МНОГОФОТОННОЕ ЭЛЕКТРОПОГЛОЩЕНИЕ В ПОЛУПРОВОДНИКАХ С ВЫРОЖДЕННОЙ ВАЛЕНТНОЙ ЗОНОЙ

Монозон Б. С., Селезнева А. Н.

Развита теория межзонного многофотонного поглощения во внешнем однородном электрическом поле E в полупроводниках типа $A^{III}B^{V}$ с вырожденной валентной зоной, содержащей подзоны легких и тяжелых дырок. Получены аналитические выражения для вероятностей s-фотонных переходов из валентной зоны в зону проводимости. Исследовны случаи параллельной и взаимно перпендикулярной ориентаций поля E и электрического поля сильной световой волны $F_0 \cos \omega t$. Изучены зависимости поглощения от интенсивности $\sim F_0^2$ и частоты ω поглощаемого света, от напряженности поля E, а также от параметров электронной и дырочной зон. Основное внимание уделено различию вкладов легких и тяжелых дырок в отдельные области спектра нечетно- и четно-фотонного поглощения. Обнаружен продольно-поперечный дихроизм многофотонного электропоглощения в рассмотренных алмазоподобных полупроводниках.

В настоящей работе теоретически рассматривается межзонное многофотонное поглощение во внешнем однородном электрическом поле в полупроводниках с вырожденной валентной зоной. На основе квазиэнергетического подхода [1, 2], обобщенного на случай вырожденной валентной зоны [3, 4], получено аналитическое выражение для вероятности дипольного оптического перехода из вырожденной валентной зоны в зону проводимости, содержащее зависимость от интенсивности и частоты поглощаемого света, от величины внешнего электрического поля, а также от параметров электронной и дырочной зон. Исследованы случаи параллельной и взаимно перпендикулярной ориентаций однородного электрического поля E и электрического поля световой волны $F_0 \cos \omega t$. Используется стандартное приближение изотропных зон. Показано, что оптическое поглощение является различным для различных взаимных ориентаций полей E и F_0. Кроме того, оно существенно зависит от четности числа поглощаемых фотонов s. Однородное поле E вызывает смещение края поглощения в длинноволновую область в соответствии с результатами работ [5, 6].

Согласно методу эффективной массы [7], представим волновую функцию электрона в полупроводнике $\Psi(\mathbf{r}, t)$ в виде

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n \varphi_n(\mathbf{r}) \int d\mathbf{k}' e^{i\mathbf{k}'\mathbf{r}} B_n(\mathbf{k}', t), \tag{1}$$

где $\varphi_n(\mathbf{r}) \equiv \varphi_{n, \mathbf{k}}(\mathbf{r})|_{\mathbf{k}=0}$ — блоховская амплитуда в центре зоны Бриллюэна, n — номер зоны. В настоящей работе рассматриваются алмазоподобные полупроводники, имеющие простую зону проводимости, двукратно вырожденную по спину с минимумом при $\mathbf{k}=0$, и четырехкратно вырожденную валентную зону с максимумом в этой же точке. В точке экстремума зоны разделены энергетическим промежутком $\mathcal{E}_g$. Таким образом, суммирование в формуле (1) ведется по шести указанным состояниям, конкретный вид которых приведен, например, в работе [8].

Величины $B_n(\mathbf{k}', t)$, входящие в формулу (1), удовлетворяют уравнениям

$$i\hbar\frac{\partial B_v(\mathbf{k}',\ t)}{\partial t}=-\sum_{v=1}^{4}\mathcal{H}_{vv'}\left(\mathbf{k}'+\frac{e\mathbf{F}_0\sin\omega t}{\hbar\omega}\right)B_{v'}(\mathbf{k}',\ t)-ie\left(\mathbf{E}\nabla_{\mathbf{k}'}\right)B_v(\mathbf{k}',\ t)+$$

