

ЦИРКУЛЯРНЫЙ ФОТОТОК В ПОЛУМЕТАЛЛАХ ВЕЙЛЯ С ЗЕРКАЛЬНОЙ СИММЕТРИЕЙ

Н. В. Леппенен, Е. Л. Ивченко, Л. Е. Голуб*

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

Поступила в редакцию 15 февраля 2019 г.,
после переработки 15 февраля 2019 г.
Принята к публикации 27 февраля 2019 г.

Теоретически рассмотрены полуметаллы Вейля, точечная группа симметрии которых содержит плоскости отражения и в которых имеются эквивалентные долины с противоположной киральностью. К ним относятся наиболее часто исследуемые соединения — монониктиды переходных металлов TaAs, NbAs, TaP, NbP, а также сплавы $Bi_{1-x}Sb_x$. Циркулярный фотогальванический ток, инвертирующий свое направление при смене знака круговой поляризации, рассчитан для поглощения света при прямых оптических переходах вблизи точек Вейля. Суммарный вклад всех долин в фототок отличен от нуля при выходе за пределы вейлевской модели, когда дополнительно в эффективном электронном гамильтониане учитывается или спин-независимый, линейный по волновому вектору \mathbf{k} наклон (tilt), или спин-зависимые, кубические по \mathbf{k} слагаемые. При учете наклона конуса энергетической дисперсии в полуметалле Вейля симметрии C_{4v} фотогальванический ток выражен через компоненты симметричного тензора второго ранга, определяющего энергетический спектр носителей вблизи узла Вейля. При низкой температуре этот вклад в фототок возбуждается в некотором ограниченном частотном интервале Δ . Фототок, обусловленный кубическими поправками, в области оптического поглощения пропорционален квадрату частоты света и генерируется как внутри окна Δ , так и за его пределами.

DOI: 10.1134/S0044451019070162

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время открыты и активно изучаются трехмерные системы с линейным спектром — полуметаллы Вейля (в качестве недавних обзоров см. [1, 2]). Эти системы, обладающие невырожденным энергетическим спектром квазичастиц (за исключением двукратного вырождения в узле Вейля), привлекают большое внимание благодаря своим необычным электрическим и оптическим свойствам в объеме и на поверхности и расширяют представления топологической теории в физике твердого тела. В таких системах в простейшей модели носители тока описываются эффективным гамильтонианом, который имеет вид гамильтониана Вейля, используемого для описания нейтрино, чем и обусловлено их название.

В полуметаллах Вейля замечательным образом ведет себя циркулярный фототок, т. е. электриче-

ский ток, появляющийся при поглощении света без приложения внешнего электрического напряжения и меняющий свое направление на противоположное при смене знака круговой поляризации света [3]. А именно, было установлено, что при отсутствии плоскостей отражения циркулярный фототок направлен вдоль момента фотона и темп его генерации определяется помимо напряженности электрического поля волны мировыми постоянными [4].

Реальные полуметаллы Вейля TaAs, TaP, NbAs, NbP [5–11] и $Bi_{1-x}Sb_x$ [12] имеют точечную симметрию соответственно C_{4v} и C_{3v} . Таким образом, в них присутствует зеркальная симметрия, при которой вклады в циркулярный фототок от двух узлов Вейля, связанных отражением, в точности компенсируют друг друга. Поэтому в направлении распространения света генерируется чисто долинный фототок, а электрический ток отсутствует. Тем не менее переносимые выше точечные группы симметрии являются гиротропными, так что в соответствующих материалах возможен циркулярный электрический фототок, поперечный моменту фотона, при распро-

* E-mail: nik-leppenen@yandex.ru

странении света поперек поворотной оси симметрии третьего или четвертого порядка. Такой фототок микроскопически не может быть получен в рамках чисто вейлевского гамильтониана. В работе [13] было показано, что поперечный циркулярный фототок может быть обусловлен линейными по импульсу спин-независимыми добавками к гамильтониану Вейля, приводящему к «наклону» дисперсионных конусов. В рамках такой модели была предпринята попытка объяснить экспериментальные результаты по циркулярному фотогальваническому эффекту в арсениде тантала, наблюдавшемуся при возбуждении CO₂-лазером с энергией фотонов 120 мэВ [5].

В данной работе демонстрируется, что наклон дисперсии приводит к фототоку лишь в ограниченной области частот. Предложена альтернативная модель нелинейных спин-зависимых поправок к гамильтониану Вейля, приводящих к фототоку, нарастающему с частотой света. Теория построена для произвольной матрицы β_{ij} , описывающей линейную часть эффективного электронного гамильтониана $\beta_{ij}\sigma_i k_j$ и содержащей как диагональные, так и недиагональные компоненты.

2. ЭФФЕКТИВНЫЙ ГАМИЛЬТониАН

Вблизи вейлевской точки \mathbf{q}_W достаточно учитывать только две зоны, вырожденные в точке Вейля. В общем виде эффективный гамильтониан представляет собой матрицу второго ранга, которую можно представить в следующем виде:

$$\mathcal{H}(\mathbf{q}) = \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{d}(\mathbf{q}) + \sigma_0 d_0(\mathbf{q}), \quad (1)$$

где \mathbf{q} — волновой вектор, определенный в первой зоне Бриллюэна кристалла, σ_i — спиновые матрицы Паули, σ_0 — единичная матрица размерности 2×2 , и при $\mathbf{q} = \mathbf{q}_W$ трехкомпонентная функция $\mathbf{d}(\mathbf{q})$ и скалярная функция $d_0(\mathbf{q})$ обращаются в нуль. Для собственных значений энергии имеем

$$E_{\pm, \mathbf{q}} = \pm d(\mathbf{q}) + d_0(\mathbf{q}), \quad (2)$$

где $d(\mathbf{q}) = \sqrt{|\mathbf{d}(\mathbf{q})|^2}$.

