

关于半导体吸收边附近的 三阶非线性光学常数

甘子钊 杨国桢

(北京大学物理系) (中国科学院物理研究所)

1981 年 5 月 25 日收到

提 要

本文分析了半导体在吸收边附近, 由于带间跃迁的饱和效应而产生的三阶非线性光学效应, 并给出了 InSb 中反常大的三阶非线性光学常数.

Miller 和他的合作者^[1,2]观察到了 InSb 在吸收边附近的反常大的三阶非线性光学现象, 这现象引起了人们广泛的兴趣. 他们已指出^[2], 此现象主要是带间跃迁的饱和效应引起的. 但是, 关于这个问题的更加严格和具体的理论分析是必要的.

我们在以前的工作中^[4,5]发展了一个光在半导体中相干传播的理论. 按照这个理论, 半导体带间光跃迁可以类比于一个非均匀展宽的二能级系统能级间的光跃迁, 从而可以直接得到饱和效应产生的三阶非线性光学效应. 在本文中我们将扼要地叙述这一结果.

考虑一束单色平面光波通过半导体, 光波的矢量势为 $\mathbf{A} = \mathbf{A}_0 \sin(\omega t - \phi)$. 为简单起见, 假定和这束光起共振作用的是两个简单能带, 即导带 $E_c(\mathbf{k})$ 和价带 $E_v(\mathbf{k})$. 按照文献[4]和[5]中叙述的方法, 可以把光激发下系统的状态波函数写作

$$\Psi = \prod_{\mathbf{k}} (\alpha_{\mathbf{k}} + \beta_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\dagger} b_{\mathbf{k}}^{\dagger}) \Psi_0. \quad (1)$$

这里 $a_{\mathbf{k}}^{\dagger}$ 是导带波矢为 \mathbf{k} 的电子态的产生算符; $b_{\mathbf{k}}^{\dagger}$ 是价带波矢为 $-\mathbf{k}$ 的空穴的产生算符; Ψ_0 是系统的基态波函数, 即价带全部填满、导带全空的状态, \mathbf{q} 是光波的波矢. 如果入射光子能量 $\hbar\omega$ 接近于 $E_c(0) - E_v(0)$, 并令

$$\begin{aligned} m_{\mathbf{k},1} &= \frac{1}{2} (\alpha_{\mathbf{k}} \beta_{\mathbf{k}}^* e^{-i\omega_{\mathbf{k}} t} + \alpha_{\mathbf{k}}^* \beta_{\mathbf{k}} e^{i\omega_{\mathbf{k}} t}), \\ m_{\mathbf{k},2} &= \frac{1}{2i} (\alpha_{\mathbf{k}}^* \beta_{\mathbf{k}} e^{i\omega_{\mathbf{k}} t} - \alpha_{\mathbf{k}} \beta_{\mathbf{k}}^* e^{-i\omega_{\mathbf{k}} t}), \\ m_{\mathbf{k},3} &= \frac{1}{2} (|\beta_{\mathbf{k}}|^2 - |\alpha_{\mathbf{k}}|^2), \\ \omega_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{\hbar} (E_c(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_v(\mathbf{k})). \end{aligned} \quad (2)$$

于是可以证明^[4,5], $\mathbf{m}_{\mathbf{k}} = (m_{\mathbf{k},1}, m_{\mathbf{k},2}, m_{\mathbf{k},3})$ 所满足的方程类似于一个磁矩在外场下运动的方程

$$\frac{d\mathbf{m}_h}{dt} = (\mathbf{m}_h \times \mathbf{h}_h) - \left(\frac{\hat{1}}{\tau}\right) (\mathbf{m}_h - \mathbf{m}_0), \quad (3a)$$

$$\mathbf{h}_h = (2Q_h \sin(\Delta\omega_h t - \phi), 2Q_h \cos(\Delta\omega_h t - \phi), 0). \quad (3b)$$

这里

$$Q_h = \frac{e}{2mc\hbar} (\mathbf{A}_0 \cdot \mathbf{p}_{cv}(\mathbf{k}))J,$$

$$\Delta\omega_h = \omega - \omega_h, \quad (4)$$

式中 m 是电子的质量, e 是电子电荷, c 是光速, $\mathbf{p}_{cv}(\mathbf{k})$ 是动量算符在状态 $(c, \mathbf{k} + \mathbf{q})$ 和 (v, \mathbf{k}) 间的矩阵元; 符号

$$\left(\frac{\hat{1}}{\tau}\right) = \begin{pmatrix} \frac{1}{\tau_T} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\tau_T} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\tau_I} \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{m}_0 = (0, 0, -1/2). \quad (5)$$