$$+i\cos\omega t\sum_{c=1}^{2}v_{cv}B_c(\mathbf{k}',\ t),\qquad(2)$$

$$i\hbar\frac{\partial B_c(\mathbf{k}',\ t)}{\partial t}=\mathscr{E}_c\left(\mathbf{k}'+\frac{e\mathbf{F}_0\sin\omega t}{\hbar\omega}\right)B_c(\mathbf{k}',\ t)-ie\left(\mathbf{E}\nabla_{\mathbf{k}'}\right)B_c(\mathbf{k}',\ t)+$$

$$+i\cos\omega t\sum_{v=1}^{4}v_{cv}B_v(\mathbf{k}',\ t),\qquad(3)$$

где $v_{cv}=e\hbar\,(F_0P_{cv})/m_0\mathscr{E}_g$ — оператор межзонного перехода, P_{cv} — матричный элемент оператора импульса, вычисленный между парой базисных функций, одна из которых принадлежит зоне проводимости, а другая — валентной зоне, m_0 — масса свободного электрона, $\mathcal{H}_{vv'}$ — матричные элементы гамильтониана Латтинжера, приведенные, например, в работе [8].

Если в системе из шести уравнений (2), (3) пренебречь последними слагаемыми в правых частях, то она распадется на две независимые системы. Одна из них, содержащая четыре уравнения для коэффициентов B_v, описывает нестационарные состояния электрона в валентной зоне, другая — для коэффициентов B_c описывает нестационарные состояния в зоне проводимости. Последние слагаемые ответственны за переходы между этими зонами.

В том случае, когда валентная зона и зона проводимости разделены достаточно широким энергетическим промежутком $\mathscr{E}_g$, влияние оператора межзонного перехода v_{cv} при условии $v_{cv}\ll\mathscr{E}_g$ можно рассматривать в качестве малого возмущения и при определении внутризонных состояний положить $v_{cv}=0$.

Точное решение уравнения (3) при $v_{cv}=0$ имеет вид

$$B_c^{\varepsilon_1,\,\mathbf{k}_\perp}(\mathbf{k}',\ t)=\frac{1}{(2\pi eE)^{1/2}}\,\delta(\mathbf{k}_\perp-\mathbf{k}'_\perp)\exp\left\{-\frac{i}{\hbar}\varepsilon_1 t-\frac{ie^2(\mathbf{EF}_0)}{\hbar m_c\omega^3}\sin\omega t-\right.$$

$$\left.-\frac{i}{eE}\int\left(\tilde{\varepsilon}_c-\varepsilon_1\right)dk_\parallel\right\}\chi_c(\mathbf{k}',\ t),\qquad(4)$$

где ε_1 — квазиэнергия состояния (4), $\mathbf{k}_\perp$, $\mathbf{k}_\parallel$ — перпендикулярная и параллельная относительно поля $\mathbf{E}$ составляющие обобщенного импульса,

$$\chi_c(\mathbf{k}',\ t)=\exp\left\{\frac{i}{\hbar}\left[\frac{e\hbar(\mathbf{F}_0\mathbf{k}')\cos\omega t}{m_c\omega^2}+\frac{e^2F_0^2\sin 2\omega t}{8m_c\omega^3}\right]\right\},$$

$$\mathscr{E}_c=\mathscr{E}_g+\frac{e^2F_0^2}{4m_c\omega^2}+\frac{\hbar^2k^2}{4m_c}$$

— квазиэнергия состояния в зоне проводимости при $\mathbf{E}=0$, m_c — эффективная масса электрона в зоне проводимости.