2.1. Линейное приближение с анизотропным спектром

В линейном приближении по отступлению $\mathbf{q} - \mathbf{q}_W$ эффективный гамильтониан

$$\mathcal{H} = \beta_{ij}\sigma_i (q_j - q_{Wj}) + \sigma_0 a_l (q_l - q_{Wl}), \quad (3)$$

где $i, j, l = x, y, z$, определяется девятью компонентами матрицы $\hat{\beta}$ размерности 3×3 и тремя компонентами вектора \mathbf{a} . Они находятся из дифференцирования по \mathbf{q} величин d_i и d_0 :

$$\beta_{ij} = \left(\frac{\partial d_i}{\partial q_j} \right)_{\mathbf{q}_W}, \quad a_l = \left(\frac{\partial d_0}{\partial q_l} \right)_{\mathbf{q}_W}. \quad (4)$$

Коэффициент при спин-независимом слагаемом в гамильтониане (3) получил название наклона (tilt).

В дальнейшем мы будем разность $\mathbf{q} - \mathbf{q}_W$ обозначать в виде \mathbf{k} , т. е. будем отсчитывать волновой вектор электрона от вейлевского узла. Тогда в линейном приближении уравнение (2) можно представить в виде

$$E_{\pm, \mathbf{k}} = \pm \sqrt{\Lambda_{ij} k_i k_j} + \mathbf{a} \cdot \mathbf{k}. \quad (5)$$

Здесь симметричная, положительно определенная матрица $\hat{\Lambda}$ связана с матрицей $\hat{\beta}$ соотношением

$$\hat{\Lambda} = \hat{\beta}^T \hat{\beta}, \quad (6)$$

где $\hat{\beta}^T$ — матрица, транспонированная по отношению к $\hat{\beta}$. Для нахождения шести линейно независимых компонент матрицы $\hat{\Lambda}$ достаточно численного расчета линейной дисперсии вблизи точки Вейля для шести различных направлений в \mathbf{k} -пространстве.

При заданной матрице $\hat{\Lambda}$ уравнению (6) удовлетворяет совокупность матриц

$$\hat{\beta} = \pm \hat{\mathbf{D}}(\varphi, \theta, \psi) \hat{\beta}_0, \quad (7)$$

где $\hat{\beta}_0$ — любое частное решение этого уравнения, а $\hat{\mathbf{D}}$ — матрица ортогональных преобразований спиновых матриц Паули σ_i , которая задается тремя углами Эйлера, φ , θ и ψ , и имеет определитель +1. Действительно, произведение $\hat{\beta}^T \hat{\beta}$ равно $\hat{\beta}_0^T \hat{\mathbf{D}}^T \hat{\mathbf{D}} \hat{\beta}_0 = \hat{\beta}_0^T \hat{\beta}_0$, а это, по определению $\hat{\beta}_0$, есть матрица $\hat{\Lambda}$. В Приложении указан способ выбора матрицы $\hat{\beta}_0$ и приведено выражение для нее через матрицу $\hat{\Lambda}$. Заметим, что знак в (7) не определяется матрицей $\hat{\Lambda}$ и является топологическим зарядом, или киральностью данного узла [1]:

$$C = \text{sign} \left(\det \hat{\beta} \right). \quad (8)$$

Узлы Вейля, связанные несобственной операцией симметрии σ_v , например узлы $\mathbf{k}_{W1} = (k_x, k_y, k_z)$ и $\mathbf{k}_{W2} = (-k_x, k_y, k_z)$, имеют противоположные киральности. В то же время у узлов, связанных операцией инверсии времени \mathcal{T} , матрицы $\hat{\beta}$ совпадают, а значит, совпадают и их киральности. Как и должно

быть для вещественной матрицы размерности 3×3 , при выбранном знаке «±» в выражении (7) множество матриц $\hat{\beta}$ определяется девятью параметрами: шестью компонентами симметричной матрицы $\hat{\Lambda}$ и тремя углами φ, θ, ψ .

Преобразование \hat{D} в (7) осуществляет переход от одного базиса двукратно вырожденного состояния в узле Вейля к другому при сохранении системы координат в \mathbf{k} -пространстве. Естественно, при этом энергия электрона в точке \mathbf{k} не меняется. Аналогичное преобразование \hat{D} в спиновом пространстве, $\sigma_i = D_{ii'}^{-1} \sigma_{i'}$, можно применить и для гамильтониана общего вида (1). При этом скалярное произведение $\sigma_i d_i(\mathbf{k})$ перейдет в сумму $\sigma_{i'} d_{i'}(\mathbf{k})$, где $d_{i'} = D_{i'i} d_i$. Для дальнейшего расчета фототока важно иметь в виду, что указанное преобразование, не вовлекающее \mathbf{k} -пространство, не меняет не только энергии электрона, но и кривизны Берри $\Omega_{\mathbf{k}}$. Для доказательства заметим, что компоненты последней можно представить в виде скалярно-векторного произведения [14, 15],

$$\Omega_{\mathbf{k},i} = \frac{\mathbf{d}}{2d^3} \cdot \left[\frac{\partial \mathbf{d}}{\partial k_{i+1}} \times \frac{\partial \mathbf{d}}{\partial k_{i+2}} \right], \quad (9)$$

которое инвариантно относительно любого поворота вектора $\mathbf{d}(\mathbf{k})$.

