квазиэнергетических состояний (КЭС) [2,3]. В настоящее время теория КЭС активно применяется для описания поведения атомов и молекул в поле ЛИ [4].

В последние годы авторами [5-25] выполнен цикл работ, посвященный влиянию сильного светового поля на электронную подсистему твердого тела. В рамках приближений, допускающих аналитическое решение и анализ асимптотик, показаны основные аспекты воздействия светового поля на особенности электронной структуры и кулоновского потенциала в полупроводниках.

Однако вопрос об этих явлениях в случае многозонной электронной структуры, присущей, в частности, металлам, требует преодоления

ряда дополнительных вычислительных трудностей. В частности, по этому в [22] был предложен метод квазиэнергетического псевдопотенциала. Между тем хорошо известно, что применение метода псевдопотенциала к целому ряду задач в физике твердого тела наталкивается на существенные трудности.

В связи с этим целью настоящей работы является разработка численного метода расчета зонного спектра электронов в твердых телах со сложной зонной структурой. В качестве иллюстрации возможностей предлагаемого метода был выполнен расчет квазиэнергетической зонной структуры и некоторых свойств хорошо изученного в невозмущенном состоянии алюминия.

В первом разделе кратко описывается предлагаемый метод расчета квазиэнергетической зонной структуры. Во втором разделе представляются и обсуждаются результаты расчета спектра КЭ, плотности электронных состояний, поверхности Ферми и оптических свойств Al, находящегося в ЭМП лазера.

1. Метод расчета квазиэнергетических зонных состояний электронов в кристалле

В работах [26–28] было введено понятие квазиэнергии (КЭ), которая является сохраняющейся во времени характеристикой системы, подвергающейся периодическому во времени внешнему воздействию. Поскольку величина КЭ определена лишь по модулю $\hbar\omega$, где ω — частота ЭМП, то возникает набор состояний, разнесенных по энергии на $n\hbar\omega$, где n — целое число. При адиабатическом включении возмущения из лестницы КЭС можно выделить состояние, в которое переходит исходное стационарное состояние системы [25]. В дипольном приближении векторный потенциал $A(t)$ зависит только от времени и может быть выбран в виде

$$A(t) = A_0 \cos \omega t, \quad (1)$$

где $A_0 = E_0/\alpha\omega$ (здесь и далее используется атомная система единиц, т.е. $\hbar = m = e = 1$), E_0 — напряженность ЭМП, ω — частота ЭМП, $\alpha = 1/137$. Электронная подсистема должна рассматриваться квантово-механически. Тогда в одноэлектронном приближении поведение системы электронов кристалла, находящейся в когерентном ЭМП, описывается нестационарным уравнением Шредингера с гамильтонианом

$$H(t) = \frac{1}{2}(\mathbf{p} + \alpha\mathbf{A})^2 + V(\mathbf{r}), \quad (2)$$

где $\mathbf{p} = -i\nabla$, $V(\mathbf{r})$ — периодический потенциал кристалла.

Проведя каноническое преобразование [26], получим уравнение, в котором временной и пространственные характеры задачи проявлены в одном члене, а именно

$$\left[\frac{1}{2}\mathbf{p}^2 + U(\mathbf{r}, t) - i\frac{\partial}{\partial t} \right] \varphi(\mathbf{r}, t) = \varepsilon\varphi(\mathbf{r}, t), \quad (3)$$

где

$$U(\mathbf{r}, t) = V\left(\mathbf{r} + \alpha \int \mathbf{A}(t) dt\right). \quad (4)$$

Используя факт периодичности по пространству и времени кристаллического потенциала $U(\mathbf{r}, t)$, «одетого» полем, и волновой функции КЭС $\varphi(\mathbf{r}, t)$, разложим эти величины в ряд Фурье

$$U(\mathbf{r}, t) = \sum_{n\mathbf{G}} U_n(\mathbf{G}) e^{i\mathbf{G}\mathbf{r}} e^{-in\omega t}, \quad (5)$$

$$\varphi(\mathbf{r}, t) = \sum_{n\mathbf{G}} \varphi_n(\mathbf{G}) e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{G})\mathbf{r}} e^{-in\omega t}, \quad (6)$$

где $U_n(\mathbf{G})$ с учетом (1) и (4) имеет вид

$$U_n(\mathbf{G}) = J_n \left(\frac{\alpha}{\omega} \mathbf{G} \mathbf{A}_0 \right) V(\mathbf{G}), \quad (7)$$

$J_n(x)$ — цилиндрическая функция Бесселя.