Внутризонные состояния в валентной зоне в присутствии постоянного электрического поля $\mathbf{E}$ ищем в виде разложения по квазиэнергетическим состояниям, удовлетворяющим системе уравнений при $\mathbf{E}=0$ и $v_{cv}=0$, которые найдены в работе [4]. В результате квазиэнергетические решения системы (3) при $v_{cv}=0$ получаем в виде

$$B_v^{N,\,\varepsilon_2,\,\mathbf{k}_\perp}(\mathbf{k}',\ t)=\frac{1}{(2\pi eE)^{1/2}}\,\delta(\mathbf{k}_\perp-\mathbf{k}'_\perp)\exp\left\{\frac{i}{\hbar}\varepsilon_2 t+\frac{ie^2(\mathbf{EF}_0)}{\hbar m_N\omega^3}\sin\omega t+\right.$$

$$\left.+\frac{i}{eE}\int\left(\tilde{\varepsilon}_N-\varepsilon_2\right)dk_\parallel\right\}\chi_v^N(\mathbf{k}',\ t),\qquad(5)$$

где ε_2 — квазиэнергия состояния (5),

$$\chi_v^N(\mathbf{k}',\ t)=\begin{cases}Y_v^N(\mathbf{k}',\ t); & \mathbf{E}\parallel z,\\ gJ_v^N(\mathbf{k}',t)+E\sum\limits_{N'}Y_v^{N'}(\mathbf{k}',\ t)\,C^{N'N}-k_xE\tilde{C}^N\delta_v^N, & \mathbf{E}\parallel x.\end{cases}$$

Направление оси z выбрано в дальнейшем вдоль $\mathbf{F}_0$, поэтому $\mathbf{E} \parallel z$ соответствует параллельной ориентации полей, $\mathbf{E} \parallel x$ — перпендикулярной, ε_N и $Y_v^N(\mathbf{k}', t)$ — квазиэнергии и периодические части внутризонных состояний при $\mathbf{E} = 0$ (см. формулы (13), (14) работы [8]), m_N — эффективная масса электрона в валентной зоне, $m_1 = m_4 = m_h$, $m_2 = m_3 = m_l$, $m_{l,h} = m_0(\gamma_1 \mp 2\gamma)$, γ_1, $\gamma_2 = \gamma_3 = \gamma$ — параметры Латтинжера в пренебрежении гофрировкой зон. Коэффициенты $C^{NN'}$ и $\tilde{C}^N$ зависят от времени, от параметра $\beta = e^2F_0^2\gamma/m_0\hbar\omega^3$, от углов, направляющих вектор $\mathbf{k}'$, но не зависят от $\mathbf{E}$ и k'.

Коэффициент перехода a_{Nc} из состояния валентной зоны (N, ε_2, $q_\perp$) в состояние зоны проводимости (c, ε_1, $k_\perp$) определяем из уравнения (3) в первом порядке по v_{cv}. При этом в качестве начального состояния B_v берем $B_v^{N, \varepsilon_2, q_\perp}(\mathbf{k}', t)$ (5), а в качестве конечного состояния B_c берем выражение $\int dk_\perp \int d\varepsilon_1 a_{Nc} B_c^{\varepsilon_1, \mathbf{k}_\perp} \times$ $\times (\mathbf{k}', t)$, причем $a_{Nc}\big|_{t=0} = 0$. Пространственная плотность вероятности перехода в единицу времени имеет вид

$$W = \frac{1}{Vt} \sum_{N, \varepsilon_2, q_\perp, c, \varepsilon_1, k_\perp} |a_{Nc}|^2,$$

где V — объем кристалла.

При $t \to \infty$ W можно представить в виде суммы плотностей вероятностей процессов $W^{(s)}$, сопровождающихся поглощением определенного числа фотонов, подобно тому как это сделано в работе [4]. В адиабатическом приближении $s \gg 1$ выражение для $W^{(s)}$ вычисляем, следуя [4], с использованием метода перевала.

Результаты примут компактный вид, если ограничиваться отвечающей эксперименту областью больших значений параметра Келдыша $\Gamma = (2\mu_l\mathscr{E}_g)^{1/2}\omega/eF_0$, представляющего собой отношение времени туннелирования в поле F_0 к периоду $2\pi/\omega$. Далее приведены окончательные выражения для вероятности s-фотонного перехода для случаев параллельной $W_\parallel^s$ и взаимно перпендикулярной $W_\perp^{(s)}$ ориентаций постоянного $\mathbf{E}$ и переменного $\mathbf{F}_0 \cos \omega t$ электрических полей.