Полуметаллы Вейля с гамильтонианом

$$\mathcal{H} = \beta \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{k} + \mathbf{a} \cdot \mathbf{k} \quad (10)$$

относят к типу I, если $|\beta| > |\mathbf{a}| \equiv a$, и к типу II, если $|\beta| < a$ [16]. Для матрицы β_{ij} общего вида принадлежность к типу I или II определяется отсутствием или наличием такого направления вектора \mathbf{k} , при котором $d(\mathbf{k}) < |\mathbf{a} \cdot \mathbf{k}|$, или

$$\sum_{ij} \Lambda_{ij} k_i k_j < \sum_{ij} a_i a_j k_i k_j. \quad (11)$$

Критерием выполнения этого условия является неравенство

$$1 < |\mathbf{b}| \equiv b, \quad (12)$$

где \mathbf{b} — вектор с компонентами

$$b_i = \beta_{ji}^{-1} a_j \quad (13)$$

и абсолютным значением $b = \sqrt{\Lambda_{ij}^{-1} a_i a_j}$. В данной работе рассматриваются полуметаллы Вейля типа I ($b < 1$).

В дополнительной информации к работе [5] (см. в ней табл. S3) приведены значения $v_{\pm}(lmn) = \partial E_{\pm, \mathbf{k}} / \partial k$ для шести направлений $[lmn]$ в \mathbf{k} -пространстве полуметалла TaAs: [100], [010], [001], [110],

[101] и [011]. Пользуясь этими шестью значениями, мы рассчитали матрицу $\hat{\Lambda}$ и вектор \mathbf{a} , входящие в уравнение (5). Определитель полученной матрицы оказался отрицательным в противоречии с тем, что матрица $\hat{\Lambda}$ должна быть положительно определенной. Если приписать значения $v_{\pm}(101)$ не направлению [101], а направлению $[10\bar{1}]$, матрица $\hat{\Lambda}$ становится положительно определенной. Однако найденный при этом модуль вектора \mathbf{b} превышает единицу, что не согласуется с типом I полуметалла TaAs [2]. Поэтому указанная табл. S3 требует уточнения.

2.2. Учет нелинейных по \mathbf{k} слагаемых

При расчете фототоков в полуметаллах Вейля потребуются учесть нелинейные по \mathbf{k} слагаемые в эффективном гамильтониане

$$\mathcal{H} = \beta_{ij} \sigma_i k_j + \sigma_i P_i^{(2)}(\mathbf{k}) + \sigma_i P_i^{(3)}(\mathbf{k}) + \sigma_0 (\mathbf{a} \cdot \mathbf{k} + \dots), \quad (14)$$

где учтены квадратичные и кубические спин-зависимые вклады

$$\begin{aligned} P_i^{(2)}(\mathbf{k}) &= \sum_{jl} C_{ijl}^{(2)} k_j k_l, \\ P_i^{(3)}(\mathbf{k}) &= \sum_{jlm} C_{ijlm}^{(3)} k_j k_l k_m. \end{aligned} \quad (15)$$

С учетом нелинейных слагаемых энергия по-прежнему может быть представлена в виде (2), но с обобщенным вектором $\mathbf{d}(\mathbf{k})$:

$$d_i(\mathbf{k}) = \beta_{ij} k_j + P_i^{(2)}(\mathbf{k}) + P_i^{(3)}(\mathbf{k}).$$

Введенные в (15) коэффициенты симметричны к перестановкам индексов при компонентах волнового вектора:

$$C_{ijl}^{(2)} = C_{ilj}^{(2)}, \quad C_{ijlm}^{(3)} = C_{iljm}^{(3)} = C_{imlj}^{(3)}.$$

При ортогональном преобразовании $\hat{D}(\varphi, \theta, \psi)$ матрицы $\mathbf{C}^{(n)}$ переходят в матрицы

$$\sum_i D_{ni} C_{ijl}^{(2)} \quad \text{и} \quad \sum_i D_{ni} C_{ijlm}^{(3)}.$$

Такое преобразование в (7) оставляет инвариантной не только матрицу $\hat{\Lambda}$, но и суммы произведений:

$$\begin{aligned} C_{jlmn} &= \sum_i \beta_{ji}^{-1} C_{ilmn}^{(3)}, \\ C'_{jlmn} &= \sum_i \beta_{ij} C_{ilmn}^{(3)} = \sum_i \beta_{ji}^T C_{ilmn}^{(3)}. \end{aligned} \quad (16)$$

Матрицы \hat{C} и \hat{C}' связаны между собой соотношением

$$C'_{jlmn} = \Lambda_{ji} C_{ilmn}. \quad (17)$$

3. ОБЩИЕ ФОРМУЛЫ ДЛЯ ФОТОТОКА

В продолжение работ [14, 15] мы исследуем циркулярный фотогальванический эффект, описываемый феноменологической формулой

$$j_\lambda = \gamma_{\lambda\eta} \kappa_\eta |\mathbf{E}|^2, \quad (18)$$

где \mathbf{j} — плотность электрического тока, \mathbf{E} — амплитуда электрического поля световой волны, $\boldsymbol{\kappa} = i[\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*]/|\mathbf{E}|^2$ — векторная спиральность фотона, равная единичному вектору в направлении распространения света, умноженному на степень его круговой поляризации P_{circ} . В кристаллах гиротропных классов C_{nv} ($n = 3, 4, 6$) тензор γ имеет две отличные от нуля компоненты $\gamma_{xy} = -\gamma_{yx}$, расчет которых является целью данной работы.

