ЖЭТФ, 2011, том 139, вып. 1, стр. 175–183 

# СДВИГОВЫЙ ФОТОТОК ПРИ ДВУХКВАНТОВЫХ ПЕРЕХОДАХ

*Л. Е. Голуб*, *Е. Л. Ивченко*

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

Поступила в редакцию 20 июня 2010 г.

Построена теория сдвигового, или недиагонального фототока при прямых двухфотонных и непрямых однофотонных переходах в твердых телах без центра пространственной инверсии. Выведена формула для микроскопических сдвигов блоховских электронов при двухквантовых процессах. Показано, что отношение двухфотонного фототока на частоте света $\omega$ к фототоку, возникающему при прямых однофотонных оптических переходах на частоте света $2\omega$, содержит по сравнению с аналогичным отношением вероятностей поглощения большой множитель $\hbar\omega/(2\hbar\omega - E_g)$, где $E_g$ — ширина запрещенной зоны твердого тела, и при большой интенсивности двухфотонной накачки эти токи могут иметь один порядок величины. Для кристаллов точечной симметрии $T_d$ проведено сравнение поляризационных зависимостей фототоков, возникающих при линейном и двухфотонном поглощении.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В квантовой теории твердого тела электрический ток электронов выражается через их матрицу плотности $\rho_{n'n}(\mathbf{k})$ в виде

$$\mathbf{j} = e \sum_{n'n\mathbf{k}} \mathbf{v}_{nn'}(\mathbf{k}) \rho_{n'n}(\mathbf{k}),$$

где $\mathbf{k}$ — волновой вектор блоховского электрона, $n'$ и $n$ — зонные индексы, $\mathbf{v}_{nn'}(\mathbf{k})$ — матричный элемент оператора скорости, $e$ — заряд электрона. Как правило, основной вклад в эту сумму для плотности тока $\mathbf{j}$ вносят диагональные слагаемые с $n' = n$:

$$\mathbf{j} \equiv \mathbf{j}^d = e \sum_{n\mathbf{k}} \mathbf{v}_{n\mathbf{k}} f_n(\mathbf{k}),$$

где $\mathbf{v}_{n\mathbf{k}} \equiv \mathbf{v}_{nn}(\mathbf{k})$ — групповая скорость $\hbar^{-1}\partial E_{n\mathbf{k}}/\partial\mathbf{k}$, $f_n(\mathbf{k}) \equiv \rho_{nn}(\mathbf{k})$ — неравновесная функция распределения электронов, $E_{n\mathbf{k}}$ — дисперсия энергетической зоны $n$. Однако в ряде случаев, в частности, в теории фотогальванических эффектов в нецентросимметричных средах [1–3] и теории спинового эффекта Холла [4–6], наряду с диагональным, или баллистическим током сопоставимый вклад вносится недиагональным (off-diagonal) по номерам зон током

$$\mathbf{j}^{o.d.} = e \sum_{n' \neq n, \mathbf{k}} \mathbf{v}_{nn'}(\mathbf{k}) \rho_{n'n}(\mathbf{k}). \qquad (1)$$

Этот вклад можно переписать в форме [1]

$$\mathbf{j}^{o.d.} = e \sum_{n' \neq n, \mathbf{k}\mathbf{k}'} \mathbf{R}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}} W_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}, \qquad (2)$$

допускающей его интерпретацию в качестве сдвигового тока. Здесь $W_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ — вероятность перехода электрона в единицу времени из состояния $(n\mathbf{k})$ в состояние $(n'\mathbf{k}')$, а вектор $\mathbf{R}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ представляет собой микроскопический сдвиг электрона (точнее, электронного волнового пакета) в реальном пространстве при таком переходе. Элементарный сдвиг можно выразить через фазу $\Phi_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ матричного элемента $V_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ квантового перехода [1]:

$$\mathbf{R}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}} = -(\nabla_\mathbf{k} + \nabla_{\mathbf{k}'})\Phi_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}} + \mathbf{\Omega}_{n'\mathbf{k}'} - \mathbf{\Omega}_{n\mathbf{k}}, \quad (3)$$

где

$$\mathbf{\Omega}_{n\mathbf{k}} = i \left\langle u_{n\mathbf{k}} \middle| \nabla_\mathbf{k} u_{n\mathbf{k}} \right\rangle, \qquad (4)$$

а $u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ — периодическая амплитуда блоховской функции $e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$, см., например, [7]. Первое слагаемое в правой части формулы (3) можно переписать в виде

$$-(\nabla_\mathbf{k} + \nabla_{\mathbf{k}'})\Phi_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}} = = -\frac{\mathrm{Im}\{V^*_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}(\nabla_\mathbf{k} + \nabla_{\mathbf{k}'})V_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}\}}{|V_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}|^2}. \qquad (5)$$

При прямых оптических переходах волновой вектор электрона сохраняется, $\mathbf{k}' = \mathbf{k}$, и дифференцирование матричного элемента $V_{n'n}(\mathbf{k}) \equiv V_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}$ проводится по одному волновому вектору $\mathbf{k}$. Отметим, что

*E-mail: golub@coherent.ioffe.ru

хотя разность $\boldsymbol{\Omega}_{n'\mathbf{k}'} - \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}}$ не вносит вклад в стационарный фототок (2), она делает выражение (3) инвариантным по отношению к выбору фаз периодических амплитуд $u_{n\mathbf{k}}$ и $u_{n'\mathbf{k}'}$.

Для упругих процессов рассеяния, рассматриваемых в борновском приближении, формула (2) получена Латтинжером [4], а для произвольных одноквантовых процессов, включая однофононные и однофотонные, — в работе [1]. В настоящей работе решена задача о сдвиговом вкладе в фототок при двухквантовых процессах: прямом двухфотонном поглощении и непрямом однофотонном поглощении с участием примесей или фононов. На первый взгляд ответ очевиден — можно воспользоваться формулой (3) и подставить в качестве $\Phi_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ фазу составного матричного элемента двухквантового перехода. Однако такое обобщение формулы (3) вступает в противоречие с естественным требованием, чтобы элементарные сдвиги при процессе $(n\mathbf{k}) \to (n'\mathbf{k}')$ и обратном ему процессе $(n'\mathbf{k}') \to (n\mathbf{k})$ различались знаком:

$$\mathbf{R}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}} = -\mathbf{R}_{n\mathbf{k},n'\mathbf{k}'}. \qquad (6)$$

При одноквантовых переходах выполнение этого требования легко проверяется, так как матричные элементы двух таких процессов связаны между собой комплексным сопряжением и их фазы различаются знаком. Можно убедиться, что при использовании формулы (3) для прямых двухфотонных процессов требование (6) не выполняется. Для этого запишем составные матричные элементы

$$\begin{aligned} M_{n'n}^{abs}(\mathbf{k}) &= \sum_m \frac{V_{n'm}(\mathbf{k})V_{mn}(\mathbf{k})}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + \hbar\omega}, \\ M_{nn'}^{em}(\mathbf{k}) &= \sum_m \frac{V_{nm}(\mathbf{k})V_{mn'}(\mathbf{k})}{E_{n'\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} - \hbar\omega} \end{aligned} \qquad (7)$$