Подставив (5) и (6) в (3), приходим к системе уравнений [13,22]

$$\left[\frac{1}{2}(\mathbf{k} + \mathbf{G})^2 - \varepsilon - n\omega \right] \varphi_n(\mathbf{G}) + \sum_{n'\mathbf{G}'} U_{n-n'}(\mathbf{G} - \mathbf{G}') \varphi_{n'}(\mathbf{G}') = 0. \quad (8)$$

Отсюда следует, что КЭ определяется решением секулярного уравнения

$$\left| H_{nn'}^{ij}(\mathbf{k}) - \varepsilon(\mathbf{k}) \delta_{ij} \delta_{nn'} \right| = 0, \quad (9)$$

где \mathbf{k} — некоторый волновой вектор внутри первой зоны Бриллюэна, а

$$H_{nn'}^{ij}(\mathbf{k}) = \begin{cases} \frac{1}{2}(\mathbf{k} + \mathbf{G})^2 - n\omega, & i = j, n = n', \\ U_{n-n'}(\mathbf{G} - \mathbf{G}'), & i \neq j \text{ или } n \neq n'. \end{cases} \quad (10)$$

Поскольку детерминант (9) инвариантен относительно трансляций на векторы обратной решетки \mathbf{G} , а ε — на любое число $n\omega$, то следует рассматривать только неприводимую часть зоны Бриллюэна и область КЭ, где $n = 0$.

Формула (10) показывает наиболее важный результат действия ЭМП на микроструктуру вещества. Теперь электрон чувствует уже новый, «одетый» полем, потенциал, созданный совместно кристаллическим и электромагнитным полями.

В принципе выражения (5)–(10) полностью обеспечивают решение задачи нахождения КЭС кристалла в когерентном ЭМП, что было сделано в [15] для двухзонного полупроводника. Однако в общем случае использование указанных соотношений ограничено серьезными трудностями, связанными со слабой сходимостью рядов (5) и (6). Поэтому в настоящей работе предлагается следующий подход.

Поскольку в выражении (5) члены, зависящие от кристаллического потенциала и от ЭМП, разделились, то, очевидно, положив векторный потенциал \mathbf{A} равным 0, из (8) получим невозмущенную задачу, т.е. электронно-энергетический спектр (ЭЭС) данного материала в отсутствие ЭМП. Такой спектр известен практически для любых веществ, включая многокомпонентные сплавы. Воспользовавшись расчетами для ЭЭС, проведенными с высокой точностью каким-либо методом, мы

можем ограничиться в разложении (6) небольшим количеством плоских волн (ПВ) с наименьшей кинетической энергией, а соответствующие Фурье-компоненты потенциала $V(\mathbf{G})$ подобрать таким образом, чтобы при решении (9) в отсутствие ЭМП получить наилучшее согласие с известным спектром невозмущенной задачи.

В результате мы получаем вместо (8) модельный гамильтониан, невозмущенная часть которого задается ограниченным набором параметров, а решение (9) дает требуемый квазиэнергетический спектр, возникающий из исходного при адиабатическом включении ЭМП. В обычной зонной теории хорошо известно, что такой подход позволяет существенно уменьшить число ПВ в разложении волновой функции [29]. Возможности данного подхода могут быть проиллюстрированы на примере алюминия. Действительно, для него выполняются необходимые требования [19], обуславливающие применимость сделанных приближений. Для источников мощного излучения светового диапазона (лазеров) частота $\omega \ll \omega_p^{\text{Al}} \sim 1 \text{ а.у.}$ Соответствующая глубина скин-слоя $\sim 200 \text{ а.у.}$, что заведомо больше параметра решетки алюминия $\sim 8 \text{ а.у.}$, радиуса дебаевского экранирования $\sim 2 \text{ а.у.}$ В данной работе принято, что на алюминий действует световое поле лазера с $\omega = 0.1 \text{ а.у.}$ и напряженностью электрического поля 0.5 а.у. Это обеспечивает амплитуду колебаний электрона $\sim 1 \text{ а.у.}$, которая таким образом также меньше глубины скин-слоя и r_D для идеального металла. При $T = 0$ заведомо выполняется соотношение $\omega\tau \gg 1$, где τ — время релаксации.