Мы пренебрегли вкладом в вероятность перехода $W_\perp^{(s)}$ слагаемых, малых по параметру $\omega_{E\perp 1}/\omega$, где $\omega_{E\perp 1, 2} = (eE)^{2/3}(2\hbar\mu_{1,2})^{-1/3}$,

$$\mu_{1,2}^{-1} = \frac{\gamma_1 \pm \gamma}{m_0} + \frac{1}{m_c}.$$

Для электрического поля $F = 3 \cdot 10^3$ В/см, $2\mu_1 \simeq 10^{-27}$ г, $\omega_{E\perp 1} \simeq 3 \cdot 10^{12}$ с$^{-1}$, тогда как при трехфотонном переходе через запрещенную зону $\mathscr{E}_g \simeq 0.6$ эВ частота $\omega = \mathscr{E}_g/3\hbar = 3 \cdot 10^{14}$ с$^{-1}$:

$$W_\perp^{(s)} = \\ = W_0^{(s)} \begin{cases} \left(\dfrac{\omega_{E\perp 2}}{\omega_g}\right)^{1/3} J_1(\delta_{\perp 2}), & s = 2n+1, \\ 2s^2\left(\dfrac{\omega_{E\perp 2}}{\omega_g}\right)^{3/2} J_2(\delta_{\perp 2}) + \left(\dfrac{\mu_h}{\mu_l}\right)^{1/2} \dfrac{3\pi s\gamma\mu_1^2}{2m_0\mu_2}\left(\dfrac{\omega_{E\perp 1}}{\omega_g}\right)^{3/2}\left(J_3(\delta_{\perp 1}) + \dfrac{1}{2}J_2(\delta_{\perp 2})\right), & s = 2n, \end{cases} \tag{6}$$

$$W_\parallel^{(s)} = W_0^{(s)} \begin{cases} \left(\dfrac{\omega_{E\parallel 2}}{\omega_g}\right)^{1/3} J_1(\delta_{\parallel 2}), & s = 2n+1, \\ 4s^2\left(\dfrac{\omega_{E\parallel 2}}{\omega_g}\right)^{3/2} J_3(\delta_{\parallel 2}) + \dfrac{3}{2}\left(\dfrac{\mu_h}{\mu_l}\right)^{1/2} \dfrac{\pi s\gamma\mu_1^2}{m_0\mu_2}\left(\dfrac{\omega_{E\parallel 1}}{\omega_g}\right)^{3/2} J_2(\delta_{\parallel 1}), & s = 2n, \end{cases} \tag{7}$$

где

$$W_0^{(s)} = \frac{8\sqrt{2}\,P_{cv}^2\omega^2\mu_2\mu_l^{3/2}}{3\pi^2 m_0^2 \mathscr{E}_g^{1/2}\hbar^2}\left(\frac{1}{2\Gamma}\right)^{2s}\exp(s)\frac{1}{s}, \quad \omega_{E\parallel 1,2} = \frac{(eE)^{2/3}}{(2\mu_{h,l}\hbar)^{1/3}},$$

$$\omega_g = \mathscr{E}_g/\hbar, \quad \Delta_{h,l} = \mathscr{E}_g + \frac{e^2F_0^2}{4\mu_{h,l}\omega^2} - s\hbar\omega,$$

$$\delta_{\perp 1,2} = \Delta_{h,l}(\hbar\omega_{E\perp 1,2})^{-1}, \quad \delta_{\parallel 1,2} = \Delta_{h,l}(\hbar\omega_{E\parallel 1,2})^{-1}.$$