для переходов $(n\mathbf{k}) \to (n'\mathbf{k})$ и $(n'\mathbf{k}) \to (n\mathbf{k})$ соответственно с поглощением и испусканием двух квантов $\hbar\omega$ [8–10]. Здесь суммирование проводится по виртуальным состояниям $m$, $V_{mn}(\mathbf{k})$ — матричный элемент однофотонного перехода. Мы считаем свет линейно поляризованным, в этом случае одноквантовые матричные элементы удовлетворяют условию $V_{mn}(\mathbf{k}) = V_{nm}^*(\mathbf{k})$. Подставим в (5) выражения (7) для $M_{n'n}^{abs}(\mathbf{k})$ и $M_{nn'}^{em}(\mathbf{k})$ и продифференцируем по $\mathbf{k}$ как матричные элементы $V_{mn}(\mathbf{k})$, так и энергетические знаменатели в суммах (7). Учтем после дифференцирования закон сохранения энергии $E_{n'\mathbf{k}} - E_{n\mathbf{k}} = 2\hbar\omega$ и тождество $V_{n'm}(\mathbf{k})V_{mn}(\mathbf{k}) = V_{nm}^*(\mathbf{k})V_{mn'}^*(\mathbf{k})$. Сопоставление полученных таким образом элементарных сдвигов для поглощения и испускания двух фотонов показывает, что они различаются не только по знаку, так как производные

$$\nabla_{\mathbf{k}}(E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}}) \quad \text{и} \quad \nabla_{\mathbf{k}}(E_{n'\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}})$$

линейно независимы.

Ниже мы покажем, что правильный ответ для элементарного сдвига $\mathbf{R}_{n'n}(\mathbf{k}) \equiv \mathbf{R}_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}$ при двухфотонных переходах имеет вид

$$\begin{aligned} \mathbf{R}_{n'n}^{abs}(\mathbf{k}) &= -\frac{1}{|M_{n'n}^{abs}(\mathbf{k})|^2} \times \\ &\times \mathrm{Im}\left\{ M_{n'n}^{abs*}(\mathbf{k}) \sum_m \frac{\nabla_{\mathbf{k}}[V_{n'm}(\mathbf{k})V_{mn}(\mathbf{k})]}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + \hbar\omega} \right\} + \\ &+ \boldsymbol{\Omega}_{n'\mathbf{k}} - \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}}, \\ \mathbf{R}_{n'n}^{em}(\mathbf{k}) &= -\frac{1}{|M_{nn'}^{em}(\mathbf{k})|^2} \times \\ &\times \mathrm{Im}\left\{ M_{nn'}^{em*}(\mathbf{k}) \sum_m \frac{\nabla_{\mathbf{k}}[V_{nm}(\mathbf{k})V_{mn'}(\mathbf{k})]}{E_{n'\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} - \hbar\omega} \right\} + \\ &+ \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}} - \boldsymbol{\Omega}_{n'\mathbf{k}}. \end{aligned} \qquad (8)$$

С учетом закона сохранения энергии энергетические знаменатели $E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + \hbar\omega$ и $E_{n'\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} - \hbar\omega$ совпадают, а составные матричные элементы удовлетворяют соотношению

$$M_{n'n}^{abs}(\mathbf{k}) = M_{nn'}^{em*}(\mathbf{k}), \qquad (9)$$

поэтому сдвиги (8) действительно различаются только знаком.

## 2. СДВИГОВЫЙ ФОТОТОК ПРИ ДВУХФОТОННОМ ПОГЛОЩЕНИИ

Для расчета недиагонального вклада (1) при двухфотонном поглощении необходимо рассчитать электронную матрицу плотности $\rho_{n'n}(\mathbf{k})$ в четвертом порядке теории возмущений по взаимодействию электронов со светом $\hat{V}(t)$. При рассматриваемой здесь линейной поляризации света временна́я зависимость оператора $\hat{V}(t)$ и его матричных элементов имеет вид

$$\begin{aligned} \hat{V}(t) &= \hat{V}\left(e^{-i\omega t} + e^{i\omega t}\right), \\ V_{mn}(t) &= V_{mn}\left(e^{-i\omega t} + e^{i\omega t}\right), \end{aligned} \qquad (10)$$

где

$$\hat{V} = -\frac{e}{c}\mathbf{A}\cdot\hat{\mathbf{v}}, \quad \hat{\mathbf{v}} = -\frac{i\hbar\nabla}{m_0}, \qquad (11)$$

**A** — (вещественная) амплитуда векторного потенциала световой волны, $m_0$ — масса свободного электрона. В данном разделе для краткости записи, если не оговорено особо, в индексы электронных блоховских состояний $n', n, m$ и т. п. включается не только номер энергетической зоны, но и волновой вектор электрона **k**. Кроме того, для простоты изложения мы не учитываем спин-орбитального взаимодействия, поэтому блоховские функции считаются не спинорными, а скалярными, и учет спина сводится к умножению на два всех сумм по электронным состояниям. Обобщение полученных результатов с учетом спин-орбитального взаимодействия очевидно и не вызывает затруднений.

Матрица плотности удовлетворяет уравнению

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} + \gamma\hat{\rho} + \frac{i}{\hbar}[H_0 + \hat{V}(t), \hat{\rho}] = 0, \qquad (12)$$

где $H_0$ — невозмущенный одноэлектронный гамильтониан с собственными значениями энергии $E_n$, $\gamma$ — параметр адиабатического включения взаимодействия, который в конечных формулах устремляется к пределу $+0$. В матричной форме уравнение (12) принимает вид

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} + E_n - E_{n'} + i\hbar\gamma\right)\rho_{n'n} = \\ = \sum_m [V_{n'm}(t)\rho_{mn} - \rho_{n'm}V_{mn}(t)]. \qquad (13)$$

Пользуясь этим уравнением, можно связать компоненты матрицы плотности $\hat{\rho}^{(k)}$ $k$-го порядка по электрон-фотонному взаимодействию $\hat{V}(t)$ с компонентами матрицы $\hat{\rho}^{(k-1)}$, см., например, [11]. В частности, не зависящая от времени матрица плотности четвертого порядка $\hat{\rho}^{(4)}$ выражается через матрицу плотности третьего порядка:

$$\hat{\rho}^{(3)}(t) = \hat{\rho}^{(3+)}e^{-i\omega t} + \hat{\rho}^{(3-)}e^{i\omega t} \quad (\hat{\rho}^{(3-)} = \hat{\rho}^{(3+)\dagger})$$

следующим образом:

$$\rho^{(4)}_{n'n} = \frac{1}{E_{nn'} + i\hbar\gamma} \times \\ \times \sum_{m, s=\pm}\left(V_{n'm}\rho^{(3s)}_{mn} - \rho^{(3s)}_{n'm}V_{mn}\right), \qquad (14)$$

где введено сокращение $E_{nn'} = E_n - E_{n'}$. В свою очередь, матрицы $\hat{\rho}^{(3s)}$ можно связать с матрицей плотности второго порядка:

$$(E_{nn'} + s\hbar\omega + i\hbar\gamma)\rho^{(3s)}_{n'n} = \\ = \left[\hat{V}, \hat{\rho}^{(2s)}\right]_{n'n} + \left[\hat{V}, \hat{\rho}^{(2,0)}\right]_{n'n}, \qquad (15)$$

где оператор $\hat{V}$ определен согласно (10). При выводе этого уравнения мы представили матрицу $\hat{\rho}^{(2)}(t)$ в виде

$$\hat{\rho}^{(2)}(t) = \hat{\rho}^{(2+)}e^{-2i\omega t} + \hat{\rho}^{(2-)}e^{2i\omega t} + \hat{\rho}^{(2,0)}.$$

Введенные здесь постоянные матрицы удовлетворяют соотношениям $\hat{\rho}^{(2-)} = \hat{\rho}^{(2+)\dagger}$, $\hat{\rho}^{(2,0)} = \hat{\rho}^{(2,0)\dagger}$.

