§ 4. Коэффициенты поглощения и излучения при оптических переходах зона — зона

Для вычисления коэффициента поглощения, связанного с междузонными переходами, удобно исходить из соотношения (3.7). Среднюю энергию, выделяемую в единицу времени в единице объема образца, следует вычислять квантовомеханическим путем. Для этого надо прежде всего вычислить отнесенную к единице времени вероятность $W(\lambda, \lambda')$ междузонного перехода, связанного с поглощением фотона. В отсутствие внешних электрического и магнитного полей квантовые числа λ, λ' здесь представляют собой совокупности номеров зон l, l' и квазиимпульсов $\mathbf{p}$, $\mathbf{p}'$ электрона в начальном и конечном состояниях:

$$\lambda = \{l, \mathbf{p}\}, \qquad \lambda' = \{l', \mathbf{p}'\}.$$

Умножив $W(\lambda, \lambda')$ на энергию фотона $\hbar\omega$ и поделив на объем образца V, мы найдем среднюю энергию, поглощаемую в единицу времени в единице объема образца. Далее ее следует просуммировать по всем конечным состояниям, допускаемым принципом Паули, и усреднить по начальным состояниям с учетом вероятности их заполнения электронами. Таким образом,

$$Q_{\text{погл}} = \frac{1}{V} \sum_{\lambda, \lambda'} W(\lambda, \lambda') f(\lambda) [1 - f(\lambda')] \hbar\omega. \tag{4.1}$$

Здесь $f(\lambda)$ есть функция распределения электронов.

В первом неисчезающем приближении вероятность $W(\lambda, \lambda')$ дается выражениями (XIV.2.15), (XIV.2.16), (XIV.2.10). При этом функции ψ_λ, $\psi^*_{\lambda'}$ суть обычные функции Блоха, а в качестве H' надо взять оператор энергии взаимодействия электрона с электромагнитным полем. Этот оператор легко найти, записав уравнение Шредингера в присутствии электромагнитного поля. Мы имеем

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \frac{1}{2m_0} \left(-i\hbar \nabla + \frac{e}{c} \mathcal{A} \right)^2 \Psi - e\varphi\Psi + \beta g (\sigma, \mathfrak{B}) \Psi. \tag{4.2}$$

Здесь $\mathcal{A}$ и φ — скалярный и векторный потенциалы, связанные с напряженностью электрического поля $\mathfrak{E}$ и магнитной индукцией $\mathfrak{B}$ соотношениями

$$\mathfrak{E} = -\nabla\varphi - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial t}, \qquad \mathfrak{B} = \operatorname{rot} \mathcal{A}. \tag{4.3}$$

Как известно из электродинамики, потенциалы $\mathcal{A}$ и φ можно выбирать любым способом, лишь бы удовлетворялись равенства (4.3). В частности, для поперечной электромагнитной волны скалярный потенциал можно положить равным нулю, подчинив векторный условию

$$\operatorname{div} \mathcal{A} = 0. \tag{4.4}$$

При этом слагаемое $-e\varphi\Psi$ в (4.2) описывает только взаимодействие заряженной частицы со статическими полями (в том числе с периодическим полем идеальной решетки), а само уравнение можно переписать в виде

$$i\hbar\frac{\partial\Psi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m_0}\nabla^2\Psi - e\varphi\Psi - \frac{ie\hbar}{m_0 c}(\mathcal{A}\cdot\nabla\Psi) + \frac{e^2}{2m_0c^2}\mathcal{A}^2\Psi + \beta g(\sigma, \mathfrak{B})\Psi. \tag{4.2'}$$

Последние три слагаемых в правой части (4.2′) описывают искомую энергию взаимодействия заряженной частицы с электромагнитным полем. При исследовании структуры зон оптическими методами чаще всего используются сравнительно слабые сигналы: амплитуда напряженности электрического поля волны очень мала по сравнению с напряженностью внутрикристаллического поля. Тогда слагаемым, квадратичным по вектор-потенциалу, можно пренебречь, и оператор энергии взаимодействия электрона с электромагнитным полем принимает вид

$$H' = -\frac{ie\hbar}{m_0 c}(\mathcal{A}, \nabla) + \beta g(\sigma, \mathfrak{B}). \tag{4.5}$$

Подчеркнем, что здесь фигурирует масса свободного электрона. Ни метод эффективной массы, ни какие-либо предположения о виде законов дисперсии носителей заряда никак не использовались при выводе формулы (4.5). Второе слагаемое в (4.5) обусловливает возможность поглощения электромагнитных волн с изменением ориентации спина электрона. Однако вероятность таких электронных переходов зачастую невелика по сравнению с вероятностью переходов, при которых спин сохраняется. В дальнейшем мы будем рассматривать только переходы с сохранением ориентации спина; при этом играет роль только первое слагаемое в (4.5), а второе можно опустить.