Плотность циркулярного фототока, генерируемого в полуметаллах Вейля при прямых оптических переходах, рассчитывается по формуле [4, 14, 15]

$$\mathbf{j} = |\mathbf{E}|^2 \frac{2\pi e^3}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}} v_{so\tau_p} (\boldsymbol{\kappa} \cdot \boldsymbol{\Omega}_{\mathbf{k}}) \delta[2d(\mathbf{k}) - \hbar\omega] \times [f_0(E_{-, \mathbf{k}}) - f_0(E_{+, \mathbf{k}})]. \quad (19)$$

Здесь e — заряд электрона, $\mathbf{v}_{so} = \hbar^{-1}(\partial d/\partial \mathbf{k})$ — спин-зависимая часть групповой скорости электрона в зоне проводимости, τ_p — время релаксации носителей заряда по квазимпульсу, $\boldsymbol{\Omega}_{\mathbf{k}}$ — кривизна Берри (9), $f_0(E) = \{\exp[(E - \mu)/T] + 1\}^{-1}$ — равновесная функция распределения электронов по энергии E , μ — химический потенциал, с учетом закона сохранения энергии

$$E_{\pm, \mathbf{k}} = \pm \frac{\hbar\omega}{2} + d_0(\mathbf{k}). \quad (20)$$

В работе [4] рассчитан циркулярный фототок (19) в узле Вейля с линейным по \mathbf{k} эффективным гамильтонианом (3) без наклона ($\mathbf{a} = 0$) и показано, что вклад каждого узла в циркулярный фототок имеет универсальный вид

$$\mathbf{j} = C\Gamma_0\tau_p \boldsymbol{\kappa} |\mathbf{E}|^2, \quad \Gamma_0 = \frac{\pi e^3}{3\hbar^2}, \quad (21)$$

где \hbar — постоянная Планка, а $C = \pm 1$ — киральность этого узла, определенная согласно (8). При наличии в кристалле несобственных элементов точечной симметрии вклады узлов с противоположными киральностями компенсируют друг друга и фототок, рассчитанный в модели [4], отсутствует. Фототок, просуммированный по всем узлам Вейля в таких кристаллах, отличен от нуля при учете наклона [13] или нелинейных слагаемых в гамильтониане (14) [14, 15].

Для определенности мы рассматриваем узлы Вейля с $k_z \neq 0$. Их удобно различать элементами точечной симметрии g и комбинациями $\mathcal{T}g$ элементов g и операции инверсии времени \mathcal{T} . Тензор γ , просуммированный по всем долинам, запишем в виде суммы

$$\gamma = 2 \sum_g \gamma^{(g)},$$

где $\gamma^{(g)}$ — вклад долины $g\mathbf{k}_W$, \mathbf{k}_W — исходный узел, например, узел с $k_{Wy} > k_{Wx} > 0$; множитель 2 учитывает вклад долин $-g\mathbf{k}_W$. Из общей формулы (19) следует выражение для частичного вклада в фотогальванический тензор долины $g\mathbf{k}_W$:

$$\gamma_{\lambda\nu}^{(g)} = \frac{2\pi e^3 \tau_p}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}} v_{so, \lambda}^{(g)} \Omega_{\mathbf{k}, \nu}^{(g)} \delta[2d^{(g)}(\mathbf{k}) - \hbar\omega] \times [f_0(E_{-, \mathbf{k}}^{(g)}) - f_0(E_{+, \mathbf{k}}^{(g)})]. \quad (22)$$

В кристаллах симметрии C_{4v} вклад в компоненту γ_{xy} принимает вид

$$\gamma_{xy}^{(g)} = \frac{2\pi e^3 \tau_p}{\hbar^2} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{2d^3(g\mathbf{k})} \frac{\partial d(g\mathbf{k})}{\partial k_x} \times \left(\mathbf{d}(g\mathbf{k}) \cdot \left[\frac{\partial \mathbf{d}(g\mathbf{k})}{\partial k_z} \times \frac{\partial \mathbf{d}(g\mathbf{k})}{\partial k_x} \right] \right) \times [f_0(E_{-, g\mathbf{k}}) - f_0(E_{+, g\mathbf{k}})] \delta[2d(g\mathbf{k}) - \hbar\omega]. \quad (23)$$

С учетом закона сохранения энергии величину $2d^3(g\mathbf{k})$ можно заменить на $(\hbar\omega)^3/4$.

