КОГЕРЕНТНЫЙ ФОТОГАЛЬВАНИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ НА ВНУТРИЗОННЫХ И МЕЖЗОННЫХ ОПТИЧЕСКИХ ПЕРЕХОДАХ

В. Л. Агафонов, В. И. Белиничер

Предложена теория когерентного фотогальванического эффекта для внутризонных оптических переходов в полупроводниках с простой зоной и для межзонных оптических переходов в арсениде галлия. Произведен расчет и приведены оценки величины фототока.

Когерентный фотогальванический эффект представляет собой возникновение постоянного электрического тока в однородных кристаллах под воздействием однородного света, состоящего из трех когерентных волн. Этот эффект не связан с внешним постоянным электрическим полем или импульсом фотона и возможен в кристаллах с центром симметрии [1]. Ток в этом случае пропорционален третьей степени поля и определяется тензором четвертого ранга

$$j_n = \sigma_{ijln}(\omega_1, \omega_2)\, E^*_{1i} E^*_{2j} E_{3l} + \text{h.c.} \tag{A}$$

Поле определяется следующим образом:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \mathbf{E}_3 e^{-i(\omega_1 + \omega_2) t} + \text{h.c.}$$

Следует отметить, что в случае, если $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ и эти волны когерентны друг с другом, в выражение для плотности тока (A) необходимо добавить еще два слагаемых

$$(1/2)\, \sigma_{ijln}(\omega)\, (E^*_{1i} E^*_{1j} E_{3l} + E^*_{2i} E^*_{2j} E_{3l}) + \text{h.c.},$$

$$\sigma_{ijln}(\omega) = \sigma_{ijln}(\omega_1, \omega_2)\, |_{\omega_1 = \omega_2 = \omega}\,.$$

Теория когерентного фотогальванического эффекта, обусловленного двумя световыми волнами с частотами ω и 2ω, была построена в [2] в классической области частот $\hbar\omega \ll T$. В настоящей работе это явление изучается при поглощении света свободными носителями (раздел 1), а также в области края оптического поглощения (раздел 2) путем решения квантового кинетического уравнения. В классической области частот при $\hbar\omega_1 \hbar\omega_2 \ll T$, когда свет поглощается свободными носителями, ответ функционально совпадает с приведенным в работе [2].

Эффект рассматривается как результат интерференции двух возможных процессов: поглощения двух фотонов и поглощения одного фотона с энергией, равной сумме энергий двух фотонов. Такая интерференция отлична от нуля, так как фотоны находятся в когерентных состояниях, и мы рассматриваем только индуцированные процессы.

1. Когерентный фотогальванический эффект на внутризонных переходах

Мы ограничимся случаем невырожденного полупроводника с квадратичным изотропным законом дисперсии. Ток в этом случае имеет вид

$$j = \frac{e}{m} \int \mathbf{k} \delta f(\mathbf{k})\, d^3k\,, \tag{1}$$

где m, e, $\mathbf{k}$ — эффективная масса, заряд и квазиимпульс электрона в зоне проводимости, а $\delta f(\mathbf{k})$ — неравновесная добавка к функции распределения электрона $f(\mathbf{k})$, которая находится из решения кинетического уравнения

$$\frac{\partial f_{\mathbf{k}}}{\partial t} = \Gamma_{\mathbf{k}} \delta f_{\mathbf{k}} + \int (W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}'} - W_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}}) \frac{d^3\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} = 0\,. \tag{2}$$

Здесь Γ_k — обратное время потери импульса, определяемое соударениями электронов с заряженными примесями, которые случайным образом распределены по объему с плотностью n. В нашем случае

$$\Gamma_k = \frac{nm}{8\pi k^3} \left(\frac{4\pi e^2}{\varepsilon} \right)^2 \left(\ln \left(\frac{4k^2}{\varkappa^2} + 1 \right) - \frac{4k^2}{4k^2 + \varkappa^2} \right)\,, \tag{3}$$

где ε — статистическая диэлектрическая проницаемость, $\varkappa$ — обратный радиус экранирования.

В вероятность $W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ дают вклад лишь слагаемые, не зависящие от времени, которые являются произведениями матричных элементов второго и третьего порядков, соответствующих поглощению одного или двух фотонов и рассеянию на примеси. Такая вероятность отлична от нуля, поскольку свет является когерентным и относительные фазы световых волн фиксированы.