$\left(\frac{\hat{1}}{\tau}\right)$ 是唯象地引入的弛豫。(4) 式中的 J 是一个由于考虑了光场引起的电子和空穴的带内运动而带来的因子, 下面我们近似取 $J \approx 1$. 方程(3)有稳态解

$$\begin{aligned} m_{h,1} &= \frac{Q_h}{\Delta_h} \left\{ \frac{1}{\tau_T} \cos(\Delta\omega_h t - \phi) + \Delta\omega_h \sin(\Delta\omega_h t - \phi) \right\}, \\ m_{h,2} &= -\frac{Q_h}{\Delta_h} \left\{ -\Delta\omega_h \cos(\Delta\omega_h t - \phi) + \frac{1}{\tau_T} \sin(\Delta\omega_h t - \phi) \right\}, \\ m_{h,3} &= -\frac{1}{2\Delta_h} \left\{ (\Delta\omega_h)^2 + \left(\frac{1}{\tau_T}\right)^2 \right\}, \\ \Delta_h &= (\Delta\omega_h)^2 + \left(\frac{1}{\tau_T}\right)^2 + 4Q_h^2 \left(\frac{\tau_I}{\tau_T}\right). \end{aligned} \quad (6)$$

与带间跃迁联系的电流密度算符的平均值为^[4,5]

$$\langle \mathbf{J} \rangle = \sum_{\mathbf{k}} \frac{e}{m} (\alpha_{\mathbf{k}} \beta_{\mathbf{k}}^* \mathbf{p}_{cv} + \alpha_{\mathbf{k}}^* \beta_{\mathbf{k}} \mathbf{p}_{vc}),$$

把定态解(6)式代入上式就得到

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{J} \rangle &= \frac{1}{2} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \frac{1}{\hbar c} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{\frac{1}{\tau_T} - i\Delta\omega_h}{\Delta_h} (\mathbf{A}_0 \cdot \mathbf{p}_{vc}(\mathbf{k})) \mathbf{p}_{cv}(\mathbf{k}) e^{i(\omega t - \phi)} \right. \\ &\quad \left. + \frac{\frac{1}{\tau_T} + i\Delta\omega_h}{\Delta_h} (\mathbf{A}_0 \cdot \mathbf{p}_{cv}(\mathbf{k})) \mathbf{p}_{vc}(\mathbf{k}) e^{-i(\omega t - \phi)} \right\}. \end{aligned} \quad (7)$$

考虑到 $\langle \mathbf{J} \rangle$ 与电导率 σ 的关系, 并注意 Δ_h 中有光场振幅的平方项, 对它作展开, 便得到三阶电导率张量, 例如

$$\sigma_{xxxx}(-\omega, \omega, -\omega, \omega) = 4 \left(\frac{1}{\hbar\omega}\right)^3 \left(\frac{e}{m}\right)^4$$

$$\begin{aligned} & \times \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{\frac{1}{\tau_T} - i\Delta\omega_{\mathbf{k}}}{(\Delta\omega_{\mathbf{k}})^2 + \left(\frac{1}{\tau_T}\right)^2} \cdot \left(\frac{\tau_l}{\tau_T}\right) |p_{cv,x}(\mathbf{k})|^2 |p_{vc,x}(\mathbf{k})|^2 \right\}, \\ \sigma_{xy}(-\omega, \omega, -\omega, \omega) &= 4 \left(\frac{1}{\hbar\omega}\right)^3 \left(\frac{e}{m}\right)^4 \\ & \times \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{\frac{1}{\tau_T} - i\Delta\omega_{\mathbf{k}}}{(\Delta\omega_{\mathbf{k}})^2 + \left(\frac{1}{\tau_T}\right)^2} \left(\frac{\tau_l}{\tau_T}\right) |p_{cv,x}(\mathbf{k})|^2 |p_{vc,x}(\mathbf{k})|^2 \right\}, \quad (8) \end{aligned}$$