Выполним в сумме (23) замену переменных $\mathbf{k} \rightarrow g^{-1}\mathbf{k}$ и учтем, что для половины операций симметрии $(g\mathbf{k})_x = \pm k_x$, а для второй половины $(g\mathbf{k})_x = \pm k_y$, и для всех $g \in C_{4v}$ компонента волнового вектора k_z не меняется. Тогда для xy -компоненты суммарного тензора γ получим

$$\gamma_{xy} = \frac{4N\pi e^3 \tau_p}{\hbar^2 (\hbar\omega)^3} \times \sum_{\mathbf{k}} [f_0(E_{-, \mathbf{k}}) - f_0(E_{+, \mathbf{k}})] \delta[2d(\mathbf{k}) - \hbar\omega] \times \left\{ \frac{\partial d(\mathbf{k})}{\partial k_x} \left(\mathbf{d}(\mathbf{k}) \cdot \left[\frac{\partial \mathbf{d}(\mathbf{k})}{\partial k_z} \times \frac{\partial \mathbf{d}(\mathbf{k})}{\partial k_x} \right] \right) + (x \rightarrow y) \right\}, \quad (24)$$

где $N = 16$ — число вейлевских долин.

4. ЦИРКУЛЯРНЫЙ ФОТОТОК С УЧЕТОМ ОБЩЕГО НАКЛОНА В ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ ДИСПЕРСИИ

В данном разделе учитываются только линейные по \mathbf{k} спин-зависимое и спин-независимое слагаемые в гамильтониане. В работе [13] наклонное слагаемое учитывалось в модели с изотропной матрицей $\hat{\beta}$, см. (10). Здесь мы обобщаем теорию на произвольный вид этой матрицы.

Матрица $\hat{\beta}$ входит в выражение (24) только через $\hat{\Lambda}$ и C :

$$\frac{\partial d}{\partial k_x} = \frac{(\hat{\Lambda}\mathbf{k})_x}{d(\mathbf{k})}, \quad \mathbf{d} \cdot \left[\frac{\partial \mathbf{d}}{\partial k_z} \times \frac{\partial \mathbf{d}}{\partial k_x} \right] = C\sqrt{\Delta_\Lambda}k_y, \quad (25)$$

где $\Delta_\Lambda = \det \hat{\Lambda}$. Используя формулы (25), можно преобразовать γ_{xy} к виду

$$\gamma_{xy} = \frac{12CN\Gamma_0\tau_p\sqrt{\Delta_\Lambda}}{\pi(\hbar\omega)^4} \int d\mathbf{k} \times \sum_j (\Lambda_{xj}k_y - \Lambda_{yj}k_x) k_j F(\mathbf{a} \cdot \mathbf{k}) \delta[2d(\mathbf{k}) - \hbar\omega], \quad (26)$$

где

$$F(x) = f_0\left(-\frac{\hbar\omega}{2} + x\right) - f_0\left(\frac{\hbar\omega}{2} + x\right). \quad (27)$$

Переходя к переменным

$$Q_i = \beta_{ij}k_j, \quad k_j = \beta_{ji}^{-1}Q_i, \quad d(\mathbf{k}) = Q \equiv |\mathbf{Q}| \quad (28)$$

и выполняя интегрирование по модулю вектора \mathbf{Q} , получим

$$\gamma_{xy} = \frac{3}{2}CN\Gamma_0\tau_p \times \sum_{st} (\beta_{sx}\beta_{yt}^{-1} - \beta_{sy}\beta_{xt}^{-1}) \left\langle \frac{Q_s Q_t}{Q^2} F(\mathbf{b} \cdot \mathbf{Q}) \right\rangle, \quad (29)$$

где вектор \mathbf{b} определен согласно (13), а угловые скобки означают усреднение по направлениям вектора \mathbf{Q} . В пренебрежении наклоном разность функций распределения $F(\mathbf{a} \cdot \mathbf{k}) = F(\mathbf{b} \cdot \mathbf{Q})$ не зависит от \mathbf{Q} , см. (20), и, поскольку произведение $\langle Q_s Q_t \rangle = \delta_{st}Q^2/3$, сумма по s и t обнуляется.

Среднее в (29) можно преобразовать к виду

$$\left\langle \frac{Q_s Q_t}{Q^2} F(\mathbf{b} \cdot \mathbf{Q}) \right\rangle = \frac{\delta_{st}}{4} \int_{-1}^1 (1-u^2) F(bQu) du + \frac{b_s b_t}{4b^2} \int_{-1}^1 (3u^2 - 1) F(bQu) du.$$

Первое слагаемое вклада в γ_{xy} не дает, а вклад второго сводится к

$$\gamma_{xy} = \frac{3}{8}CN\Gamma_0\tau_p\chi_{xy}J, \quad (30)$$

где C — киральность исходного узла,

$$\chi_{xy} = \frac{\sum_i (a_x \Lambda_{yi}^{-1} - a_y \Lambda_{xi}^{-1}) a_i}{\sum_{ij} \Lambda_{ij}^{-1} a_i a_j} \quad (31)$$

и

$$J = \int_{-1}^1 (3u^2 - 1) F(bQu) du. \quad (32)$$

При $\mathbf{a} \neq 0$ выражение для χ_{xy} инвариантно к преобразованию (7). При изотропной матрице $\Lambda_{ij} = \Lambda \delta_{ij}$ сумма по i в числителе (31) обращается в нуль в согласии с работами [14,15], где показано, что в кристаллах симметрии C_{nv} ($n = 3, 4, 6$) фототок отсутствует даже при наличии наклона $d_0(\mathbf{k})$, если спин-зависимая часть гамильтониана имеет простой изотропный вид (10). Однако при матрице β_{ij} общего вида учет наклона в функциях распределения $f_0(E_{\pm, \mathbf{k}})$ приводит к появлению фототока. Например, при диагональной матрице Λ_{ij} с различными компонентами Λ_{xx} и Λ_{yy} параметр χ_{xy} равен отношению

$$\frac{a_x a_y (\Lambda_{xx} - \Lambda_{yy})}{\Lambda_{yy} a_x^2 + \Lambda_{xx} a_y^2 + \Lambda_{xx} \Lambda_{yy} \Lambda_{zz}^{-1} a_z^2}.$$