На рис. 1 показано несколько типов диаграмм, определяющих вероятность. Здесь отсутствуют диаграммы, соответствующие члену с $\mathbf{A}^2$ из гамильтониана $H = [\mathbf{P} - (e/c)\, \mathbf{A}]^2/2m + U$, так как вклад таких диаграмм в $W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ равен нулю.

Сложив все слагаемые, нетрудно убедиться, что вероятность равна [1]

$$\begin{aligned} W_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} = i\,(k_i - k_i')\,(k_j - k_j')\,(k_l - k_l') \frac{ne^3\, |v_{k'k}|^2}{2\pi m^3\, (\omega_1 \omega_2\, (\omega_1 + \omega_2))^2} \times \\ \times (E^*_{1i} E^*_{2j} E_{3l} - E_{1i} E_{2j} E^*_{3l})(\delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k - h\,(\omega_1 + \omega_2)) - \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k - \hbar\omega_1) - \\ - \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k - \hbar\omega_2) - \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k + h\,(\omega_1 + \omega_2)) + \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k + \hbar\omega_1) + \\ + \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k + \hbar\omega_2))\,, \end{aligned} \tag{4}$$

где

$$|v_{k'k}|^2 = \left(\frac{4\pi e^2/\varepsilon}{(\mathbf{k} - \mathbf{k}')^2 + \varkappa^2} \right)^2.$$

Следует отметить, что эта формула верна для всех ω_1 и ω_2, таких, что $\omega_1 \neq \omega_2$. Если же $\omega_1 = \omega_2$, то здесь и далее везде следует заменить $E_{1i} E_{2j}$ на $(1/2)\,(E_1 + E_2)_i\,(E_1 + E_2)_j$, т. е., например, если $\mathbf{E}_1 = \mathbf{E}_2$, то ответ будет в два раза больше, чем если формально подставить $\omega_1 = \omega_2 = \omega$.

[1] То, что вероятность должна быть пропорциональная произведениям разности $(\mathbf{k} - \mathbf{k}')\, \mathbf{E}$, следует из формы уравнения на матрицу плотности электронов $\rho_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$.

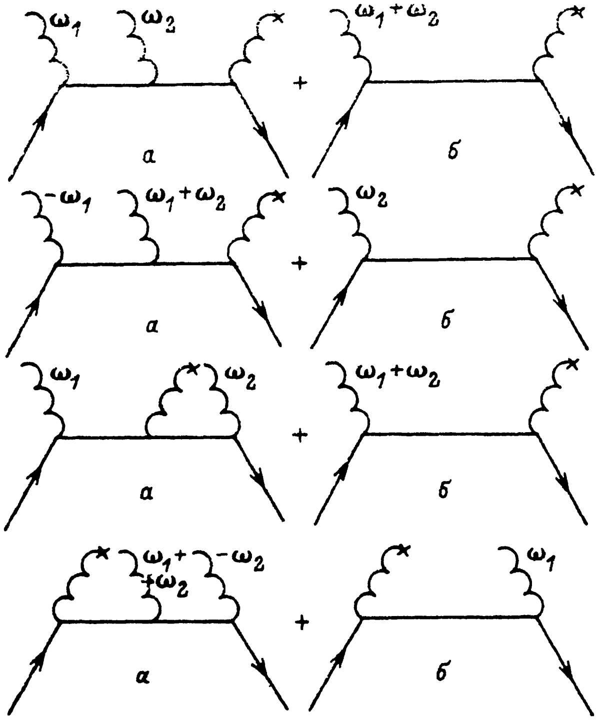

Рис. 1. Типичные примеры фейнмановских диаграмм для процессов поглощения света на внутризонных переходах, приводящих к когерентному ФГЭ.

Асимметричные вероятности перехода возникают от произведения амплитуд графиков *a* и *b*.

Нетрудно заметить, что $W_{\mathbf{k'k}} = W_{\mathbf{kk'}}$ в соответствии с принципом детального равновесия.