Используя тождество

$$\lim_{\gamma\to+0} \operatorname{Im}\{x + i\gamma\}^{-1} = -i\pi\delta(x), \qquad (16)$$

выделим в матрицах $\hat{\rho}^{(2s)}$ $(s = \pm)$ слагаемые с $\delta$-функциями типа $\delta(E_l - E_m \pm 2\hbar\omega)$, описывающими двухфотонные переходы. Получим выражение

$$\rho^{(2s)}_{n'n} = -i\pi\delta(E_{n'n} - 2s\hbar\omega)(f_n - f_{n'})M^{(s)}_{n'n}, \qquad (17)$$

где $f_n \equiv f_n(\mathbf{k})$ — функция распределения электронов, составной матричный элемент определен согласно

$$M^{(s)}_{n'n} = M^{(-s)*}_{nn'} = \sum_m \frac{V_{n'm}V_{mn}}{E_{nm} + s\hbar\omega}, \qquad (18)$$

а вместо верхних индексов «$abs$» и «$em$», использованных в (7) и соответствующих процессам двухфотонного поглощения и испускания, мы ввели краткие индексы «$(+)$» и «$(-)$». Матрица $\hat{\rho}^{(2,0)}$ двухфотонных $\delta$-функций не содержит и в дальнейшем не учитывается. Заметим, что мы рассматриваем здесь прямые двухквантовые переходы в собственном полупроводнике с энергией кванта, удовлетворяющей условиям $\hbar\omega < E_g < 2\hbar\omega$, где $E_g$ — ширина запрещенной зоны полупроводника. В этом случае адиабатический параметр $\gamma$ можно опустить в энергетических знаменателях со слагаемыми $s\hbar\omega$, например, в знаменателях, входящих под знаком суммы по $m$ в (18). Матрица $\hat{\rho}^{(4)}$ в (14) связана с матрицами (17) соотношением

$$\rho^{(4)}_{n'n} = \frac{1}{E_{nn'}} \sum_{ml, s=\pm}\left[\frac{V_{n'm}(V_{ml}\rho^{(2s)}_{ln} - \rho^{(2s)}_{ml}V_{ln})}{E_{nm} + s\hbar\omega} - \right. \\ \left. - \frac{(V_{n'l}\rho^{(2s)}_{lm} - \rho^{(2s)}_{n'l}V_{lm})V_{mn}}{E_{mn'} + s\hbar\omega}\right]. \qquad (19)$$

Подставим выражения (17) в (19) и полученные таким образом матричные элементы матрицы плотности $\hat{\rho}^{(4)}$ в формулу для двухфотонного недиагонального фототока

$$\mathbf{j}^{o.d.}_{2\text{-}phot} = e\sum_{n\neq n'} \mathbf{v}_{nn'}\rho^{(4)}_{n'n} \qquad (20)$$

и воспользуемся тождеством $\mathbf{v}_{nn'} = iE_{nn'}\mathbf{r}_{nn'}/\hbar$, связывающим матричные элементы оператора скорости и координаты при $E_{n'} \neq E_n$. Тогда фототок (20) можно представить в виде четырех сумм, в каждой из которых проводится суммирование по четырем зонным индексам $n', n, l, m$ и индексу $s = \pm$. Выполнив в трех из этих сумм удобное переобозначение зонных индексов, получим

$$\mathbf{j}^{o.d.}_{2\text{-}phot} = \frac{\pi e}{\hbar}\sum_{s=\pm}\sum_{l,m}\delta(E_{lm}-2s\hbar\omega)(f_m-f_l)M^{(s)}_{lm}\times \\ \times\sum_n \frac{[\mathbf{r},\hat{V}]'_{mn}V_{nl}+V_{mn}[\mathbf{r},\hat{V}]'_{nl}}{E_{mn}+s\hbar\omega}, \quad (21)$$

где введен неполный коммутатор:

$$[\mathbf{r},\hat{V}]'_{mn} = \sum_{n'\neq m}\mathbf{r}_{mn'}V_{n'n} - \sum_{n'\neq n}V_{mn'}\mathbf{r}_{n'n}.$$

Добавим и вычтем в неполных коммутаторах слагаемые с $n'$, совпадающим со значением другого индекса матричного элемента координаты, и учтем, что диагональные матричные элементы оператора $\mathbf{r}$ являются функционалами, зависящими от двух волновых векторов $\mathbf{k}$ и $\mathbf{k}'$ (см., например, [1, 12]):

$$\mathbf{r}_{n\mathbf{k},n\mathbf{k}'} = -i\nabla_{\mathbf{k}'}\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} + \boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{k})\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}, \quad (22)$$

где вектор $\boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{k})$ определен согласно (4). В результате числитель в (21) перепишется через полные коммутаторы:

$$[\mathbf{r},\hat{V}]_{mn}V_{nl} + V_{mn}[\mathbf{r},\hat{V}]_{nl} + \\ + V_{mn}V_{nl}\mathbf{r}_{ll} - \mathbf{r}_{mm}V_{mn}V_{nl}. \quad (23)$$

Согласно (11) коммутатор операторов координаты $\mathbf{r}$ и электрон-фотонного взаимодействия $\hat{V}$ пропорционален единичному оператору:

$$[\mathbf{r},\hat{V}] = -i\frac{e\hbar}{m_0c}\mathbf{A}, \quad [\mathbf{r},\hat{V}]_{mn} = -i\frac{e\hbar}{m_0c}\mathbf{A}\delta_{mn}.$$

Это позволяет показать, что коммутаторы не вносят вклад в фототок (21), так как имеем последовательно

$$\delta(E_{lm}-2s\hbar\omega)\sum_n\frac{V_{ml}(\delta_{nm}+\delta_{nl})}{E_{mn}+s\hbar\omega} = \\ = \delta(E_{lm}-2s\hbar\omega)\sum_n V_{ml}\left(\frac{1}{s\hbar\omega}+\frac{1}{E_{ml}+s\hbar\omega}\right) = 0.$$

Поэтому для фототока получаем:

$$\mathbf{j}^{o.d.}_{2\text{-}phot} = \frac{\pi e}{\hbar}\sum_{lm,s=\pm,\mathbf{k}}\delta(E_{lm}(\mathbf{k})-2s\hbar\omega)(f_{m\mathbf{k}}-f_{l\mathbf{k}})M^{(s)}_{lm}(\mathbf{k})\times \\ \times\sum_{n\mathbf{k}'}\frac{V_{mn}(\mathbf{k})V_{nl}(\mathbf{k})\mathbf{r}_{l\mathbf{k},l\mathbf{k}'}-\mathbf{r}_{m\mathbf{k},m\mathbf{k}'}V_{mn}(\mathbf{k}')V_{nl}(\mathbf{k}')}{E_{mn}(\mathbf{k})+s\hbar\omega}, \quad (24)$$