Рассматривая монохроматическую волну, можем положить, с учетом (4.3),

$$\mathcal{A} = -\frac{ic}{\omega}\xi\mathcal{E}_m e^{ikx - i\omega t}. \tag{4.6}$$

Соответственно

$$H' = \frac{e\hbar}{m_0\omega}e^{ikx - i\omega t}\mathcal{E}_m(\xi, \nabla). \tag{4.5'}$$

Амплитуда $\mathcal{E}_m$ рассматривается здесь как классическая величина, а не как оператор.

Таким образом, в первом неисчезающем приближении вероятность перехода $W_{\lambda\lambda'}$, фигурирующая в формуле (4.1), дается выражением

$$W(\lambda, \lambda') = \frac{2\pi e^2\hbar}{m_0^2\omega^2}\mathcal{E}_m^2\,|(\xi, \mathbf{J}_{\lambda\lambda'})|^2\,\delta(E_{\lambda'} - E_\lambda - \hbar\omega). \tag{4.7}$$

Здесь

$$\mathbf{J}_{\lambda\lambda'} = \int \psi_{\lambda'}^{*} e^{ikx} \cdot \nabla \psi_{\lambda} \, d\mathbf{r}. \tag{4.8}$$

Подставляя выражение (4.7) в правую часть (4.1) и сравнивая результат с формулой (3.7), находим вещественную часть электропроводности на частоте ω:

$$\sigma_1 = \frac{4\pi e^2 \hbar^2}{V m_0^2 \omega} \sum_{\lambda, \lambda'} |(\xi, \mathbf{J}_{\lambda\lambda'})|^2 \, \delta(E_{\lambda'} - E_{\lambda} - \hbar\omega) f(E_{\lambda}) [1 - f(E_{\lambda'})]. \tag{4.9}$$

Заметим, что выражение (4.9) имеет меньшую область применимости, нежели (4.1): оно получено в пренебрежении взаимодействием носителя заряда с любыми неидеальностями решетки. В противном случае в качестве H' следовало бы взять сумму выражения (4.5′) и операторов, описывающих названное взаимодействие (гл. XIV).

Одна черта формулы (4.9) имеет, однако, общее значение. Именно, в правой части (4.9) стоит сумма выражений, относящихся к переходам между различными энергетическими зонами. Разность энергий $E(\lambda') - E(\lambda)$ определяется энергией фотона $\hbar\omega$. Последняя чаще всего такова, что пара зон l' и l выделяется однозначно: играют роль только переходы между зонами с данными фиксированными значениями l и l'. Это позволяет ограничиться исследованием лишь одного члена суммы.

Наряду с процессами поглощения фотонов (электронными переходами из более низкого энергетического состояния λ в более высокое λ'), происходят и обратные переходы $\lambda' \to \lambda$, сопровождающиеся излучением фотонов. При этом следует различать два типа таких процессов: самопроизвольные, или спонтанные, переходы и вынужденные переходы, возникающие под воздействием уже имеющегося в образце электромагнитного поля. Необходимость существования вынужденных переходов была впервые указана Эйнштейном в 1917 г. в связи с анализом законов теплового излучения. Энергия, излучаемая в результате вынужденных переходов (в единицу времени и в единице объема), выражается формулой

$$Q_{\text{вын}} = \frac{1}{V} \sum_{\lambda', \lambda} W(\lambda, \lambda') f(\lambda') (1 - f(\lambda)) \hbar\omega, \tag{4.10}$$

которая получается из (4.1), если поменять местами индексы λ и λ'. Учитывая выражение (4.7) для $W(\lambda, \lambda')$ и формулу (4.8), можно убедиться, что

$$W(\lambda, \lambda') = W(\lambda', \lambda). \tag{4.11}$$

Таким образом, вероятности элементарного акта поглощения фотона и обратного ему вынужденного излучения одинаковы.

Из формулы (4.7) также видно, что вероятность вынужденного излучения, так же как и поглощения, пропорциональна $\mathcal{E}_m^2$, т. е., согласно формуле (3.8), пропорциональна концентрации фотонов в образце.

Для спонтанного излучения, аналогично формуле (4.10), можно написать

$$Q_{\text{сп}} = \frac{1}{V} \sum_{\lambda', \lambda} a_{\lambda'\lambda} f(\lambda')(1 - f(\lambda))\, \hbar\omega. \tag{4.12}$$

Здесь $a_{\lambda'\lambda}$ — вероятность элементарного акта спонтанного перехода, которая, в отличие от $W(\lambda', \lambda)$, не зависит от концентрации уже имеющихся фотонов.