Подставив выражение для W в (2), а затем δf в (1) и произведя интегрирование по углам, находим, что постоянная составляющая плотности тока есть

$$j_n = i\sigma\,(\delta_{ij}\delta_{ln} + \delta_{il}\delta_{jn} + \delta_{in}\delta_{jl})\,(E^*_{1i}E^*_{2j}E_{3l} - E_{1i}E_{2j}E^*_{3l})\,, \tag{5}$$

где

$$\sigma = \frac{4e^8 n}{15\pi m^4 \varepsilon^2\,(\omega_1\omega_2\,(\omega_1+\omega_2))^2}\int \frac{k^2dk}{\Gamma_k}\int\left(2 + \frac{k^2 - k'^2 - 2\varkappa^2}{2kk'}\ln\left(\frac{(k+k')^2+\varkappa^2}{(k-k')^2+\varkappa^2}\right) - \right.$$
$$\left. - \frac{2\varkappa^2\,(k^2 - k'^2 - \varkappa^2)}{((k-k')^2+\varkappa^2)\,((k+k')^2+\varkappa^2)}\right)(f^0_{\mathbf{k'}} - f^0_{\mathbf{k}})\,k'^2dk'\,(\delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k - \hbar\,(\omega_1+\omega_2)) -$$
$$- \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k - \hbar\omega_1) - \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k - \hbar\omega_2) - \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k + \hbar\,(\omega_1+\omega_2)) +$$
$$+ \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k + \hbar\omega_1) + \delta\,(\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k + \hbar\omega_2))\,. \tag{5a}$$

В общем виде интеграл (5а) не берется, однако в предельных случаях возможны значительные упрощения. В дальнейших расчетах равновесная функция распределения электронов f^0 считается больцмановской.

Когда энергия падающего света значительно превышает среднюю кинетическую энергию электронов ($\hbar\omega \gg T$), электроны в состоянии k' не могут перейти вниз по спектру и поэтому переходы из k' в k происходят исключительно с поглощением энергии, т. е. $T \sim \varepsilon_{k'} \ll \varepsilon_k \sim \hbar\omega$. Тогда интегрирование по k снимается последними тремя δ-функциями, а интегрирование по k' после соответствующих приближений легко выполняется. Окончательный результат для этого случая

$$\sigma = \frac{32\pi n n_0 e^8}{15 m^3 \varepsilon^2 (\omega_1\omega_2(\omega_1+\omega_2))^2\hbar^2}\left(\frac{k_{\omega_1}^5}{(k_{\omega_1}^2+\varkappa^2)^2\,\Gamma_{k_{\omega_1}}} + \frac{k_{\omega_1}^5}{(k_{\omega_1}^2+\varkappa^2)^2\,\Gamma_{k_{\omega_2}}} - \right.$$
$$\left. - \frac{k_{\omega_1+\omega_2}^5}{(k_{\omega_1+\omega_2}^2+\varkappa^2)^2\Gamma_{k_{\omega_1+\omega_2}}}\right), \tag{6}$$

где

$$k_\omega = \sqrt{\frac{2m\omega}{\hbar}} \; .$$

В ситуации, когда $\hbar\omega \ll T$ и $\varepsilon_k \sim \varepsilon_{k'} \sim T$, вносят вклад все четыре δ-функции. В этом случае в зависимости от соотношения между $\varkappa$ и k имеем

$$\sigma = \frac{8e^4 n_0}{5m^2 T\omega_1\omega_2(\omega_1+\omega_2)}, \quad \varkappa \ll \sqrt{\frac{2mT}{\hbar^2}} \; ,$$

$$\sigma = \frac{8e^4 n_0}{15m^2 T\omega_1\omega_2(\omega_1+\omega_2)}, \quad \varkappa > \sqrt{\frac{2mT}{\hbar^2}} \; . \tag{7}$$

Этот случай соответствует классическому пределу, т. е. тому, что сделано в [2]. В окончательной формуле отсутствует $\hbar$, как и должно быть в этом пределе. Частотная зависимость $1/\omega^3$ совпадает с [2].

Численные значения j можно получить, подставив характерные значения $n = 10^{17}$ см$^{-3}$, $T = 300$ К для случая $\hbar\omega \ll T$, $\omega = 10^{12}$ Гц, тогда $j \simeq 1$ А/см^2 при интенсивности электромагнитного поля $I = 1$ Вт/см^2. Для случая $\hbar\omega \gg T$, $\omega = 10^{14}$ Гц получаем $j \simeq 10^{-6}$ А/см^2 при той же интенсивности.

2. Когерентный фотогальванический эффект на междузонных переходах CaAs

Мы ограничимся случаем, когда $\omega_1 = \omega_2$ и $E_1 = E_2 = E/2$, при этом $E_g/2 < \hbar\omega < E_g$. Вычисляется лишь электронный вклад в ток, а дырочный опускается из-за его малости [3]. Ток определяется так же, как и в разделе 1.