Отметим также, что толщина скин-слоя достаточна для описания его электронной структуры в рамках приближений и с точностью расчета, принятыми в случае массивного кристалла.

При этом мы ограничились пятнадцатью ПВ. Этого достаточно для того, чтобы обеспечить необходимые неприводимые представления группы волнового вектора в симметричных точках зоны Бриллюэна для интересующих нас нижних зон Al.

Тогда параметризация модельного гамильтониана обеспечивается следующими параметрами: α — параметр, учитывающий эффективную массу электрона, V_0 — параметр, определяющий начало отсчета энергии, $V(111)$, $V(200)$, $V(220)$, $V(222)$, $V(311)$, $V(331)$ — независимые Фурье-компоненты потенциала. Таким образом, гамильтониан (8) параметризовался восьмью параметрами, значения которых были получены подгонкой спектра модельного гамильтониана (9) при $A = 0$ под спектр, рассчитанный в работе [30] методом ППВ так, чтобы минимизировать среднее квадратичное отклонение интерполированного спектра от истинного. Подгонка осуществлялась по шести симметричным точкам Γ , X , W , L , K , U . Собственно квазиэнергетический электронный спектр Al был рассчитан по формуле (9) с использованием этих параметров. Величина n бралась равной 5. Расчет плотности электронных состояний $N(E)$ проводился хорошо известным методом тетраэдров [31]. Численное интегрирование по \mathbf{k} было выполнено путем разбиения неприводимой части зоны Бриллюэна на тетраэдры по 989 опорным пунктам.

При проведении расчета поверхности Ферми (ПФ) Al сначала была рассчитана энергия Ферми ϵ_f из условия сохранения количества валентных электронов в ЭМП. После этого значения k_f определялись линейной интерполяцией по \mathbf{k} .

Оптические свойства алюминия в лазерном поле вычислялись по методике, обычно используемой в зонной теории металлов и сплавов в отсутствие поля. Минимум часть диэлектрической проницаемости для слабого (зондирующего) поля рассчитывали в приближении хаотических фаз [32], заменяя в стандартной формуле [33] энергии электронов на квазиэнергии. При этом вероятности перехода получали, используя матрицу модельного гамильтониана (10) по методике, предложенной в [34]. Таким образом, присутствие лазерного поля проявлялось в изменении зонного спектра и вероятности перехода. Численное интегрирование по неприводимой части зоны Бриллюэна было проведено с тем же количеством опорных точек, что и при расчете плотности состояний. Подобный подход должен качественно верно отразить проявление в оптических свойствах возникновения зависящих от k энергетических щелей в многозонном электронном спектре.

2. Результаты расчета

На рис. 1 изображены ЭЭС Al без ЭМП и квазиэнергетический электронный спектр Al под действием ЭМП с частотой $\omega = 0.1$ а.е. и $E = 0.5$ а.е. Видно, что ближайшие друг к другу зоны стягиваются, а размер зонной щели в точке существенно уменьшается. В месте пересечения квазиэнергетических зон образуется щель порядка 0.18 Ry, причем вследствие смещения вверх по энергии уровня Ферми на 0.006 Ry эта щель попадает почти на уровень Ферми.

Эти изменения проявляются и на кривой плотности состояний (рис. 2). Первый пик в области 0.63 Ry в присутствии ЭМП смещается вправо на 0.02 Ry и существенно размывается. Следующие пики также смещаются вправо, а $N(\epsilon_f)$ увеличивается на 5%.

На рис. 3 представлена развертка сечения поверхности Ферми Al плоскостью $G\bar{X}WK$. Видно, что под действием ЭМП выпуклый дырочный лист ПФ во второй зоне смещается к точке W , часть ПФ от третьей зоны вокруг точки K увеличивается в направлении точки W , куда смещается и другая часть ПФ от третьей зоны на линии XW . В целом же топология ПФ остается той же, что и без возмущения.