где $E_{mn}(\mathbf{k}) = E_{m\mathbf{k}} - E_{n\mathbf{k}}$. Из (22) следует, что $\sum\limits_{\mathbf{k}'}\mathbf{r}_{l\mathbf{k},l\mathbf{k}'} = \boldsymbol{\Omega}_l(\mathbf{k})$ и

$$-\sum_{\mathbf{k}'}\mathbf{r}_{m\mathbf{k},m\mathbf{k}'}V_{mn}(\mathbf{k}')V_{nl}(\mathbf{k}') = \\ = -i\nabla_{\mathbf{k}}[V_{mn}(\mathbf{k})V_{nl}(\mathbf{k})] - \boldsymbol{\Omega}_m(\mathbf{k})V_{mn}(\mathbf{k})V_{nl}(\mathbf{k}).$$

Поэтому сумма по $n$ и $\mathbf{k}'$ в (24) приводится к виду

$$-M^{(s)}_{ml}[\boldsymbol{\Omega}_m(\mathbf{k})-\boldsymbol{\Omega}_l(\mathbf{k})] - i\sum_n\frac{\nabla_{\mathbf{k}}[V_{mn}(\mathbf{k})V_{nl}(\mathbf{k})]}{E_{mn}+s\hbar\omega}.$$

Следующий шаг — суммирование по $s$. При этом удобно в слагаемом с $s$ равным минусу переобозначить индексы суммирования $l \leftrightarrow m$. Наконец, учет эрмитовости оператора $\hat{V}$ и соотношения (9) позволяет преобразовать ток (24) к сумме (2), в которой $\mathbf{k}' = \mathbf{k}$, $W_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}$ есть темп двухфотонных переходов

$$W_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}} = \frac{2\pi}{\hbar}\times \\ \times\sum_{n'n\mathbf{k}}\left|M^{abs}_{n'n}\right|^2(f_{n\mathbf{k}}-f_{n'\mathbf{k}})\delta(E_{n'\mathbf{k}}-E_{n\mathbf{k}}-2\hbar\omega), \quad (25)$$

а элементарные сдвиги $\mathbf{R}_{n'n}(\mathbf{k}) \equiv \mathbf{R}_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}$ определены согласно (8). Как и при однофотонных переходах, сдвиги при двухфотонных переходах удовлетворяют условию

$$\mathbf{R}^{abs}_{n'n}(\mathbf{k}) = \mathbf{R}^{abs}_{n'n}(-\mathbf{k}). \quad (26)$$

Заметим также, что выражение (25) для $W_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}$ описывает баланс $W^{abs}_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}} - W^{em}_{n\mathbf{k},n'\mathbf{k}}$ между переходами с поглощением и испусканием фотонов. Так как сдвиги для этих переходов различаются знаком, в сумму (2) можно подставлять как произведение $W_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}\mathbf{R}^{abs}_{n'n}(\mathbf{k})$, так и сумму произведений $W^{abs}_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}\mathbf{R}^{abs}_{n'n}(\mathbf{k}) + W^{em}_{n'\mathbf{k},n\mathbf{k}}\mathbf{R}^{em}_{n'n}(\mathbf{k})$.

В заключение раздела приведем без вывода формулу для элементарных сдвигов при двухквантовых переходах с участием двух фотонов с различными частотами $\omega$ и $\omega'$:

$$\mathbf{R}_{n'n}^{(ss')}(\mathbf{k}) = \boldsymbol{\Omega}_{n'\mathbf{k}} - \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}} - \frac{1}{\left|M_{n'n}^{(ss')}(\mathbf{k})\right|^2} \times \\ \times \operatorname{Im}\left\{ M_{n'n}^{(ss')*}(\mathbf{k}) \sum_m \left[ \frac{\nabla_\mathbf{k}[V_{n'm}(\mathbf{k})V'_{mn}(\mathbf{k})]}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s'\hbar\omega'} + \right.\right. \\ \left.\left. + \frac{\nabla_\mathbf{k}[V'_{n'm}(\mathbf{k})V_{mn}(\mathbf{k})]}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s\hbar\omega} \right] \right\}. \quad (27)$$

Здесь $\hat{V}'$ — оператор взаимодействия электрона со светом частоты $\omega'$, а составной матричный элемент двухквантового перехода есть

$$M_{n'n}^{(ss')}(\mathbf{k}) = \sum_m \left[ \frac{V_{n'm}(\mathbf{k})V'_{mn}(\mathbf{k})}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s'\hbar\omega'} + \right. \\ \left. + \frac{V'_{n'm}(\mathbf{k})V_{mn}(\mathbf{k})}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s\hbar\omega} \right]. \quad (28)$$

В формулах (27), (28) учтены как процессы с одновременным поглощением или испусканием двух фотонов ($s = s'$), так и процессы с испусканием одного и поглощением другого фотона ($s = -s'$). Сдвиги (27) удовлетворяют соотношению (6), которое в данном случае принимает вид

$$\mathbf{R}_{n'n}^{(ss')}(\mathbf{k}) = -\mathbf{R}_{nn'}^{(-s,-s')}(\mathbf{k}).$$

## 3. НЕПРЯМОЕ ОДНОФОТОННОЕ ВНУТРИЗОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ

Формула (27) позволяет предугадать аналогичную формулу для непрямого двухквантового внутризонного перехода $(n\mathbf{k}) \to (n\mathbf{k}')$ с участием одного фотона и одного фонона при начальном и конечном состояниях в одной зоне. Для этого нужно заменить в (27) конечное состояние $n'\mathbf{k}$ на $n\mathbf{k}'$, матричные элементы $V'_{mn}(\mathbf{k})$ на матричные элементы электрон-фононного взаимодействия $U^{(s')}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ и частоту второго фотона $\omega'$ на частоту фонона $\omega_{\nu\mathbf{q}}$, где $\nu$ — номер фононной ветви, $\mathbf{q}$ — волновой вектор фонона. С учетом закона сохранения квазиимпульса волновой вектор $\mathbf{k}'$ равен $\mathbf{k} + s'\mathbf{q}$, где $s' = +$ при поглощении фонона и $s'$ равен минусу при испускании фонона. В итоге получим для элементарного сдвига

$$\mathbf{R}_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(ss')} = \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}'} - \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}} - \frac{1}{\left|M_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(ss')}\right|^2} \times \\ \times \operatorname{Im}\left\{ M_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(ss')*} \sum_m \left[ \frac{(\nabla_\mathbf{k}+\nabla_{\mathbf{k}'})(V_{nm}(\mathbf{k}')U^{(s')}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}})}{E_{n\mathbf{k}}-E_{m\mathbf{k}'}+s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}} + \right.\right. \\ \left.\left. + \frac{(\nabla_\mathbf{k}+\nabla_{\mathbf{k}'})(U^{(s')}_{n\mathbf{k}',m\mathbf{k}}V_{mn}(\mathbf{k}))}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s\hbar\omega} \right] \right\}, \quad (29)$$

где составной матричный элемент для непрямого оптического перехода имеет стандартный вид

$$M_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(ss')} = \sum_m \left( \frac{U^{(s')}_{n\mathbf{k}',m\mathbf{k}}V_{mn}(\mathbf{k})}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s\hbar\omega} + \right. \\ \left. + \frac{V_{nm}(\mathbf{k}')U^{(s')}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}'} + s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}} \right). \quad (30)$$

При этом волновые векторы удовлетворяют закону сохранения энергии $E_{n\mathbf{k}'} - E_{n\mathbf{k}} = \hbar(s\omega + s'\omega_{\nu\mathbf{q}})$.