Частотная зависимость вероятности перехода определяется функциями

$$J_1(x) = \mathrm{Ai}'^2(x) - x\,\mathrm{Ai}^2(x),$$

$$J_2(x) = {}^2/_3 x^2\,\mathrm{Ai}^2(x) - {}^1/_3\,\mathrm{Ai}(x)\,\mathrm{Ai}'(x) - {}^2/_3 x\,\mathrm{Ai}'^2(x),$$

$$J_3(x) = {}^1/_3 x^2\,\mathrm{Ai}^2(x) - {}^2/_3\,\mathrm{Ai}(x)\,\mathrm{Ai}'(x) - {}^1/_3 x\,\mathrm{Ai}'^2(x),$$

где

$$\mathrm{Ai}(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi}}\int\limits_0^\infty \cos\left(ux + \frac{u^3}{3}\right) du$$

— функция Эйри, $\mathrm{Ai}'(x)$ — ее производная.

В пределе $E \to 0$, что соответствует $\delta \ll -1$, формулы (6) и (7) с учетом асимптотических выражений для Ai и Ai′ переходят в соответствующие формулы для свободного поглощения, полученные ранее в работе [4].

Перейдем к обсуждению полученных результатов (6), (7). Зависимость вероятности s-фотонного перехода $W^{(s)}$ от электрического поля световой волны F_0 определяется величиной $W_0^{(s)} \backsim \Gamma^{-2s} \backsim F_0^{2s}$. Характер частотной зависимости вероятности перехода оказывается различным для различного по четности числа поглощаемых фотонов s. Для нечетных s $W^{(s)} \backsim J_1(\delta)$, что дает в асимптотических областях выше края поглощения $-\delta \gg 1$ $W^{(s)} \backsim (-\delta)^{1/2}$ и ниже края поглощения $W^{(s)} \backsim \delta^{-1}\exp(-4/3\delta^{3/2})$. Для четных $s W^{(s)}$ определяется линейной комбинацией функций J_2 и J_3. Это приводит к тому, что при $-\delta \gg 1$ $W^{(s)} \backsim (-\delta)^{3/2}$, а при $\delta \gg 1$ $W^{(s)} \sim \exp(-4/3\delta^{3/2})$. Из асимптотических выражений для $W^{(s)}$ в длинноволновой области относительно края поглощения $\delta \gg 1$ видно, что постоянное электрическое поле эффективнее смещает край s-фотонного поглощения в длинноволновую область на величину $\Delta\omega = \omega_E/s$.

Рассмотрим относительный вклад легких и тяжелых дырок в переходы различной четности. Из выражений (6), (7) следует, что в нечетно-фотонные переходы основной вклад дают легкие дырки. Относительный вклад легких и тяжелых дырок в четно-фотонные переходы существенно зависит от частоты поглощаемого света. В области частот значительно ниже края поглощения $\delta \gg 1$ в $W_\perp^{(s)}$ основной вклад дает второе слагаемое, связанное с переходами тяжелых дырок. Это обусловлено двумя обстоятельствами: тем, что край поглощения $\Delta_h = 0$ тяжелыми дырками находится ниже края поглощения $\Delta_l = 0$ легкими дырками, а также тем, что приведенная поперечная по отношению к F_0 масса тяжелых дырок μ_1 меньше приведенной поперечной массы легких дырок μ_2. В области вблизи края поглощения $\delta \approx 0$ вклады легких и тяжелых дырок сравнимы. В асимптотической области выше края поглощения $-\delta \gg 1$ вклады легких и тяжелых дырок также сравнимы, причем вклад легких дырок возрастает с ростом s.

В области частот существенно ниже края поглощения $\delta \gg 1$ в $W_\parallel^{(s)}$ для четных s основной вклад дают легкие дырки. Это обусловлено тем, что приведенная продольная по отношению к F_0 масса легких дырок μ_l меньше соответствующей массы тяжелых дырок μ_h. На краю и выше края поглощения соотношение между вкладами легких и тяжелых дырок в $W_\parallel^{(s)}$ примерно такое же, как и для случая $\mathbf{E} \perp \mathbf{F}_0$.