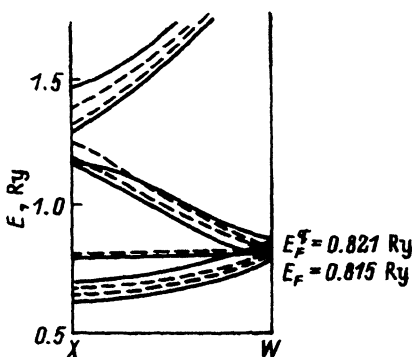


Рис. 1. Электронно-энергетический спектр алюминия в направлении $G-X$.

Здесь и далее штриховые кривые соответствуют наличию лазерного поля.

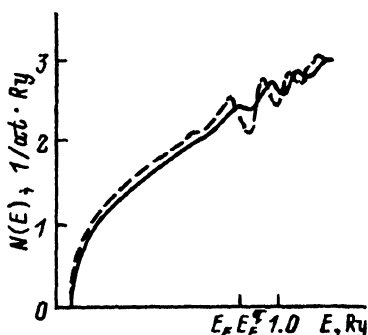


Рис. 2. Функция плотности электронных состояний алюминия.

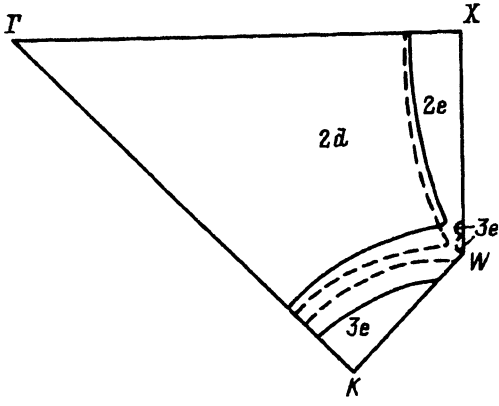


Рис. 3. Развертка сечения поверхности Ферми плоскостью ГХWК.

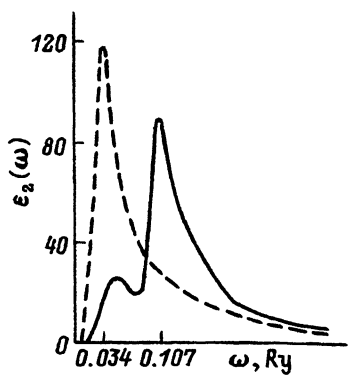


Рис. 4. Частотная зависимость интенсивности поглощения зондирующего излучения.

Известно [5,14], что характер изменения зонной структуры существенно зависит от направления падения лазерного луча. В данной работе в связи с вычислительными трудностями эту зависимость не анализировали, ограничившись случаем направления падения волны, совпадающим с осью четвертого порядка ГПК решетки. Отметим, что наблюдаемые тенденции в изменении ПФ с ростом напряженности ЭМП противоположны полученным в работе [35], где рассчитывалось изменение ПФ под давлением, т.е. ПФ под воздействием ЭМП ведет себя так же, как при наличии отрицательного давления.

Наиболее отчетливо это проявляется на кривой $\epsilon_2(\omega)$ (рис. 4), где пик максимума поглощения, соответствующий энергии квантов 1.5eV без поля, смещается под действием ЭМП в область низких частот и сопровождается ростом интенсивности поглощения. Это соответствует уменьшению щели в точке W, поскольку основной пик в $\epsilon_2(\omega)$ связан с переходом вблизи этой точки. В работе рассчитано изменение $\epsilon_2(\omega)$ в зависимости от давления и показано, что пик смещается в высокоэнергетическую область и сопровождается уменьшением интенсивности. Используя величины смещения пика $\epsilon_2(\omega)$ по энергии, приведенные в [36], можно оценить величину отрицательного давления, характерную для ЭМП с указанными характеристиками. Эта величина оказывается порядка 15 GPa.

Итак, в данной работе представлен основанный на модельном гамильтониане метод расчета электронного спектра и ряда важных характеристик реального металла под действием когерентного ЭМП. Достоинствами метода являются простота его реализации и возможность количественных оценок изменения свойств разнообразных конкретных веществ под действием ЛИ. Рассчитанные на его основе квазиэнергетический спектр, плотность состояний, ПФ и $\epsilon_2(\omega)$ под действием ЭМП проявляют общие тенденции в изменении и соответствуют возникающему в металле отрицательному давлению. К сожалению, в настоящее время нам неизвестны экспериментальные данные об изменении электронной структуры Al под действием ЛИ; соответствующие исследования могут явиться серьезным стимулом для дальнейшего углубленного изучения проблемы взаимодействия излучения с конденсированным состоянием вещества.