Выражение для элементарного сдвига при непрямом оптическом переходе $(n\mathbf{k}) \to (n\mathbf{k}')$ с рассеянием на статическом дефекте получается из уравнения (29) обращением в нуль частоты $\omega_{\nu\mathbf{q}}$, отбрасыванием индекса $s'$ и заменой матричного элемента электрон-фононного взаимодействия $U^{(s')}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ на матричный элемент упругого рассеяния $U^{def}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$:

$$\mathbf{R}_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(s)} = \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}'} - \boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}} - \frac{1}{\left|M_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(s)}\right|^2} \times \\ \times \operatorname{Im}\left\{ M_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(s)*} \sum_m \left[ \frac{(\nabla_\mathbf{k}+\nabla_{\mathbf{k}'})(V_{nm}(\mathbf{k}')U^{def}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}})}{E_{n\mathbf{k}}-E_{m\mathbf{k}'}} + \right.\right. \\ \left.\left. + \frac{(\nabla_\mathbf{k}+\nabla_{\mathbf{k}'})(U^{def}_{n\mathbf{k}',m\mathbf{k}}V_{mn}(\mathbf{k}))}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s\hbar\omega} \right] \right\}, \quad (31)$$

где составной матричный элемент для непрямого оптического перехода теперь имеет вид

$$M_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}}^{(s)} = \sum_m \left( \frac{U^{def}_{n\mathbf{k}',m\mathbf{k}}V_{mn}(\mathbf{k})}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}} + s\hbar\omega} + \right. \\ \left. + \frac{V_{nm}(\mathbf{k}')U^{def}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}}{E_{n\mathbf{k}} - E_{m\mathbf{k}'}} \right). \quad (32)$$

Учитывая эрмитовость оператора $\hat{V}$ и свойства матричных элементов рассеяния,

$$U^{(s')}_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}} = U^{(-s')*}_{n\mathbf{k},n\mathbf{k}'} \quad \text{или} \quad U^{def}_{n\mathbf{k}',n\mathbf{k}} = U^{\text{def}*}_{n\mathbf{k},n\mathbf{k}'}, \quad (33)$$

можно показать, что элементарные сдвиги удовлетворяют требованию (6).

Для последовательного вывода формулы (29) нужно, наряду с взаимодействием (10), учесть оператор электрон-фононного взаимодействия $U(\mathbf{r},t)$, который можно представить в виде линейного разложения по операторам рождения ($a^\dagger_{\nu\mathbf{q}}$) и уничтожения ($a_{\nu\mathbf{q}}$) фононов ветви $\nu$ с волновым вектором $\mathbf{q}$:

$$U(\mathbf{r},t)=\sum_{\mathbf{q}}\left[U^{(+)}_{\mathbf{q}}(\mathbf{r})a_{\nu\mathbf{q}}e^{-i\omega_{\nu\mathbf{q}}t}+U^{(-)}_{\mathbf{q}}(\mathbf{r})a^\dagger_{\nu\mathbf{q}}e^{i\omega_{\nu\mathbf{q}}t}\right].$$

Для простоты учитывается взаимодействие с фононами одной ветви, учет всевозможных ветвей проводится суммированием фототока по $\nu$. Оператор $U(\mathbf{r},t)$ в представлении вторичного квантования фермионов имеет следующий общий вид:

$$\hat{U}(t)=\sum_{mn\mathbf{kq}}\Big(U^{(+)}_{m\mathbf{k+q},n\mathbf{k}}c^\dagger_{m\mathbf{k+q}}c_{n\mathbf{k}}a_{\nu\mathbf{q}}e^{-i\omega_{\nu\mathbf{q}}t}+ +U^{(-)}_{n\mathbf{k},m\mathbf{k+q}}c^\dagger_{n\mathbf{k}}c_{m\mathbf{k+q}}a^\dagger_{\nu\mathbf{q}}e^{i\omega_{\nu\mathbf{q}}t}\Big),\quad(34)$$

где $c^\dagger_{n\mathbf{k}},c_{n\mathbf{k}}$ — операторы соответственно рождения и уничтожения электронов, а матричные элементы $U^{(\pm)}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ связаны соотношением (33). При выводе выражения для сдвига (29) учтем, что операторы $U^{(\pm)}_{\mathbf{q}}(\mathbf{r})$ коммутируют с оператором координаты $\mathbf{r}$.

В четвертом порядке по взаимодействию электрона со светом и колебаниями решетки имеем

$$\rho^{(4)}_{n'n}(\mathbf{k})=\frac{1}{E_{nn'}(\mathbf{k})}\sum_{lm\mathbf{q}}\sum_{s,s'=\pm}\left\{\frac{V_{n'm}(\mathbf{k})\left[U^{(-s')}_{m\mathbf{k},l\mathbf{k}_+}\rho^{(2,ss')}_{l\mathbf{k}_+,n\mathbf{k}}-\rho^{(2,ss')}_{m\mathbf{k},l\mathbf{k}_-}U^{(-s')}_{l\mathbf{k}_-,n\mathbf{k}}\right]}{E_{nm}(\mathbf{k})+s\hbar\omega}-\right.$$
$$\left.-\frac{\left[U^{(-s')}_{n'\mathbf{k},l\mathbf{k}_+}\rho^{(2,ss')}_{l\mathbf{k}_+,m\mathbf{k}}-\rho^{(2,ss')}_{n'\mathbf{k},l\mathbf{k}_-}U^{(-s')}_{l\mathbf{k}_-,m\mathbf{k}}\right]V_{mn}(\mathbf{k})}{E_{mn'}(\mathbf{k})+s\hbar\omega}\right\}+\left\{V\leftrightarrow U^{(-s')},\ s\hbar\omega\to s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}\right\},\quad(35)$$

где $\mathbf{k}_\pm=\mathbf{k}\pm s'\mathbf{q}$. При расчете матрицы плотности второго порядка учитываются однократные взаимодействия со светом и колебаниями решетки и сохраняется только $\delta$-функциональный вклад, получаемый с использованием тождества (16):

$$\rho^{(2,ss')}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}=-i\pi\delta(E_{n'\mathbf{k}'}-E_{n\mathbf{k}}-s\hbar\omega-s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}})\times \times M^{(ss')}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}\delta_{\mathbf{k}',\mathbf{k}+s'\mathbf{q}}\times \times\left[f_{n\mathbf{k}}(1-f_{n'\mathbf{k}'})\left(N_{\nu\mathbf{q}}+\frac{1-s'}{2}\right)-\right. \left.-f_{n'\mathbf{k}'}(1-f_{n\mathbf{k}})\left(N_{\nu\mathbf{q}}+\frac{1+s'}{2}\right)\right].\quad(36)$$