Используя кинетическое уравнение

$$\frac{\partial f_k}{\partial t} = W_{\mathbf{k}} - \Gamma_k \delta f_k = 0 \; , \tag{8}$$

где W_k — плотность вероятности фотовозбужденных электрон-дырочных пар с импульсом $\mathbf{k}$, его можно вычислить по формуле (1) с $\delta f_k = W_k/\Gamma_k$.

Гамильтониан в модели Кейна представляет собой матрицу 8×8 и в пренебрежении анизотропией может быть представлен в блочной форме

$$H_0 = \begin{pmatrix} Rk^2 + E_g & iPk_i \\ -iPk_j & -Mk^2\delta_{ij} - \Lambda k_i k_j - \Delta\sigma_i\sigma_j/2 \end{pmatrix}, \tag{9}$$

R, P, M, Λ, Δ, E_g — параметры модели Кейна; $E_g \gg \Delta$; i, j — векторные индексы; σ — матрицы Паули; спиновые индексы опущены. Верхний блок представляет собой матрицу 2×2, а нижний 6×6.

В H_0 взаимодействие волновых функций валентной зоны и зоны проводимости учитывается по теории возмущений. Это приводит к перенормировке констант R и Λ

$$\widetilde{R} = R + P^2/E_g\,, \quad \widetilde{\Lambda} = \Lambda + P^2/E_g\,.$$

Тогда волновые функции дырок можно представить в виде $U^{\nu\beta}_{i\alpha}(k)$, где ν — номер решения ($\nu = 1$ для легких дырок, $\nu = -1$ для тяжелых дырок), β — знак спиральности, α — спиновые индексы, $\alpha = \pm 1/2$.

Электромагнитное поле вводится в гамильтониан с помощью замены $\mathbf{k} \to \mathbf{k} - (e/c)\,\mathbf{A}$, и линейный по $\mathbf{A}$ член в гамильтониане имеет вид

$$H_{\text{возм}} = -\begin{pmatrix} \dfrac{2e\mathbf{kA}}{c}\widetilde{R} & \dfrac{iPeA_i}{c} \\ -\dfrac{iPeA_j}{c} & -\dfrac{2eM\mathbf{kA}\delta_{ij}}{c} - \dfrac{\Delta e}{c}(k_iA_j + k_jA_i) \end{pmatrix},$$

$$\widetilde{R} = \frac{1}{2m_e}\,, \quad M = \frac{1}{2m_{-1}}\,, \quad \widetilde{\Lambda} = \frac{1}{2m_1} - \frac{1}{2m_{-1}}\,. \tag{10}$$

Плотность фотовозбужденных электронов W_k следующим образом выражается через амплитуду фотовозбуждения $F^{\nu\beta}_k$:

$$W^{\nu}_{\mathbf{k}} = (4\pi^2)^{-1} \sum_{\beta=\pm 1} |F^{\nu\beta}_{\mathbf{k}}|^2\, \delta\,(\varepsilon^0_{\mathbf{k}} + \varepsilon^{\nu}_{\mathbf{k}} - 2\omega)\,; \quad \hbar\omega < E_g < 2\hbar\omega\,, \tag{11}$$

где $F^{\nu\beta}_k$ изображены на рис. 2.

В интересующую нас нечетную по $\mathbf{k}$ вероятность W_k делают вклад произведения амплитуд

$$F^*_aF_b + F^*_aF_c + \text{h.c.},$$

$$F^{\nu\beta}_a = -PeE_{3i}u^{\nu\beta}_{i\alpha}/2\omega\,,$$

$$F^{\nu}_b = -2ie^2\widetilde{R}Pk_lE_lE_ju^{\nu\beta}_{j\alpha}/\omega^3\,,$$

$$F^{\nu}_c = -\sum_{\nu'\beta'} \frac{iPe^2u^{\nu'\beta'}_{l\alpha}u^{\nu'\beta'^*}_{j\alpha'}u^{\nu\beta}_{m\alpha'}E_lE_n}{\omega^2(\omega - \varepsilon^e_k - \varepsilon^{\nu'}_k)}\,(2Mk_n\delta_{jm} + \widetilde{\Lambda}\,(k_j\delta_{mn} + k_m\delta_{jn}))\,. \tag{12}$$