Будем характеризовать поляризационные эффекты при поглощении отношением $W_\parallel^{(s)}/W_\perp^{(s)}$, которое существенно зависит от области поглощаемых частот. При частотах значительно выше края $-\delta \gg 1$, как и следует ожидать, $W_\parallel^{(s)}/W_\perp^{(s)} \to 1$. Остановимся на области значительно ниже края $\delta \gg 1$, поскольку именно в этой области электрическое поле $\mathbf{E}$ играет решающую роль. Здесь для нечетно-фотонных переходов $s = 2n+1$

$$\frac{W_\parallel^{(s)}}{W_\perp^{(s)}} \simeq \left(\frac{\mu_l}{\mu_2}\right)^{1/6} \exp\left\{\frac{4\sqrt{2}\,\Delta_l^{3/2}}{3\hbar eE}\left(\sqrt{\mu_2} - \sqrt{\mu_l}\right)\right\}, \tag{8}$$

а для четно-фотонных переходов $s = 2n$

$$\frac{W_\parallel^{(s)}}{W_\perp^{(s)}} \simeq \frac{4sm_0\mu_2}{3\pi\mu_1^{3/2}\mu_h^{1/2}} \exp\left\{\frac{4\sqrt{2}}{3\hbar eE}\left(\Delta_h^{3/2}\sqrt{\mu_1} - \Delta_l^{3/2}\sqrt{\mu_l}\right)\right\}. \tag{9}$$

Полученная поляризационная зависимость для нечетно-фотонного поглощения (8) в области ниже края находится в качественном согласии с результатом работы [8], если в последней пренебречь гофрировкой, положив $\gamma_2=\gamma_3=\gamma$. Различия в предэкспоненциальном множителе (8) и в соответствующем результате работы [8] обусловлены тем, что они получены для разных значений параметра $\varepsilon=k\hbar\omega/eF_0$. В данной работе $\varepsilon^2 \ll 1$. В [8], где исследовалось однофотонное поглощение слабой световой волны, пренебрегалось вкладом электрического поля световой волны $\mathbf{F}_0 \cos \omega t$ во внутризонные состояния с импульсом $\mathbf{k}$, что соответствует приближению $\varepsilon \gg 1$.

В заключение укажем, что в случае простой валентной зоны ($\gamma=0$) правая часть формулы (8) оказывается равной единице. Таким образом, ненулевое значение разности $(W_{\parallel}^{(s)}/W_{\perp}^{(s)}-1)$ при $s=2n+1$ является качественным признаком вырожденности валентной зоны. По величине этой разности можно судить о параметре γ, определяющем различие эффективных масс легких и тяжелых дырок. Различное нечетно-фотонное поглощение продольно ($\mathbf{F}_0 \parallel \mathbf{E}$) и поперечно ($\mathbf{F}_0 \perp \mathbf{E}$) поляризованного излучения (8) — продольно-поперечный дихроизм — может быть предметом экспериментального исследования в кристаллах типа $\mathrm{A^{III}B^{V}}$.

Литература

[1] Зельдович Я. Б. — ЖЭТФ, 1966, т. 51, в. 5, с. 1492—1495.
[2] Ритус В. И. — ЖЭТФ, 1966, т. 51, в. 5, с. 1544—1549.
[3] Ребане Ю. Т. — ФТТ, 1985, т. 27, в. 5, с. 1364—1367.
[4] Монозон Б. С., Селезнева А. Н. — ФТП, 1987, т. 21, в. 8, с. 1434—1439.
[5] Келдыш Л. В. — ЖЭТФ, 1958, т. 34, в. 4, с. 1138—1141.
[6] Franz W. — Naturforsch., 1958, v. 13a, p. 484—489.
[7] Luttinger J. M., Kohn W. — Phys. Rev., 1955, v. 97, N 3, p. 869—888.
[8] Келдыш Л. В., Константинов О. В., Перель В. И. — ФТП, 1969, т. 3, в. 7, с. 1042—1053.

Ленинградский кораблестроительный институт

Получена 8.12.1987
Принята к печати 11.07.1988