Список литературы

- [1] Делоне Н.Б. Взаимодействие лазерного излучения с веществом. М. (1989). 280 с.
- [2] Sambe H. Phys. Rev. A7, 6, 2203 (1973).
- [3] Belic M.R. Solid State Commun. 62, 12, 817 (1987).
- [4] Рапопорт Л.П., Зон В.А., Манаков Н.Л. Теория многофотонных процессов в атомах. М. (1978). 184 с.
- [5] Галицкий В.М., Гореславский С.П., Елесин В.Ф. ТЭТФ 57, 117, 207 (1969).
- [6] Елесин В.Ф. ФТТ 11, 7, 1820 (1969).
- [7] Гореславский С.П., Елесин В.Ф. Письма в ЖЭТФ 10, 10, 491 (1969).
- [8] Перлин Е.Ю., Коварский В.А. ФТТ. 12, 11, 3105 (1970).
- [9] Елесин В.Ф. ФТП 4, 8, 1524 (1970).
- [10] Елесин В.Ф. ФТТ 13, 1, 267 (1971).
- [11] Балкарей Ю.И., Эпштейн Э.М. ФТП 6, 9, 1807 (1972).
- [12] Балкарей Ю.И., Эпштейн Э.М. ФТТ 14, 3, 741 (1972).
- [13] Балкарей Ю.И., Эпштейн Э.М. ФТТ 15, 3, 925 (1973).
- [14] Балкарей Ю.И., Эпштейн Э.М. ФТТ 17, 8, 2312 (1975).
- [15] Блажин В.Д. ФТТ 17, 8, 2325 (1975).
- [16] Казарян Э.М., Меликян А.О., Минасян Г.Р. ФТП 13, 3, 423 (1979).
- [17] Аветисян С.К., Казарян Э.М., Меликян А.О., Минасян Г.Р. ФТП 15, 8, 1493 (1981).
- [18] Эпштейн Э.М. ФТП 15, 2, 316 (1981).
- [19] Эпштейн Э.М., Шмелев Г.М., Цуркан Г.И. Фотостимулированные процессы в полупроводниках. Кишинев (1978).
- [20] Эпштейн Э.М., Шмелев Г.М., Железняк А.Т. ФТП 25, 6, 1098 (1991).
- [21] Эпштейн Э.М., Шмелев Г.М., Железняк А.Т. Изв. АН Молд. ССР. Сер. физ.-техн. и мат. наук, 1, 74 (1989).
- [22] Макавчик И.В., Симаков В.И., Демиденко В.С. Изв. вузов. Физика, 2, 33 (1992).
- [23] Шмелев Г.М., Железняк А.Т. ФТП 27, 7, 1224 (1993).
- [24] Tzoar N., Gersten J.I. Phys. Rev. B12, 4, 1132 (1975).
- [25] Shmelev G.M., Epstein E.M. J. Phys.: Cond. Matter. 1, 25, 4013 (1989).
- [26] Ритус В.И. ЖЭТФ 51, 1544 (1966).
- [27] Зельдович Я.Б. ЖЭТФ 51, 1492 (1966).
- [28] Henneberger W.C. Phys. Rev. Lett. 21, 12, 838 (1968).
- [29] Займан Дж. Вычисление блоховских функций. М. (1973). 158 с.
- [30] Ojala E. Phys. Stat. Sol. (b) 119, 2, 269 (1983).
- [31] Lehman G., Taut M. Phys. Stat. Sol. (b) 54, 2, 469 (1972).
- [32] Абрикосов А.А., Торьков Д.П., Дзялошинский И.Е. Методы квантовой теории поля в статистической физике. М. (1962). 444 с.
- [33] Достижения электронной теории металлов / Под ред. П. Ципе и Г. Леммана. М. (1984), Т. 1. 280 с.
- [34] Smith N.V. Phys. Rev. B19, 10, 5019 (1979).
- [35] Bross H., Eder R. Phys. Stat. Sol. (b) 144, 1, 175 (1987).
- [36] Ракшеев С.Н., Халилов С.В. Металлофизика 9, 6, 15 (1987).