Рассмотрим, как влияет вынужденное излучение на измеряемый коэффициент поглощения света. Если бы имело место только излучение света, то, продолжая пользоваться формулой (3.7), мы должны были бы считать $\sigma_1 < 0$ и, соответственно, $\gamma < 0$. Фактически наблюдаемый на опыте коэффициент поглощения определяется разностью поглощаемого и испускаемого света. С учетом (1.21′) мы получаем

$$\gamma = \frac{(4\pi e\hbar)^2}{V m_0^2 \omega c \varepsilon_1^{1/2}} \sum_{\lambda, \lambda'} |(\xi, \mathbf{J}_{\lambda\lambda'})|^2 (f(\lambda) - f(\lambda'))\, \delta(E_{\lambda'} - E_\lambda - \hbar\omega). \tag{4.13}$$

Если равновесие в электронном газе нарушается только за счет поглощения света, то функции $f(\lambda)$ и $f(\lambda')$ можно заменить равновесными функциями Ферми

$$f_0(\lambda) = \frac{1}{\exp\dfrac{E_\lambda - F}{kT} + 1}, \qquad f_0(\lambda') = \frac{1}{\exp\dfrac{E_{\lambda'} - F}{kT} + 1}. \tag{4.14}$$

Разность $f_0(\lambda) - f_0(\lambda')$ при этом положительна, так как $E_{\lambda'} = E_\lambda + \hbar\omega > E_\lambda$. Следовательно, $\gamma > 0$, т. е. имеет место результирующее поглощение света.

Найдем теперь величину коэффициента спонтанного излучения $a_{\lambda'\lambda}$. Для этого рассмотрим образец в условиях термодинамического равновесия. Так как в этом случае энергия электромагнитного поля не изменяется, то

$$Q_{\text{погл}} - Q_{\text{вын}} - Q_{\text{сп}} = 0. \tag{4.15}$$

Более того, согласно принципу детального равновесия это равенство должно выполняться по отдельности для каждой пары состояний λ, λ'. Рассмотрим две группы состояний с энергиями $E_{\lambda'}$ и, соответственно, E_λ, заключенные в узком интервале энергий ΔE. При этом $E_{\lambda'} - E_\lambda = \hbar\omega$, $\Delta E = \Delta(\hbar\omega)$. Учтем, далее, что для равновесных функций Ферми (4.14)

$$f_0(\lambda)(1 - f_0(\lambda')) = f_0(\lambda')(1 - f_0(\lambda)) \exp(\hbar\omega/kT). \tag{4.16}$$

Тогда, подставляя в условие (4.15) выражения (4.1), (4.10), (4.12) и учитывая (4.11), находим

$$a_{\lambda\lambda'} = W(\lambda, \lambda')\left[\exp(\hbar\omega/kT) - 1\right]. \tag{4.17}$$

Воспользуемся для $W(\lambda, \lambda')$ формулой (4.7), выражая в ней $\mathcal{E}_m^2$ через концентрацию фотонов $\rho(\hbar\omega)$ по формуле (3.8). Учитывая еще, что в равновесии $\rho_0(\hbar\omega)$ дается формулой Планка

$$\rho_0(\hbar\omega) = \frac{\omega^2 \varepsilon_1^{1/2}}{\pi^2 \hbar c^3} \frac{1}{\exp(\hbar\omega/kT) - 1} \tag{4.18}$$

(в которой мы заменили показатель преломления n на $\varepsilon_1^{1/2}$), получаем

$$a_{\lambda'\lambda} = \frac{16 e^2 \hbar\omega \varepsilon_1^{1/2}}{m_0^2 c^3} \left|(\xi, \mathbf{J}_{\lambda\lambda'})\right|^2 \delta(E_{\lambda'} - E_\lambda - \hbar\omega)\,\Delta(\hbar\omega). \tag{4.19}$$

Не завися от вида функций распределения, эта формула остается в силе и в любых неравновесных условиях. Из формулы (4.19) видно, что $a_{\lambda'\lambda}$ не зависит от концентрации фотонов, имеющихся в образце, чего и следовало ожидать для спонтанных переходов.

Полученные результаты позволяют также найти отношение энергий, излучаемых при спонтанных и вынужденных переходах. Из формул (4.10) и (4.12) следует, что при данном переходе

$$\frac{Q_{\text{сп}}}{Q_{\text{вын}}} = \frac{a_{\lambda'\lambda}}{W(\lambda, \lambda')}.$$

Пользуясь теперь формулами (4.17) и (4.18), находим

$$\frac{Q_{\text{сп}}}{Q_{\text{вын}}} = \frac{\omega^2 \varepsilon_1^{1/2}}{\pi^2 c^3 \hbar} \frac{1}{\rho(\hbar\omega)}. \tag{4.20}$$

Таким образом, относительная роль обоих процессов зависит от концентрации фотонов данной частоты, т. е. от интенсивности активного излучения и от ширины его спектра. С помощью количественных оценок можно убедиться, что в обычных лабораторных источниках сплошного спектра (например, лампах накаливания) спонтанное излучение гораздо важнее вынужденного. Напротив, в оптических квантовых генераторах (лазерах, § 6), мощность которых огромна, а спектральный интервал очень узок, $\rho(\hbar\omega)$ очень велика и вынужденное излучение играет основную роль.

§ 5. Прямые и непрямые переходы

Рассмотрим поглощение света в идеальной решетке, связанное с переходами между валентной зоной и зоной проводимости. Для этой цели можно воспользоваться формулой (4.13), взяв в ней слагаемые с $l = c$ и $l' = v$. При этом матричный элемент, фигурирую-