

НЕЛИНЕЙНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ СВОБОДНЫМИ НОСИТЕЛЯМИ ЗАРЯДА В ПОЛЯРНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКАХ

В. Л. Малевич

УДК 535.343.2;537.311.33

Институт физики НАН Беларуси, Минск, Беларусь;
Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники,
Минск, Беларусь; e-mail: v.malevich@ifanbel.bas-net.by

(Поступила 24 июля 2023)

Получено аналитическое выражение для коэффициента поглощения интенсивного терагерцового излучения свободными электронами в полупроводнике, когда основным механизмом рассеяния электронов является спонтанное испускание полярных оптических фононов. Показано, что коэффициент поглощения резко возрастает, когда средняя энергия колебаний электрона в терагерцовом поле превышает энергию оптического фонона.

Ключевые слова: терагерцовое электромагнитное излучение, полупроводник, нелинейное поглощение, свободные носители заряда, полярные оптические фононы.

A formula is obtained for the absorption coefficient of intense terahertz radiation by free electrons in a semiconductor when the main mechanism of electron scattering is the spontaneous emission of polar optical phonons. It is shown that the absorption coefficient increases sharply when the average energy of electron oscillations in the terahertz field exceeds the energy of the optical phonon.

Keywords: terahertz electromagnetic radiation, semiconductor, nonlinear absorption, free charge carriers, polar optical phonons.

Введение. В настоящее время разработаны источники терагерцовых (ТГц) электромагнитных импульсов субпикосекундной длительности с пиковой напряженностью электрического поля, достигающей десятков МВ/см [1]. Появление таких источников обусловило возникновение нового метода исследования электронных явлений, происходящих в конденсированных средах под действием сильного ТГц электрического поля. ТГц-импульсы, используемые для зондирования исследуемого материала, обычно состоят из одной-двух осцилляций электрического поля и имеют субпикосекундную длительность, поэтому сильное ТГц электрическое поле оказывает в основном динамическое воздействие на электроны и практически не приводит к их разогреву.

Метод исследования с применением мощных сверхкоротких ТГц-импульсов особенно эффективен при изучении некоторых электронных явлений в полупроводниках и двумерных материалах типа графена. В частности, исследованы такие эффекты, как анизотропия ТГц-поглощения [2], баллистический перенос электронов в сильных электрических полях [3], блоховские осцилляции электронов в полупроводниках [4] и нелинейное ТГц-поглощение и генерация гармоник в графене [5].

В полупроводниках существенный вклад в поглощение ТГц-излучения дает друдевский механизм поглощения на свободных носителях заряда. В процессах поглощения или испускания фотона электроном изменение его импульса намного превышает импульс фотона. Для выполнения законов сохранения энергии и импульса акт электрон-фотонного взаимодействия должен происходить с участием третьей частицы, поэтому поглощение света свободными носителями заряда в полупроводни-

NONLINEAR ABSORPTION OF TERAHERTZ RADIATION BY FREE CHARGE CARRIERS IN POLAR SEMICONDUCTORS

V. L. Malevich (B. I. Stepanov Institute Physics of the National Academy of Sciences, Minsk, Belarus; Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics, Minsk, Belarus; e-mail: v.malevich@ifanbel.bas-net.by)

ках сопровождается рассеянием электронов на фононах, дефектах, ионах примеси, а коэффициент поглощения пропорционален частоте рассеяния [6].

При слабых интенсивностях поглощение света обусловлено однофотонными процессами. Расчет, проведенный для квантовой области частот $\hbar\Omega \gg kT$, показывает, что коэффициент поглощения пропорционален частоте рассеяния электронов при энергии $\varepsilon \approx \hbar\Omega$, соответствующей конечному состоянию [6]. Это приводит к **изменению частотной зависимости** коэффициента поглощения, которая уже не описывается друдевским законом ($\sim \Omega^{-2}$), а **ее вид различный для разных** механизмов рассеяния. Так, в полярных полупроводниках при рассеянии электронов на полярных оптических фононах коэффициент поглощения пропорционален $\Omega^{-5/2}$. Однако, как показано в [7], при низких температурах ($T \ll \hbar\omega_0/k$, $\hbar\omega_0$ — энергия оптического фонона, k — постоянная Больцмана), когда основным механизмом рассеяния является спонтанное испускание полярных оптических фононов, коэффициент поглощения в области частот $\hbar|\Omega - \omega_0| \sim kT$ экспоненциально растет с увеличением частоты.

Причина такой зависимости понятна, если учесть, что при $\Omega < \omega_0$ маловероятен процесс, в котором поглощается квант света и испускается оптический фонон.