Здесь $N_{\nu\mathbf{q}}$ — числа заполнения фононов, величины в круглых скобках описывают зависимости вероятности поглощения или испускания фононов от этих чисел, а составной матричный элемент $M^{(ss')}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$ получается из (30) заменой $n\mathbf{k}'\to n'\mathbf{k}'$. В (35) два последних слагаемых показаны символически, они получаются из первых двух заменой матричных элементов операторов $\hat{V}$ и $\hat{U}$ друг на друга и заменой энергетических знаменателей

$$E_{nm}(\mathbf{k})+s\hbar\omega\to E_{n\mathbf{k}}-E_{m\mathbf{k}_+}+s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}},$$

$$E_{mn'}(\mathbf{k})+s\hbar\omega\to E_{m\mathbf{k}_-}-E_{n'\mathbf{k}}+s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}.$$

Подставляя (35) в сумму (1) получим после ряда эквивалентных преобразований

$$\mathbf{j}=\frac{ie}{\hbar}\sum_{lm\mathbf{qk}}\sum_{s,s'=\pm}\rho^{(2,ss')}_{l\mathbf{k},m\mathbf{k}'}\times \times\sum_n\left\{\frac{[\mathbf{r},\hat{V}]'_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}'}U^{(-s')}_{n\mathbf{k}',l\mathbf{k}}}{E_{mn}(\mathbf{k}')+s\hbar\omega}-\frac{U^{(-s')}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}[\mathbf{r},\hat{V}]'_{n\mathbf{k},l\mathbf{k}}}{E_{nl}(\mathbf{k})+s\hbar\omega}+\right. +\frac{[\mathbf{r},\hat{U}^{(-s')}_{\mathbf{q}}]'_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}V_{nl}(\mathbf{k})}{E_{m\mathbf{k}'}-E_{n\mathbf{k}}+s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}}- \left.-\frac{V_{mn}(\mathbf{k}')[\mathbf{r},\hat{U}^{(-s')}_{\mathbf{q}}]'_{n\mathbf{k}',l\mathbf{k}}}{E_{n\mathbf{k}'}-E_{l\mathbf{k}}+s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}}\right\},\quad(37)$$

где $\mathbf{k}'=\mathbf{k}-s'\mathbf{q}$, а неполный коммутатор

$$[\mathbf{r},U^{(s')}_{\mathbf{q}}]'_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}=\sum_{n'\neq m}\mathbf{r}_{mn'}(\mathbf{k}')U^{(s')}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}- -\sum_{n'\neq n}U^{(s')}_{m\mathbf{k}',n'\mathbf{k}}\mathbf{r}_{n'n}(\mathbf{k}).$$

Процедуру по выводу формулы (24) из (21) нужно обобщить с учетом изменения волнового вектора электрона при рассеянии на фононе. Мы проиллюстрируем обобщение на примере числителя в третьем слагаемом под знаком суммы в (37), представив этот числитель в эквивалентной форме

$$\sum_{\mathbf{k}''}[\mathbf{r}, U_{\mathbf{q}}^{(-s')}]'_{m,\mathbf{k}-s'\mathbf{q};n\mathbf{k}''}V_{nl}(\mathbf{k}'') =$$
$$= \sum_{\mathbf{k}''}\Big\{[\mathbf{r}, U_{\mathbf{q}}^{(-s')}]_{m,\mathbf{k}-s'\mathbf{q};n\mathbf{k}''}V_{nl}(\mathbf{k}'') -$$
$$- \mathbf{r}_{m,\mathbf{k}-s'\mathbf{q};m,\mathbf{k}''-s'\mathbf{q}}U^{(-s')}_{m,\mathbf{k}''-s'\mathbf{q};n\mathbf{k}''}V_{nl}(\mathbf{k}'') +$$
$$+ U^{(-s')}_{m,\mathbf{k}-s'\mathbf{q};n\mathbf{k}}\mathbf{r}_{n\mathbf{k};n\mathbf{k}''}V_{nl}(\mathbf{k}'')\Big\},$$

где волновой вектор фонона $\mathbf{q}$ записан в явном виде. Как уже отмечалось, полный коммутатор $[\mathbf{r}, U_{\mathbf{q}}^{(-s')}]$ равен нулю, а два вклада от коммутатора $[\mathbf{r}, \hat{V}]$ взаимно сокращаются. Из восьми оставшихся слагаемых под знаком суммы (37) четыре сокращаются, а остальные можно представить в виде

$$-\sum_{\mathbf{k}''}\Bigg[\frac{\mathbf{r}_{m\mathbf{k}',m\tilde{\mathbf{k}}}V_{mn}(\tilde{\mathbf{k}})U^{(-s')}_{n\tilde{\mathbf{k}},l\mathbf{k}''}}{E_{mn}(\mathbf{k}') + s\hbar\omega} +$$
$$+ \frac{U^{(-s')}_{m\mathbf{k}',n\mathbf{k}}V_{nl}(\mathbf{k})\mathbf{r}_{l\mathbf{k},l\mathbf{k}''}}{E_{nl}(\mathbf{k}) + s\hbar\omega} +$$
$$+ \frac{\mathbf{r}_{m\mathbf{k}',m\tilde{\mathbf{k}}}U^{(-s')}_{m\tilde{\mathbf{k}},n\mathbf{k}''}V_{nl}(\mathbf{k}'')}{E_{m\mathbf{k}'} - E_{n\mathbf{k}} + s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}} + \frac{V_{mn}(\mathbf{k}')U^{(-s')}_{m\mathbf{k}',l\mathbf{k}}\mathbf{r}_{l\mathbf{k},l\mathbf{k}''}}{E_{n\mathbf{k}'} - E_{l\mathbf{k}} + s'\hbar\omega_{\nu\mathbf{q}}}\Bigg],$$

где $\tilde{\mathbf{k}} = \mathbf{k}'' - s'\mathbf{q}$. Используя выражение (22) для матричных элементов оператора координаты, проводя суммирование по $\mathbf{k}''$ с учетом тождества

$$\nabla_{\mathbf{k}'}F(\mathbf{k}' + s'\mathbf{q}, \mathbf{k}') = (\nabla_{\mathbf{k}'} + \nabla_{\mathbf{k}})F(\mathbf{k}', \mathbf{k})$$

и представляя фототок в виде суммы (2), действительно получаем формулу (29).

## 4. МОДЕЛЬНЫЕ ПРИМЕРЫ

Мы проиллюстрируем применение формул (8) для двухфотонных сдвигов в модели зонной структуры полупроводника симметрии $\mathrm{T}_d$ с валентной зоной $\Gamma_{15}^v$, нижней зоной проводимости $\Gamma_1$ и верхней зоной проводимости $\Gamma_{15}^c$, которые мы кратко будем обозначать соответственно символами $v$, $c$ и $c'$. Параметрами этой модели являются ширина запрещенной зоны $E_g$, энергетическое расстояние $E'$ между зонами $c'$ и $v$ и межзонные матричные элементы

$$P = -i\langle S|\hat{p}_z|Z\rangle, \quad Q = -i\langle X'|\hat{p}_y|Z\rangle,$$

$$P' = -i\langle S|\hat{p}_z|Z'\rangle.$$

Здесь $\hat{p}_\alpha = -i\hbar\nabla_\alpha$ — компоненты оператора импульса ($\alpha = x, y, z$), $S$ — блоховская функция электрона при $\mathbf{k} = 0$ (Г-точка) в зоне проводимости $c$, а три блоховские функции, преобразующиеся по представлению $\Gamma_{15}$, обозначены в виде $X, Y, Z$ в зоне $v$ и $X', Y', Z'$ в зоне $c'$. В модели зонной структуры, в которой $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ смешивание зон $c$ и $v$ учитывается точно, а смешивание с зоной $c'$ — во втором порядке теории возмущений, недиагональные матричные элементы эффективного гамильтониана размерности $4\times 4$ (спин не учитывается) имеют вид

$$H_{c,v_\alpha}(\mathbf{k}) \equiv \langle S\mathbf{k}|H|R_\alpha\mathbf{k}\rangle =$$
$$= i\frac{\hbar}{m_0}\left(Pk_\alpha + i\frac{\hbar}{m_0}\frac{2QP'}{\bar{E}}k_{\alpha+1}k_{\alpha+2}\right),$$

где $R_\alpha = X, Y, Z$ при $\alpha = x, y, z$, $\bar{E}^{-1} = E'^{-1} + (E' - E_g)^{-1} \approx 2E'^{-1}$ и в обозначении $\alpha + 1$ предполагается циклическая перестановка индексов.