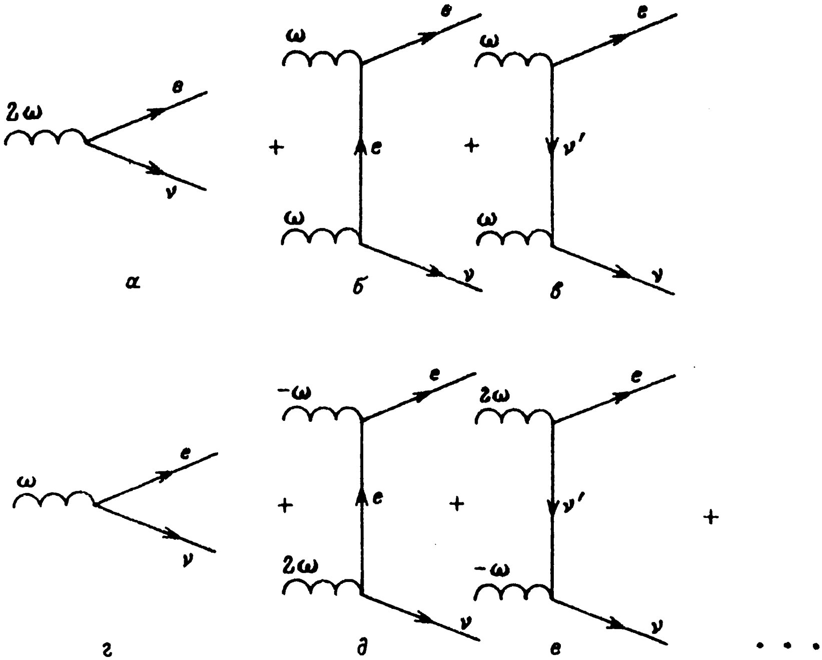

Рис. 2. Фейнмановские диаграммы для процессов поглощения света на межзонных переходах. Диаграммы *а—в* соответствуют процессам поглощения света с энергией 2ω, *г—е* — с энергией ω. Асимметричные вероятности перехода возникают от произведения амплитуд графиков *а* и *б*, *в*, а также *г* и *д*, *е*.

Здесь

$$\varepsilon^{c} = \frac{k^2}{2m_e} + E_g\,, \quad \varepsilon^{\nu} = \frac{k^2}{2m_\nu}\,,$$

При этом явный вид волновых функций дырок нам не потребуется. Достаточно знать проекционные операторы, построенные из дырочных функций

$$\Pi^{\nu}_{i\alpha j\beta} = \sum_{\gamma} u^{\nu\gamma}_{i\alpha} u^{\nu\gamma *}_{j\beta}\,. \tag{13}$$

Проекционные операторы найдены в [4] и имеют следующий вид:

$$\Pi^{-1}_{ij} = 1/2\,(2\delta_{ji} - \sigma_i\sigma_j - 3n_i n_j + \sigma_i\hat{n} n_j + n_i\hat{n}\sigma_j)\,,$$

$$\Pi^{1}_{ij} = 1/2\,(4/3 n_i n_j + 1/3\,(\sigma_i - n_i\hat{n})\,(\sigma_j - n_j\hat{n}) + 2/3\,(2n_i n_j - \sigma_i\hat{n} n_j - n_i\hat{n}\sigma_j))\,. \tag{14}$$

Здесь

$$n_i = k_i/k\,, \quad \hat{n} = n_i\sigma_i\,.$$

Окончательный результат для вероятности W_k можно записать в виде

$$W_k = \sum_{\nu=\pm 1} \frac{2i\pi \widetilde{R} P^2 e^3 k_n}{\omega^4} \mathrm{Sp}\,(\Pi^{\nu}_{jl})\, E^*_n E^*_l E_{3j} \delta\,(\varepsilon^e + \varepsilon^{\nu} - 2\omega) + \mathrm{h.c.} +$$

$$+ \sum_{\nu,\nu'=\pm 1} i\pi P^2 e^3 \mathrm{Sp}\,(\Pi^{\nu}_{im}\Pi^{\nu'}_{jl})\, E^*_l E^*_n E_{3i} \frac{(2Mk_n\delta_{jm} + \widetilde{\Lambda}\,(k_j\delta_{nm} + k_m\delta_{jn}))}{\omega^3\,(\omega - \varepsilon^e - \varepsilon^{\nu'})} \times$$

$$\times\, \delta\,(\varepsilon^e + \varepsilon^{\nu}_{\nu} - 2\omega) + \mathrm{h.c.} \qquad (15)$$