Так как $\int (3u^2 - 1) du = 0$, величину J можно представить в следующей эквивалентной форме:

$$J = \int_{-1}^1 du \frac{3u^2 - 1}{\exp [(-\hbar\omega/2 - \mu + bQu)/T] + 1} + (\mu \rightarrow -\mu). \quad (33)$$

При произвольной температуре интеграл (33) вычисляется аналитически, но соответствующее выражение (содержащее полилогарифмы) довольно громоздко, и мы его не приводим. Вместо этого мы приведем выражения для J при низкой температуре ($T \rightarrow 0$):

$$J = -\theta (1 - |u_0|) u_0 (1 - u_0^2), \quad (34)$$

и при высокой температуре ($b\hbar\omega/2 \ll T$):

$$J \approx \frac{b^2}{15} (\hbar\omega)^2 \mathcal{F}'' . \quad (35)$$

Здесь $\theta(x)$ — функция Хевисайда,

$$u_0 = \frac{1}{b} \left(1 - \frac{2|\mu|}{\hbar\omega} \right), \quad \mathcal{F}(\varepsilon) = f_0(-\varepsilon) - f_0(\varepsilon), \quad (36)$$

а штрихи означают дифференцирование при $\varepsilon = \hbar\omega/2$.

5. ЦИРКУЛЯРНЫЙ ФОТОТОК С УЧЕТОМ КУБИЧЕСКОЙ НЕЛИНЕЙНОСТИ

При учете кубических слагаемых учет наклона не обязателен [15], поэтому в этом разделе положим $d_0(\mathbf{k}) \equiv 0$. Считаем нелинейные вклады в гамильтониан (14) малыми по сравнению с линейным вкладом. В первом порядке по нелинейности $P_i^{(3)}(\mathbf{k})$ фототок (22) можно представить в виде суммы трех слагаемых:

$$\mathbf{j} = \mathbf{j}_v^{(3)} + \mathbf{j}_\Omega^{(3)} + \mathbf{j}_\delta^{(3)}, \quad (37)$$

определяемых нелинейными поправками соответственно к групповой скорости \mathbf{v}_{so} , кривизне Берри (9) и энергии, входящей в δ -функцию в выражении (19). Приведем эти поправки в явном виде:

$$\begin{aligned} d &\approx Q + \frac{\mathbf{Q} \cdot \mathbf{P}^{(3)}}{Q}, \\ v_{so,j} &= \frac{2}{\hbar^2\omega} \left(\beta_{ij}\beta_{il}k_l + \beta_{ij}P_i^{(3)} + \beta_{il}k_l \frac{\partial P_i^{(3)}}{\partial k_j} \right), \\ \Omega_{\mathbf{k},i} &= \frac{4}{(\hbar\omega)^3} \times \\ &\times \left\{ \det(\hat{\beta})k_i + \mathbf{P}^{(3)} \cdot \left[\frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial k_{i+1}} \times \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial k_{i+2}} \right] + \right. \\ &\left. + \mathbf{Q} \cdot \left[\frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial k_{i+1}} \times \frac{\partial \mathbf{P}^{(3)}}{\partial k_{i+2}} - \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial k_{i+2}} \times \frac{\partial \mathbf{P}^{(3)}}{\partial k_{i+1}} \right] \right\}. \end{aligned} \quad (38)$$

В двух последних формулах величина d заменена на $\hbar\omega/2$ и для удобства введен вектор \mathbf{Q} , определенный согласно (28). Подставим нелинейные поправки в формулу (24), перейдем от суммирования по \mathbf{k} к интегрированию по \mathbf{Q} и проведем усреднение по направлениям вектора \mathbf{Q} в соответствии с правилами, приведенными в работе [17]:

$$\begin{aligned} \left\langle \frac{Q_{i_1}Q_{i_2}Q_{i_3}Q_{i_4}}{Q^4} \right\rangle &= \frac{\delta_{i_1i_2}\delta_{i_3i_4} + \delta_{i_1i_3}\delta_{i_2i_4} + \delta_{i_1i_4}\delta_{i_2i_3}}{15}, \\ \left\langle \frac{Q_{i_1}Q_{i_2}Q_{i_3}Q_{i_4}Q_{i_5}Q_{i_6}}{Q^6} \right\rangle &= \frac{1}{105} (\delta_{i_1i_2}\delta_{i_3i_4}\delta_{i_5i_6} + \dots). \end{aligned}$$

Здесь многоточие предполагает сумму остальных 14 произведений трех δ -функций с парными индексами. В результате для компоненты γ_{xy} окончательно имеем

$$\gamma_{xy} = \frac{3N\Gamma_0\tau_p}{80} (\hbar\omega)^2 \mathcal{F} \left(\frac{\hbar\omega}{2} \right) \xi_{xy}, \quad (39)$$