Мы не будем приводить здесь точных формул и, не вдаваясь в детали сложной энергетической дисперсии в зоне $v$, ограничимся оценками. Для элементарного сдвига при прямых однофотонных переходах справедлива оценка

$$R_{cv}^{(1)} \sim \frac{\hbar}{m_0}\frac{QP'}{P\bar{E}}. \tag{38}$$

При ее получении предполагалось, что произведение $R_{cv}^{(1)}k$ мало по сравнению с единицей.

Вклад в двухфотонные межзонные процессы вносят переходы разрешенно-разрешенного типа (allowed-allowed, aa) с виртуальными состояниями в зоне $c'$ и переходы разрешенно-запрещенного типа (allowed-forbidden, af) с виртуальными состояниями в зонах $c$ и $v$ (см., например, рис. 1 в работе [14]). Матричные элементы обоих типов можно оценить соответственно как

$$M^{aa} \sim \left(\frac{eA}{cm_0}\right)^2\frac{QP'}{\bar{E}}, \quad M^{af} \sim \left(\frac{eA}{cm_0}\right)^2 i\frac{m_0}{m^*}\frac{P\hbar k}{\hbar\omega},$$

где $m^*$ — эффективная масса электронов в зоне проводимости $c$, $A$ — амплитуда векторного потенциала, см. (11). При двухфотонном возбуждении очень близко к краю поглощения, когда $\hbar\omega \approx E_g/2$ и $k \approx 0$, основной вклад вносят переходы разрешенно-разрешенного типа, однако уже при сравнительно небольшом избытке энергии $2\hbar\omega - E_g$ преобладающую роль начинают играть переходы второго типа. По этой же причине в спектре двухфотонного поглощения наблюдаются пики возбуждения $p$-экситонов, а $s$-экситонные резонансы не видны, тогда как при однофотонном поглощении проявляются только $s$-экситоны [14]. При двухфотонном поглощении в условиях, когда $|M^{aa}| \ll |M^{af}|$, для элементарного сдвига электрона в $\mathbf{r}$-пространстве получаем

$$R_{cv}^{(2)}(\mathbf{k}) \sim \frac{QP'}{\bar{E}} \left( \frac{m_0 P \hbar k^2}{m^* \hbar\omega} \right)^{-1} \sim \frac{\hbar\omega}{2\hbar\omega - E_g} R_{cv}^{(1)}.$$

Фототоки при двухфотонном поглощении на частоте $\omega$ и однофотонном поглощении на удвоенной частоте $2\omega$ определяются формулами

$$j^{(2)} \sim eR_{cv}^{(2)} W^{(2)}(\omega), \quad j^{(1)} \sim eR_{cv}^{(1)} W^{(1)}(2\omega), \qquad (39)$$

где $W^{(2)}(\omega) \propto I^2(\omega)$ и $W^{(1)}(2\omega) \propto I(2\omega)$ — вероятности двух- и однофотонного поглощения в единицу времени в единице объема, $I$ — интенсивность света, пропорциональная $A^2$. Заметим, что в данной статье обсуждается сдвиговый, или недиагональный вклад в фототок. Тот же порядок имеет баллистический, или диагональный вклад. Для его расчета, как и в случае однофотонных межзонных переходов [2], необходимо учесть процессы непрямого двухфотонного поглощения и в одном из составных матричных элементов воспользоваться тождеством (16). При этом в выражении для вероятности оптического перехода в единицу времени появится малость $\hbar/\tau_p\varepsilon \ll 1$, где $\tau_p$ — время релаксации фотоэлектрона по квазиимпульсу, $\varepsilon$ — кинетическая энергия электрона, по порядку величины равная $2\hbar\omega - E_g$. Эта малость компенсируется в баллистическом токе умножением на время $\tau_p$ нечетной по $\mathbf{k}$ составляющей скорости оптической генерации фотоэлектронов. Поэтому оценка (39) применима и для полного фототока.

Так как вклад в фототоки (39) определяется произведением сдвига на вероятность поглощения, малая величина вероятности двухфотонного поглощения $W^{(2)}(\omega)$ в значительной мере компенсируется большим значением $R_{cv}^{(2)}$ (по сравнению с $R_{cv}^{(1)}$), и для отношения токов получаем

$$\frac{j^{(2)}(\omega)}{j^{(1)}(2\omega)} \sim \frac{R_{cv}^{(2)}}{R_{cv}^{(1)}} \frac{W^{(2)}(\omega)}{W^{(1)}(2\omega)} \sim \sim \frac{1}{m^* E_g} \left( \frac{eA}{c} \right)^2 = \frac{e^2}{\hbar c} \frac{\pi I}{n m^* \omega^3}, \qquad (40)$$

где $n$ — показатель преломления света. Таким образом, отношение (40) превышает отношение вероятностей поглощения в $\hbar\omega/(2\hbar\omega - E_g)$ раз, и при достаточно большой интенсивности света фототоки могут иметь один порядок величины.

При линейно-поляризованном оптическом возбуждении одно- и двухфотонные токи описываются феноменологически тензорами третьего и пятого порядков:

$$j_\alpha^{(1)} = \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(1)} E_\beta E_\gamma, \quad j_\alpha^{(2)} = \chi_{\alpha\beta\gamma\delta\epsilon}^{(2)} E_\beta E_\gamma E_\delta E_\epsilon.$$

Тензор $\boldsymbol{\chi}^{(1)}$ симметричен к перестановкам двух последних индексов, а тензор $\boldsymbol{\chi}^{(2)}$ — к перестановке четырех индексов, от второго до четвертого. С ростом порядка $n$ тензора $\boldsymbol{\chi}^{(n)}$ число его линейно независимых компонент возрастает. В частности, в кубических кристаллах симметрии $\mathrm{T}_d$ тензоры $\boldsymbol{\chi}^{(1)}$ и $\boldsymbol{\chi}^{(2)}$ имеют соответственно одну и две линейно независимых компоненты:

$$j_\alpha^{(1)} = \chi^{(1)} E_{\alpha+1} E_{\alpha+2},$$

$$j_\alpha^{(2)} = \chi_1^{(2)} E_{\alpha+1} E_{\alpha+2} |\mathbf{E}|^2 + \chi_2^{(2)} E_x E_y E_z E_\alpha,$$