При большой напряженности поля электромагнитной волны становятся существенными многофотонные процессы и возникает зависимость коэффициента поглощения от интенсивности излучения. С классической точки зрения нелинейность поглощения объясняется зависимостью частоты рассеяния электронов от напряженности электрического поля и становится заметной, когда энергия колебаний электрона в ТГц-поле превышает его начальную кинетическую энергию и энергию фотона [8—10].

В настоящей работе рассматривается многофотонное поглощение интенсивного ТГц-излучения свободными носителями заряда в полупроводниках, когда основным механизмом рассеяния электронов является спонтанное испускание полярных оптических фононов. Учитывается неупругий характер электрон-фононного рассеяния, т. е. в отличие от [10] не пренебрегается энергией оптического фонона в процессе поглощения фотонов электроном. Расчеты показывают, что в полупроводниках, даже при сравнительно небольшой амплитуде электрического поля, может проявляться нелинейность друдевского поглощения ТГц-излучения на свободных носителях заряда.

Расчет. Исходим из выражения для плотности высокочастотного электрического тока, которое получается из квантового кинетического уравнения для функции распределения электронов в однородном высокочастотном электрическом поле $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}\sin(\Omega t)$ [11]:

$$\mathbf{j}_- = \frac{2e}{m\hbar\Omega} \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{q}} |C_{\mathbf{q}}|^2 \bar{\mathbf{q}}_{\mathbf{p}} \sum_{n, l=-\infty}^{+\infty} J_n(\mathbf{a}\mathbf{q}) J_{n+l}(\mathbf{a}\mathbf{q}) \operatorname{Re} \left\{ \frac{e^{i\Omega t}}{il} \times \right. \\ \left. \times \int_0^{\infty} \exp \left[\frac{i}{\hbar} (\varepsilon_{\mathbf{p}+\hbar\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0 - n\hbar\Omega + i\delta) \tau \right] d\tau \right\}. \quad (1)$$

Здесь $\varepsilon_{\mathbf{p}} = p^2/2m$ — энергия электрона с импульсом \mathbf{p} ; m — эффективная масса электрона; $\bar{\mathbf{f}}_{\mathbf{p}}$ — стационарная часть функции распределения электронов по импульсам; J_n — функция Бесселя первого рода; $\mathbf{a} = e\mathbf{E}/m\Omega^2$ — **амплитуда (не вектор?)** колебаний электрона в поле электромагнитной волны; \mathbf{q} — волновой вектор фонона; $\delta \rightarrow +0$ — параметр адиабатического включения поля, $\operatorname{Re}\{\dots\}$ означает реальную часть выражения в скобках. Матричный элемент электрон-фононного взаимодействия имеет вид:

$$|C_{\mathbf{q}}|^2 = \frac{2\pi e^2 \hbar \omega_0}{V q^2} \left(\frac{1}{\varepsilon_{\infty}} - \frac{1}{\varepsilon_0} \right), \quad (2)$$

где V — нормировочный объем; ε_0 и ε_{∞} — низкочастотная и высокочастотная диэлектрические проницаемости. Выражение (1) содержит слагаемые для составляющих тока как на основной частоте Ω , так и на частоте гармоник $l\Omega$ ($l \neq \pm 1$).

Используя (1), для коэффициента поглощения получаем

$$\alpha = \frac{8\pi}{c\bar{n}E^2} \langle \mathbf{j}_-(t) \mathbf{E} \sin(\Omega t) \rangle = \frac{16\pi\Omega}{c\bar{n}E^2 \hbar} \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{q}} |C_{\mathbf{q}}|^2 \bar{\mathbf{f}}_{\mathbf{p}} \times \\ \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} n J_n^2(\mathbf{a}\mathbf{q}) \operatorname{Re} \left\{ \int_0^{\infty} \exp \left[\frac{i\tau}{\hbar} (\varepsilon_{\mathbf{p}+\hbar\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0 - n\hbar\Omega + i\delta) \right] d\tau \right\}, \quad (3)$$

где \bar{n} — показатель преломления, скобки $\langle \dots \rangle$ означают усреднение по периоду волны. После интегрирования по τ из (3) получаем известную формулу для коэффициента многофотонного поглощения, справедливую для случаев низкой и высокой интенсивностей электромагнитного поля [9, 10]:

$$\alpha = \frac{16\pi^2\Omega}{c\bar{n}E^2} \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{q}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} |C_{\mathbf{q}}|^2 \bar{f}_{\mathbf{p}} n J_n^2(\mathbf{a}\mathbf{q}) \delta(\varepsilon_{\mathbf{p}+\mathbf{h}\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0 + n\hbar\Omega). \quad (4)$$