После подстановки в (1) и интегрирования получим

$$j_a = \frac{e^4 P^2 i}{m_e \omega^4 \cdot 30\pi} (E^*_l E^*_n E_{3_j} - E_l E_n E^*_{3_j})\,(A\delta_{an}\delta_{jl} + B\delta_{al}\delta_{jn} + C\delta_{al}\delta_{ln})\,, \qquad (16)$$

где

$$A = \frac{k^3_{-1}}{\Gamma_{-1}} \left(\frac{4\mu_{-1}}{m_e} + \frac{4\mu_{-1}}{m_{-1}} - \frac{Z_{1-1}}{3}\right) + \frac{k^3_1}{\Gamma_1} \left(\frac{8}{3}\mu_1 \left(\frac{2}{3m_1} + \frac{1}{3m_{-1}} + \frac{1}{m_e}\right) - \frac{5Z_{-11}}{6}\right),$$

$$B = \frac{k^3_{-1}}{\Gamma_{-1}} \left(\frac{\mu_{-1}}{m_e} - \frac{\mu_{-1}}{m_{-1}} + \frac{4Z_{1-1}}{3}\right) + \frac{k^3_1}{\Gamma_1} \left(\frac{\mu_1}{m_e} + \frac{2\mu_1}{3m_1} + \frac{\mu_1}{3m_{-1}} - \frac{Z_{-11}}{3}\right),$$

$$C = \frac{k^3_{-1}}{\Gamma_{-1}} \left(\frac{\mu_{-1}}{m_e} - \frac{\mu_{-1}}{m_{-1}} - \frac{Z_{1-1}}{3}\right) + \frac{k^3_1}{\Gamma_1} \left(\mu_1 \left(\frac{1}{m_e} + \frac{2}{3m_1} + \frac{1}{3m_{-1}}\right) + \frac{4Z_{-11}}{3}\right). \qquad (17)$$

Здесь введены следующие обозначения:

$$k_\alpha = \sqrt{(2\omega - E_g)\,2\mu_\alpha}\,, \quad \mu_1 = \frac{m_e m_1}{m_e + m_1}\,, \quad \mu_{-1} = \frac{m_e m_{-1}}{m_e + m_{-1}}\,, \quad \mu_0 = \frac{m_1 m_{-1}}{m_{-1} - m_1}\,,$$

$$Z_{\alpha\beta} = \frac{\mu_1 \mu_{-1} \mu_0^{-1} \omega}{(\omega - E_g)\,\mu_\alpha - (2\omega - E_g)\,\mu_\beta}\,,$$

$\alpha, \beta = 1;\ -1$.

Подставив в окончательную формулу для j численные значения $m_e = 0.067\ m_0$, $m_{-1} = 0.55\ m_0$, $m_1 = 0.086\ m_0$, $m_0 P^2 = 10.3\ E_g$, $E_g = 1.52$ эВ, $2\omega - E_g = 0.25$ эВ, $m_0 = 9.1 \cdot 10^{-28}$ г, $e = 1.6 \cdot 10^{-19}$ Кл, интенсивность каждой волны 1 Вт/см^2, $\Gamma = 10^{-13}$ с; нетрудно оценить значение плотности тока $j \sim 10^{-7}$ А/см^2.

В случае нормального падения света ток потечет вдоль поверхности образца в слое порядка 10^{-4} см, при этом он будет иметь составляющие вдоль каждого вектора поляризации, помноженные на произведение двух других векторов поляризации

$$j \sim a\mathbf{e}_1\,(\mathbf{e}_1\mathbf{e}_3) + b\mathbf{e}_3\,. \qquad (18)$$

В заключение работы хотелось бы выразить особую благодарность М. В. Энтину за стимулирующие дискуссии и полезные обсуждения.

Список литературы

[1] Белиничер В. И., Стурман Б. И. // УФН. 1980. Т. 130. С. 415.
[2] Энтин М. В. // ФТП. 1989. Т. 23. № 6. С. 1066.

[3] Альперович В. Л., Белиничер В. И., Новиков В. Н., Терехов А. С. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 3. С. 866.
[4] Белиничер В. И., Новиков В. Н. // Препринт ИАиЭ СО АН СССР № 153. Новосибирск, 1981.

Институт физики полупроводников
СО РАН
Новосибирск

Поступило в Редакцию
30 марта 1992 г.