где $\alpha = x, y, z$ — кристаллографические оси [100], [010] и [001] и предполагается циклическая перестановка индексов. Различие в поляризационных зависимостях фототоков $\mathbf{j}^{(1)}$ и $\mathbf{j}^{(2)}$ наиболее сильно проявляется при распространении света вдоль оси $z' \parallel [111]$. Для поперечных компонент фототока, индуцированных в направлениях $x' \parallel [11\bar{2}]$ и $y' \parallel [\bar{1}10]$, имеем

$$j_{x'}^{(1)} = \chi^{(1)} (E_{y'}^2 - E_{x'}^2), \quad j_{y'}^{(1)} = \chi^{(1)} 2E_{x'} E_{y'},$$

$$j_{x'}^{(2)} = \chi_1^{(2)} (E_{y'}^2 - E_{x'}^2) |\mathbf{E}|^2 + \chi_2^{(2)} E_{x'} E_x E_y E_z,$$

$$j_{y'}^{(2)} = \chi_1^{(2)} 2E_{x'} E_{y'} |\mathbf{E}|^2 + \chi_2^{(2)} E_{y'} E_x E_y E_z,$$

где $E_x E_y E_z = (3\sqrt{6})^{-1} E_{x'} (3E_{y'}^2 - E_{x'}^2)$. Вклад в фототок $j_{x'}^{(2)}$, пропорциональный коэффициенту $\chi_2^{(2)}$, выделяется в геометрии, в которой свет поляризован под углом $\pm 45^\circ$ к оси $x'$.

При непрямом (типа Друде) поглощении света в квантовых ямах с носителями в первой подзоне размерного квантования непрямой переход идет через виртуальное состояние во 2-й подзоне, так что составной матричный элемент имеет вид:

$$M_{1\mathbf{k}',1\mathbf{k}}^{(+)} = U_{1\mathbf{k}',1\mathbf{k}} \left[ \frac{V_{11}(\mathbf{k})}{\hbar\omega} + \frac{V_{11}(\mathbf{k}')}{E_{1\mathbf{k}} - E_{1\mathbf{k}'}} \right] + + \frac{U_{1\mathbf{k}',2\mathbf{k}} V_{21}(\mathbf{k})}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}} + \hbar\omega} + \frac{V_{12}(\mathbf{k}') U_{2\mathbf{k}',1\mathbf{k}}}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}'}},$$

где

$$V_{11}(\mathbf{k}) = -\frac{e}{c\hbar} \mathbf{A} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} E_{1\mathbf{k}}.$$

Учитывая энергетический спектр электрона в первой подзоне в параболическом приближении, пренебрегая зависимостью межподзонного матричного элемента $V_{21}$ от $\mathbf{k}$ и считая, что матричные элементы рассеяния на дефекте зависят только от $\mathbf{q} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$, получим, что элементарный сдвиг при непрямом переходе равен нулю. Действительно, в рассматриваемом приближении числители третьего и четвертого слагаемых зависят только от разности $\mathbf{k}' - \mathbf{k}$ и при дифференцировании $\nabla_{\mathbf{k}} + \nabla_{\mathbf{k}'}$ обращаются в нуль, а выражение в квадратных скобках с учетом закона сохранения $E_{1\mathbf{k}'} - E_{1\mathbf{k}} = \hbar\omega$ пропорционально разности компонент волновых векторов $\mathbf{k}'$ и $\mathbf{k}$ и также исчезает при операции $\nabla_{\mathbf{k}} + \nabla_{\mathbf{k}'}$. Сдвиговый вклад в фототок появляется только при снятии хотя бы одного из трех условий. В работе [15] в составном матричном элементе непрямого перехода проводилось дифференцирование не только числителей, но и знаменателей. В результате для элементарного сдвига было ошибочно получено ненулевое значение даже при выполнении указанных выше трех условий.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в работе построена последовательная теория сдвигового, или недиагонального фототока, возникающего при двухквантовых переходах через виртуальные состояния. Методом разложения электронной матрицы плотности до четвертого порядка по взаимодействию включительно выведены формулы для элементарных сдвигов блоховских электронов при прямых двухфотонных и непрямых однофотонных процессах. Эти формулы, см. (8), (27), (29) и (31), можно было вывести нестрого, используя следующие физические соображения: а) как и при одноквантовых процессах, при двухквантовых переходах из состояния $(n\mathbf{k})$ в состояние $(n'\mathbf{k}')$ блоховский электрон совершает скачок в реальном пространстве на некоторый микроскопический вектор $\mathbf{R}_{n'\mathbf{k}',n\mathbf{k}}$, б) этот скачок выражается через составной матричный элемент двухквантового процесса, в котором некоторые входящие в него величины нужно продифференцировать по волновым векторам электрона $\mathbf{k}$ и $\mathbf{k}'$, в) скачки при прямом и обратном переходах должны различаться знаком, и наконец, г) в выражениях для скачков при одно- и двухквантовых переходах должна быть преемственность. В любом случае полученные аналитические формулы удовлетворяют указанным соображениям. Предсказана генерация заметного фототока $j^{(2)}$ при двухфотонном поглощении света в полупроводниках без центра инверсии, так как в выражении для $j^{(2)}$ отсутствует малый параметр $(2\hbar\omega - E_g)/E_g$. Проанализирована поляризационная зависимость тока $j^{(2)}$ в кристаллах симметрии тетраэдра.

Авторы благодарны С. А. Тарасенко за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, фонда «Династия»–МЦФФМ и в рамках программ РАН.

## ЛИТЕРАТУРА

1. В. И. Белиничер, Е. Л. Ивченко, Б. И. Стурман, ЖЭТФ **83**, 649 (1982).
2. Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус, Р. Я. Расулов, ФТТ **26**, 3362 (1984).
3. Е. Л. Ивченко, Ю. Б. Лянда-Геллер, Г. Е. Пикус, Р. Я. Расулов, ФТП **18**, 93 (1984).
4. J. M. Luttinger, Phys. Rev. **112**, 739 (1958).
5. N. A. Sinitsyn, Q. Niu, and A. H. MacDonald, Phys. Rev. B **73**, 075318 (2006).
6. N. A. Sinitsyn, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 023201 (2008).
7. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Статистическая физика*, ч. 2, *Теория конденсированного состояния*, Наука, Москва (1978).
8. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Наука, Москва (1974).
9. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Релятивистская квантовая теория*, ч. I, Наука, Москва (1968).
10. A. Najmaie, R. D. R. Bhat, and J. E. Sipe, Phys. Rev. B **68**, 165348 (2003).
11. D. J. Moss, E. Ghahramani, J. E. Sipe, and H. M. van Driel, Phys. Rev. B **41**, 1542 (1990).
12. R. Karplus, and J. M. Luttinger, Phys. Rev. **95**, 1154 (1954).
13. R. D. R. Bhat, P. Nemec, Y. Kerachian, H. M. van Driel, J. E. Sipe, and A. L. Smirl, Phys. Rev. B **71**, 035209 (2005).
14. K. Tai, A. Myzyrowics, R. J. Fischer, R. E. Sluscher, and A. Y. Cho, Phys. Rev. Lett. **62**, 1784 (1989).
15. W. Weber, L. E. Golub, S. N. Danilov et al., Phys. Rev. B **77**, 245304 (2008).