где

$$\xi_{xy} = \sum_{s=x,y,z} (\Xi_{sxy} - \Xi_{syx}), \quad (40)$$

$$\begin{aligned} \Xi_{sxy} &= C_{yxkq}\Lambda_{kq}^{-1} + 2C_{kxkq}\Lambda_{yq}^{-1} + \\ &+ C_{m\alpha\beta\gamma}\Lambda_{xm}\Lambda_{\alpha\beta}^{-1}\Lambda_{\gamma y}^{-1} + 4(C_{zzxs}\Lambda_{ys}^{-1} - \\ &- C_{yzxs}\Lambda_{zs}^{-1} + C_{xxxs}\Lambda_{ys}^{-1} - C_{yxxs}\Lambda_{xs}^{-1}), \end{aligned} \quad (41)$$

а Ξ_{syx} получается из (41) заменой $x \leftrightarrow y$. В частном случае $\beta_{ij} = \beta\delta_{ij}$, $P_x^{(3)} = C_{xyyy}k_y^3$, $P_y^{(3)} = C_{yxxx}k_x^3$, $P_z^{(3)} = 0$ приходим к результату работы [15]:

$$\gamma_{xy} = C \frac{3N\Gamma_0\tau_p}{20\beta^2} (\hbar\omega)^2 \mathcal{F} \left(\frac{\hbar\omega}{2} \right) (C_{xyyy} - C_{yxxx}), \quad (42)$$

где $C_{jlmn} = C_{jlmn}^{(3)}/\beta$.

6. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Зависимость циркулярного фототока от частоты в модели с анизотропным линейным спектром проиллюстрирована на рис. 1. Как видно из формул (30)–(32), фототок зависит от двух скалярных параметров, χ_{xy} и $b = |\hat{\beta}^{-1}\mathbf{a}|$. При этом первый параметр не зависит от модуля $|\mathbf{a}|$, он определяет масштаб фотогальванического эффекта, но не форму частотной зависимости фототока, и при выборе произвольных единиц по оси ординат выпадает. Пара-

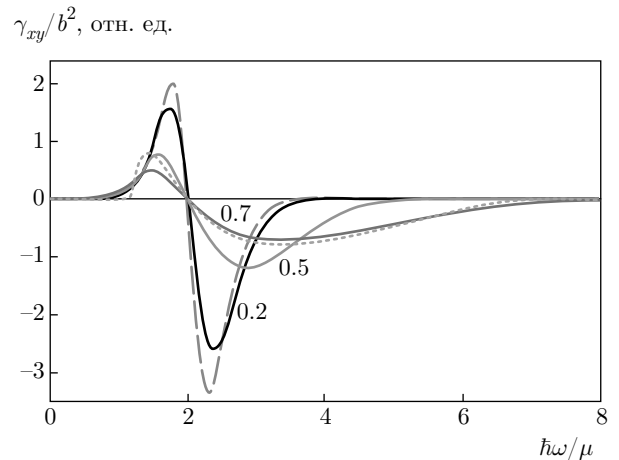


Рис. 1. (В цвете онлайн) Зависимость фототока от энергии кванта в модели с анизотропным линейным спектром при $T/\mu = 0.1$. Сплошные кривые — численный расчет по формулам (30)–(32) для $b = 0.2, 0.5, 0.7$; штриховая кривая — приближенный расчет с использованием формулы (35), а пунктиром показана зависимость, рассчитанная при $T = 0$ по формуле (34)

метр b влияет как на форму, так и на «размах» зависимости $\gamma_{xy}(\hbar\omega)$. Из-за зарядовой симметрии спин-зависимой части гамильтониана (3) интеграл J инвариантен к замене μ на $-\mu$, что явно следует из его представления в форме (33). Для любой температуры один из двух вкладов в (33) при $\hbar\omega = 2|\mu|$ обращается в нуль, а другой при $|\mu| \gg T$ мал и им можно пренебречь. Поэтому интеграл J при $\hbar\omega = 2|\mu|$ должен менять знак, как это имеет место для всех кривых на рис. 1. Сплошными линиями приведены результаты точного расчета по формулам (30)–(32), штриховая линия отвечает расчету по формуле (35), полученной разложением интеграла J по малому параметру b . Согласно (34), при нулевой температуре фототок генерируется в пределах интервала энергий фотона [15]

$$\frac{2|\mu|}{1+b} < \hbar\omega < \frac{2|\mu|}{1-b}, \quad (43)$$

т. е. в энергетическом окне $\Delta = 4|\mu|b/(1-b^2)$. При $b = 0.7$ это окно лежит в пределах от $1.18|\mu|$ до $6.7|\mu|$ в согласии с пунктирной кривой на рис. 1. Следует отметить, что такое же ограничение фототока по частотам имеет место и при совместном учете наклона и квадратичной нелинейности $\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{k})$ в (14). При конечной температуре спектральная область, внутри которой эффект значителен, выходит за пределы интервала (43), но в целом определяется наибольшей из величин Δ и T . Заметим также, что из формулы (36) следует, что при $T = 0$ фототок зависит от $\hbar\omega$ и μ не по отдельности, а от отношения $\hbar\omega/\mu$, тогда как при $T \neq 0$ возникает дополнительная зависимость от отношения T/μ .