При слабых интенсивностях в выражении (4) достаточно ограничиться слагаемыми с $n = \pm 1$, соответствующими однофотонным процессам. Однако для вычисления коэффициента поглощения волны с высокой интенсивностью необходимо провести суммирование по числу поглощенных фотонов. Для этого вернемся к выражению (3) и воспользуемся соотношением

$$\sum_{n=-\infty}^{\infty} n J_n^2(\mathbf{a}\mathbf{q}) \exp(-in\Omega\tau) = \frac{i}{\Omega} \frac{d}{d\tau} \left(\sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n^2(\mathbf{a}\mathbf{q}) \exp(-in\Omega\tau) \right) = \frac{i}{\Omega} \frac{d}{d\tau} \left(J_0(2\mathbf{a}\mathbf{q} \sin(\Omega\tau/2)) \right), \quad (5)$$

которое следует из теоремы сложения для цилиндрических функций [12]. После интегрирования в (3) по τ по частям получаем

$$\alpha = \frac{16\pi}{c\bar{n}E^2\hbar^2} \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{q}} |C_{\mathbf{q}}|^2 \bar{f}_{\mathbf{p}} \operatorname{Re} \left\{ \int_0^{\infty} d\tau J_0 \left(2\mathbf{a}\mathbf{q} \sin \frac{\Omega\tau}{2} \right) \times \right. \\ \left. \times (\varepsilon_{\mathbf{p}+\mathbf{h}\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0) \exp \left[\frac{i\tau}{\hbar} (\varepsilon_{\mathbf{p}+\mathbf{h}\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0 + i\delta) \right] \right\}. \quad (6)$$

В низшем приближении по амплитуде поля излучения в (6) можно использовать равновесную функцию распределения электронов и после интегрирования по \mathbf{p} и \mathbf{q} получить известное выражение для однофотонного коэффициента поглощения [7].

Рассмотрим случай сильного поля, когда энергия колебаний электрона в электромагнитном поле существенно превышает начальную кинетическую энергию электрона. Тогда в аргументе функции Бесселя (6) можно использовать замену $\sin(\Omega\tau/2) \cong \Omega\tau/2$ [9, 10]. После интегрирования по τ получаем

$$\alpha = \frac{16\pi}{c\bar{n}E^2\hbar} \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{q}} |C_{\mathbf{q}}|^2 \bar{f}_{\mathbf{p}} \frac{(\varepsilon_{\mathbf{p}+\mathbf{h}\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0)}{\sqrt{(\mathbf{a}\mathbf{q})^2 (\hbar\Omega)^2 - (\varepsilon_{\mathbf{p}+\mathbf{h}\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0)^2}}. \quad (7)$$

Допустимые значения параметров в подкоренном выражении в (7) должны удовлетворять неравенству

$$(\mathbf{a}\mathbf{q})^2 (\hbar\Omega)^2 > (\varepsilon_{\mathbf{p}+\mathbf{h}\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{p}} + \hbar\omega_0)^2, \quad (8)$$

физический смысл которого состоит в том, что испускание оптического фонона электроном возможно только при условии, что в поле электромагнитной волны он набирает энергию, превышающую энергию фонона.

Результаты и их обсуждение. В рассматриваемой области температур и при больших интенсивностях излучения в (7) можно пренебречь начальным импульсом электрона. После этого суммирование по \mathbf{p} выполняется элементарно. Переходя в (7) от суммирования по волновым векторам фононов к интегрированию в сферической системе координат, для коэффициента поглощения получаем:

$$\alpha = \frac{8Ne^4\omega_0}{c\bar{n}\hbar\Omega^2 (2m\hbar\omega_0)^{1/2}} \left(\frac{1}{\varepsilon_{\infty}} - \frac{1}{\varepsilon_0} \right) F(\beta), \quad (9)$$

$$F(\beta) = \frac{1}{\beta^{3/2}} \int_{a_-}^{a_+} dx (x + x^{-1}) \ln \left[\frac{2\beta^{1/2}}{(x + x^{-1})} + \sqrt{\frac{4\beta}{(x + x^{-1})^2} - 1} \right], \quad (10)$$

N — концентрация электронов, пределы интегрирования определяются как $a_{\pm} = \sqrt{\beta} \pm \sqrt{\beta - 1}$, параметр $\beta = e^2 E^2 / (2m\Omega^2 \hbar\omega_0)$ есть отношение средней энергии колебаний электрона в ТГц-поле к энергии оптического фонона. Отметим, что интеграл (10) обращается в нуль при $\beta \leq 1$.

На рис. 1 представлена рассчитанная функция $F(\beta)$. Видно, что зависимость поглощения от интенсивности носит пороговый характер, т. е. оно отсутствует при $\beta \leq 1$. При $\beta > 1$, когда средняя энергия колебаний электрона в ТГц электрическом поле превышает энергию оптического фонона, коэффициент поглощения резко возрастает и после достижения максимума вблизи $\beta \approx 2.6$ уменьшается по закону $\beta^{-1/2}$.