式中 $p_{cv,x}(\mathbf{k})$ 是 $p_{cv}(\mathbf{k})$ 的 x 方向分量等等。

现在, 把上述结果具体应用到 InSb 带间光跃迁的情况. 对 InSb 来说, 主要的贡献是价带的重空穴带和导带之间的跃迁. 用 V_1 标记重空穴带, c 标记导带. 按照 Kane^[6] 的 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 微扰能带模型, 引入 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 微扰参量 $P = -i \frac{\hbar}{m} \langle s | p_x | z \rangle$ 和 E_g 为 $\mathbf{k} = 0$ 处的禁带宽度, 经过比较繁琐的计算, 可以得到 $p_{cv}(\mathbf{k})$ 的表达式. 如果近似取 $|\mathbf{q}| \approx 0$, 于是有

$$\begin{aligned} \langle c, \mathbf{k}, \uparrow | \mathbf{p} | V_1, \mathbf{k}, \uparrow \rangle &\approx a_{c,\mathbf{k}} \frac{m}{\hbar} P e_{+,\mathbf{k}}, \\ \langle c, \mathbf{k}, \downarrow | \mathbf{p} | V_1, \mathbf{k}, \downarrow \rangle &\approx a_{c,\mathbf{k}} \frac{m}{\hbar} P e_{-,\mathbf{k}}, \\ \langle c, \mathbf{k}, \uparrow | \mathbf{p} | V_1, \mathbf{k}, \downarrow \rangle &\approx 0, \\ \langle c, \mathbf{k}, \downarrow | \mathbf{p} | V_1, \mathbf{k}, \uparrow \rangle &\approx 0. \end{aligned} \quad (9)$$

这里 \uparrow 和 \downarrow 是表示“自旋”向上或向下的状态; 符号 $a_{c,\mathbf{k}}$, $e_{+,\mathbf{k}}$, $e_{-,\mathbf{k}}$ 的定义为

$$\begin{aligned} a_{c,\mathbf{k}} &= \left(\frac{E_g + n_{\mathbf{k}}}{2n_{\mathbf{k}}} \right)^{1/2}, \\ n_{\mathbf{k}} &= \left(E_g^2 + \frac{8}{3} P^2 k^2 \right)^{1/2}, \\ \mathbf{e}_{+,\mathbf{k}} &= \left(-\frac{1}{\sqrt{2}} (\cos\theta_{\mathbf{k}} \cos\varphi_{\mathbf{k}} - i \sin\varphi_{\mathbf{k}}), \right. \\ & \quad \left. -\frac{1}{\sqrt{2}} (\cos\theta_{\mathbf{k}} \sin\varphi_{\mathbf{k}} + i \sin\varphi_{\mathbf{k}}), \frac{1}{\sqrt{2}} \sin\theta_{\mathbf{k}} \right), \\ \mathbf{e}_{-,\mathbf{k}} &= -(\mathbf{e}_{+,\mathbf{k}})^*, \end{aligned} \quad (10)$$

式中 $\theta_{\mathbf{k}}$ 是 \mathbf{k} 与 z 轴的夹角, $\varphi_{\mathbf{k}}$ 是 \mathbf{k} 在 xy 平面上的投影与 x 轴的夹角. 将具体表达式 (9) 和 (10) 代入 (8) 式, 并略去 τ_l , τ_T 与 \mathbf{k} 的关系, 就能得到

$$\begin{aligned} \sigma_{xxxx} &= \left(\frac{e}{m}\right)^4 \left(\frac{1}{\hbar\omega}\right)^3 \left(\frac{m}{\hbar} P\right)^4 \frac{\tau_l}{\tau_T} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \left(\frac{E_g + n_{\mathbf{k}}}{2n_{\mathbf{k}}}\right)^2 \right. \\ & \quad \left. \times (1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}} \cos^2\varphi_{\mathbf{k}}) \cdot \frac{\frac{1}{\tau_T} - i\Delta\omega_{\mathbf{k}}}{\left[(\Delta\omega_{\mathbf{k}})^2 + \left(\frac{1}{\tau_T}\right)^2\right]^2} \right\}, \end{aligned}$$

$$\sigma_{xyxy} = \left(\frac{e}{m}\right)^4 \left(\frac{1}{\hbar\omega}\right)^3 \left(\frac{m}{\hbar}P\right)^4 \frac{\tau_l}{\tau_T} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \left(\frac{E_g + n_{\mathbf{k}}}{2n_{\mathbf{k}}}\right)^2 \right. \\ \left. \times (1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}}\cos^2\varphi_{\mathbf{k}})(1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}}\sin^2\varphi_{\mathbf{k}}) \frac{\frac{1}{\tau_T} - i\Delta\omega_{\mathbf{k}}}{\left[(\Delta\omega_{\mathbf{k}})^2 + \left(\frac{1}{\tau_T}\right)^2\right]^2} \right\}. \quad (11)$$