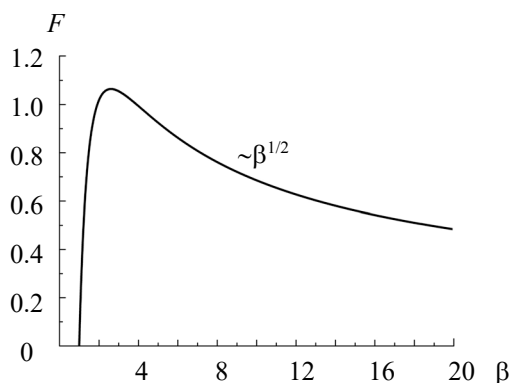


Рис. 1. Рассчитанная функция $F(\beta)$

Следует отметить, что учет реального распределения электронов по энергиям приведет к размытию порога поглощения. В допороговой области частотная зависимость коэффициента поглощения определяется фактором $\exp[\hbar\omega_0(\beta - 1) / kT]$, который пропорционален доле электронов, обладающих начальной энергией $\hbar\omega_0 - e^2 E^2 / (2m\Omega^2)$, достаточной для того, чтобы в конечном состоянии произошел процесс рассеяния с испусканием оптического фонона.

Численные оценки показывают, что для InAs ($m \cong 0.023m_0$, $\hbar\omega_0 \cong 30$ мэВ) при $\Omega \approx 10^{13} \text{ с}^{-1}$ пороговая напряженность электрического поля ~ 9 кВ/см. Поля с такой напряженностью могут быть сравнительно легко получены при использовании ТГц-источников на основе фотопроводящих полупроводниковых антенн.

Заключение. Получена формула для многоквантового коэффициента поглощения интенсивного терагерцового излучения свободными носителями заряда в полупроводниках при рассеянии электронов на полярных оптических фононах. Показано, что нелинейность поглощения может проявляться при сравнительно небольшой амплитуде терагерцового поля (~ 10 кВ/см). Учет неупругости рассеяния электронов на оптических фононах приводит к пороговой зависимости поглощения от интенсивности терагерцового излучения. Коэффициент поглощения резко возрастает, если средняя энергия колебаний электрона в поле электромагнитной волны превышает энергию оптического фонона. После достижения максимума коэффициент поглощения уменьшается обратно пропорционально амплитуде терагерцового поля.

[1] H. A. Hafez, X. Chai, A. Ibrahim, S. Mondal, D. Férachou, X. Ropagnol, T. Ozaki. *J. Opt.*, **18**, N 9 (2016) 093004, doi: 10.1088/2040-8978/18/9/093004

[2] F. Blanchard, D. Golde, F. H. Su, L. Razzari, G. Sharma, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, M. Kira, S. W. Koch, F. A. Hegmann. *Phys. Rev. Lett.*, **107**, N 10 (2011) 107401, doi: 10.1103/PhysRevLett.107.107401

[3] P. Bowlan, W. Kuehn, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, R. Hey, C. Flytzanis. *Phys. Rev. Lett.*, **107**, N 25 (2011) 256602, doi: 10.1103/PhysRevLett.107.256602

[4] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, R. Huber. *Nat. Photon.*, **8**, N 2 (2014) 119—123, doi: 10.1038/nphoton.2013.349

[5] H. A. Hafez, S. Kovalev, K.-J. Tielrooij, M. Bonn, M. Gensch, D. Turchinovich. *Adv. Opt. Mater.*, **8**, N 3 (2020) 1900771, doi: 10.1002/adom.201900771

-
- [6] **Г. Фэн.** Фотон-электронное взаимодействие в кристаллах в отсутствие внешних полей, Москва, Мир (1969) 24—26 [**H. Y. Fan.** Photon-Electron Interaction, Crystals without Field, Berlin, Heidelberg, N.-Y., Springer-Verlag (1967)]
- [7] **В. Л. Гуревич, И. Г. Ланг, Ю. А. Фирсов.** ФТТ, **4**, № 5 (1962) 1252—262
- [8] **В. П. Силин.** ЖЭТФ, **47**, № 6 (1965) 2254—2260 [**V. P. Silin.** Sov. Phys. JETP, **20**, N 6 (1965) 1510—1516]
- [9] **М. В. Федоров.** Электрон в сильном световом поле, Москва, Наука (1991) 20—30
- [10] **Ан. В. Виноградов.** ЖЭТФ, **68**, № 3 (1975) 1091—1094. [**An. V. Vinogradov.** Sov. Phys. JETP, **41**, N 3 (1976) 540—543]
- [11] **Э. М. Эпштейн.** ФТТ, **12**, № 12 (1970) 3461—3465
- [12] **И. С. Градштейн, И. М. Рыжик.** Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений, Москва, ГИФМЛ (1962) 993