(11) 式右端的求和号下只有 $1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}}\cos^2\varphi_{\mathbf{k}}$ 和 $1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}}\sin^2\varphi_{\mathbf{k}}$ 这两个因子是与 \mathbf{k} 的取向有关的, 把它们对 \mathbf{k} 的取向求平均

$$\langle (1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}}\cos^2\varphi_{\mathbf{k}}) \rangle = \frac{8}{15}, \\ \langle (1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}}\cos^2\varphi_{\mathbf{k}})(1 - \sin^2\theta_{\mathbf{k}}\sin^2\varphi_{\mathbf{k}}) \rangle = \frac{2}{5}, \quad (12)$$

于是得到

$$\frac{\sigma_{xyxy}}{\sigma_{xxxx}} = \frac{3}{4}. \quad (13)$$

注意到这里其实是相当于各向同性的情况, 独立的三阶张量分量只有 $(xxxx)$ 和 $(xyxy)$ 两个, (13) 式又把它们减为一个.

介电常数的实部等于 $-\frac{4\pi}{\omega} \text{Im}\sigma$, 因此(11)式给出了三阶非线性介电常数的表达式.

将(10)式中各式代入(11)式, 并取

$$\hbar\omega_{\mathbf{k}} \approx \frac{1}{2} (E_g + n_{\mathbf{k}}) + \frac{\hbar^2}{2\mu} \mathbf{k}^2, \quad (14)$$

其中 μ 可理解为重空穴带的有效质量以及价带的非二带近似的修正^[6]. 经过比较繁琐的计算, 可得到

$$\Delta\epsilon_{xxxx} = -\frac{32}{15\pi} \frac{1}{\omega} \left(\frac{1}{\hbar\omega}\right)^3 \left(\frac{e}{m}\right)^4 \left(\frac{m}{\hbar}P\right)^4 \frac{\tau_l}{\tau_T} \int_0^\infty k^2 dk \left(\frac{E_g + n_{\mathbf{k}}}{2n_{\mathbf{k}}}\right)^2 \\ \times \frac{\frac{1}{\hbar} \left[\frac{1}{2} (E_g + n_{\mathbf{k}}) + \frac{\hbar^2}{2\mu} \mathbf{k}^2 - \hbar\omega \right]}{\left\{ \left[\frac{1}{\hbar} \left(\frac{1}{2} (E_g + n_{\mathbf{k}}) + \frac{\hbar^2}{2\mu} \mathbf{k}^2 - \hbar\omega \right) \right]^2 + \left(\frac{1}{\tau_T} \right)^2 \right\}}, \\ \Delta\epsilon_{xyxy} = \frac{3}{4} \Delta\epsilon_{xxxx}. \quad (15)$$

如果引入记号

$$\epsilon = \frac{E_g - \hbar\omega}{E_g}, \quad \Delta_T = \frac{\hbar}{\tau_T E_g}, \quad \alpha = \frac{3\hbar^2}{16\mu P^2} E_g,$$

(15)式可化成

$$\Delta\epsilon_{xxxx} = -\frac{32}{15\pi} \left(\frac{3}{8}\right)^{3/2} \left(\frac{e}{\hbar\omega}\right)^4 P \left(\frac{\tau_l}{\tau_T}\right) \\ \times \int_1^\infty \frac{\epsilon + \frac{1}{2}(x-1) + \alpha(x^2-1)}{\left\{ \left[\epsilon + \frac{1}{2}(x-1) + \alpha(x^2-1) \right]^2 + \Delta_T^2 \right\}^2} dx$$

$$\times \left(\frac{1+x}{2x} \right)^2 x \sqrt{x^2 - 1} dx. \quad (16)$$

(16)式给出了 $\Delta\epsilon_{xxxx}$ 和 $\Delta\epsilon_{xyyy}$ (或相应的非线性折射率 n_2) 的值与 ω 的关系. 从(16)式可以看到, 三阶非线性光学常数的值与 τ_i/τ_T 成正比, 它们的大小与 τ_T 的大小有关, 在 $E_g - \hbar\omega \sim \hbar/\tau_T$ 附近时, 它们随 ω 变化很快. 按照(16)式的数值计算结果与 Miller 等的实验结果的对比如图 1 所示. 具体计算所用的参数值为: $P=1.63 \cdot 10^{-19} \text{ erg}\cdot\text{cm}$, $\mu=0.5\text{m}$ (实际计算表明 μ 的取值对结果影响不大), E_g 的取值是 10K 时 InSb 的禁带宽 1888cm^{-1} , 横向弛豫时间取 $8 \cdot 10^{-11}\text{sec}$, τ_i/τ_T 选为 5. 考虑到参量 τ_T , τ_i 的选择具有一定不确定性, 以及实验结果本身的某些不确定性, 应该说计算结果与实验数据是符合得比较好的. 应该强调指出, 只有在光的频率非常靠近吸收边处才会有很大的三阶非线性光学常数, 以图 1 中曲线 1 的数据为例, $\Delta\omega = 0$ 处 n_2 是 $1.7 \cdot 10^{-3}$, 到 $\Delta\omega = 2\text{cm}^{-1}$ 时, n_2 便下降到 $7.8 \cdot 10^{-6}$, 在 $\Delta\omega = 5\text{cm}^{-1}$ 时, n_2 更下降到 $2.0 \cdot 10^{-6}$. 三阶非线性光学常数的值与 τ_T 的依赖关系也很显著, 假如在上述计算中取 $\tau_T = 1.0 \cdot 10^{-11}\text{sec}$ (曲线 2), 在 $\Delta\omega = 0$ 处的 n_2 就下降为 $0.9 \cdot 10^{-4}$.

至于由于 InSb 的载流子能量和波矢关系的非抛物线性或弛豫时间与能量有关等因素引起的三阶非线性常数的修正, 比由于饱和效应而产生的三阶非线性常数要小得多^[7,8].

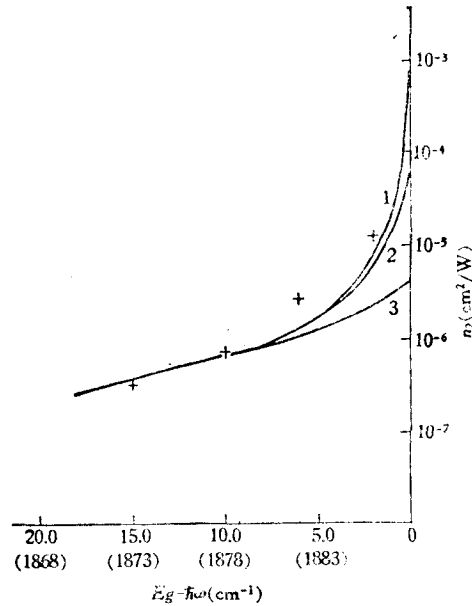


图 1 纵坐标为非线折射率 n_2

1—— $\tau_T = 8.0 \times 10^{-11}\text{sec}$;
2—— $\tau_T = 1.0 \times 10^{-11}\text{sec}$;
3—— $\tau_T = 1.4 \times 10^{-12}\text{sec}$;
+——Miller 等的实验值

参 考 文 献

- [1] D. A. B. Miller, M. H. Mozolowski, A. Miller, S. D. Smith, *Optics Comm.*, **27** (1978), 133; D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, S. D. Smith, *Optics Lett.*, **4** (1979), 331.
- [2] D. A. B. Miller, S. D. Smith, *Optics Comm.*, **31** (1979), 101; D. A. B. Miller, R. G. Harrison, A. M. Johnston, C. T. Seaton, S. D. Smith, *Optics Comm.*, **32** (1980), 478.
- [3] D. A. B. Miller, S. D. Smith, B. S. Wherrett, *Optics Comm.*, **35** (1980), 221.
- [4] Gan Ei-zhao (甘子钊) Yang Guo-zhen (杨国楨), Internal Report of International Center for Theoretical Physics, Ic/80/60, Miramare-Trieste, (1980).
- [5] 甘子钊、杨国楨, 物理学报, 待发表.
- [6] E. O. Kane, *J. Phys. Chem. Solids*, **1** (1957), 259.
- [7] C. K. N. Patel et al., *Phys. Rev. Lett.*, **17** (1966), 1011.
- [8] N. Tzoar, M. Jain, *Phys. Rev. B*, **4** (1971), 3540.

ON THE THIRD ORDER OPTICAL NONLINEARITY OF SEMICONDUCTORS NEAR ITS ABSORPTION EDGE

GAN ZI-ZHAO

(Department of Physics, Peking University)

YANG GUO-ZHEN

(Institute of Physics, Academia Sinica)

ABSTRACT

A theory is proposed about the third order optical nonlinearity which is induced by the saturation effect of interband transitions in semiconductors near the absorption edge. The value of the exceptionally large nonlinear refractive index of InSb is given.