Частотная зависимость вклада в фототок от кубической нелинейности кардинально отличается от поведения кривых на рис. 1. Действительно, из формулы (39) следует, что $\gamma_{xy} \propto \omega^2 \mathcal{F}(\hbar\omega/2)$. При $T \ll \hbar\omega$ разность заселенностей начального и конечного состояний $\mathcal{F}(\hbar\omega/2)$ пренебрежимо мала при $\hbar\omega < 2|\mu|$ и близка к единице при $\hbar\omega > 2|\mu|$, т. е. выше порога поглощения $\hbar\omega = 2|\mu|$ фототок пропорционален квадрату частоты излучения (рис. 2). На рис. 2 для сравнения приведен также спектр в линейной модели с наклоном.

В литературе имеются две экспериментальные статьи по циркулярному фотогальваническому эффекту в вейлевских полуметаллах. В работе [18] измерен циркулярный фототок в TaAs. Однако энергии фотона в ней были настолько велики ($\hbar\omega \approx 2.38$ эВ), что оптические переходы шли вдали от точек Вейля. В работе [5] циркулярный фототок зарегистрирован также в полуметалле TaAs, но при возбуждении CO₂-лазером ($\hbar\omega = 120$ мэВ), а

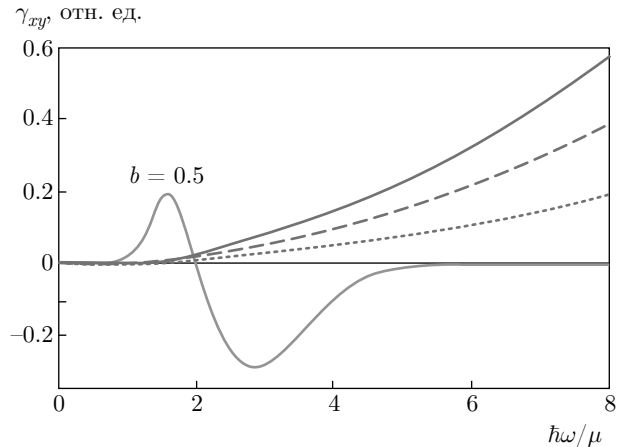


Рис. 2. (В цвете онлайн) Сравнение спектральных зависимостей циркулярного фототока, рассчитанных при $T/\mu = 0.1$ в модели с наклоном и с учетом кубической нелинейности: пунктирная, штриховая и сплошная кривые соответственно $\mu^2 \xi_{xy}/\chi_{xy} = 0.03, 0.06$ и 0.09

при анализе использована модель линейного эффективного гамильтониана (3). Наш расчет показывает, однако, что линейная модель дает нулевой фототок при больших частотах, и генерацию фототока можно объяснить нелинейным по \mathbf{k} спин-зависимым вкладом в эффективный электронный гамильтониан.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проанализирована связь между девятью компонентами матрицы β_{ij} , определяющей линейный по \mathbf{k} гамильтониан вблизи вейлевского узла, и энергетической дисперсией электрона вблизи этого узла. Дисперсия задается шестью линейно независимыми компонентами диагональной, положительно определенной матрицы $\hat{\Lambda} = \hat{\beta}^T \hat{\beta}$, а матрица $\hat{\beta}$ — этими шестью компонентами, тремя углами Эйлера ортогонального преобразования пары базисных состояний в узле Вейля и киральностью $\mathcal{C} = \text{sign}(\det \hat{\beta})$.

Построена теория циркулярного фотогальванического эффекта в полуметаллах Вейля с зеркальной симметрией. Циркулярный фототок рассчитан для произвольного анизотропного гамильтониана, включающего как линейные, так и нелинейные по \mathbf{k} слагаемые. В отличие от чисто спинового тока, электрический ток выражается через компоненты матрицы $\hat{\Lambda}$ и комбинации произведений компонент матрицы β_{ij} и матриц более высокого порядка, инвариантные к ортогональному преобразованию базисных состояний в узле

Вейля. Установлено, что циркулярный фототок в полуметаллах симметрии C_{4v} отличен от нуля в модели с наклоном, если его энергетический спектр анизотропен в плоскости, перпендикулярной оси C_4 . Линейная модель дает ненулевой фототок лишь в конечном интервале частот, в то время как учет кубических по \mathbf{k} поправок к гамильтониану приводит к циркулярному фототоку, квадратично растущему с частотой во всем диапазоне прямых оптических переходов вблизи вейлевских узлов.

Финансирование. Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 19-02-00095).

Благодарности. Один из авторов (Л. Е. Г.) благодарит Фонд развития теоретической физики и математики «БАЗИС». Другой автор (Е. Л. И.) благодарен фонду Academy of Finland (grant No 317920) за поддержку участия в Международном семинаре Nanocarbon Photonics and Optoelectronics (NPO 2018).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Выбор матрицы $\hat{\beta}$ по известной матрице $\hat{\Lambda}$

В качестве матрицы $\hat{\beta}_0$ в выражении (7) возьмем одно из решений уравнения

$$\hat{\beta}^2 = \hat{\Lambda}. \quad (44)$$

Приведем матрицу $\hat{\Lambda}$ к диагональному виду

$$\hat{\mathbf{D}}_d \hat{\Lambda} \hat{\mathbf{D}}_d^{-1} = \begin{bmatrix} \lambda_1^2 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_2^2 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_3^2 \end{bmatrix},$$

где $\lambda_1^2, \lambda_2^2, \lambda_3^2$ — собственные числа этой матрицы, а $\hat{\mathbf{D}}_d$ — матрица соответствующего ортогонального преобразования. Тогда выбранная нами матрица имеет вид

$$\hat{\beta}_0 = \hat{\mathbf{D}}_d^{-1} \begin{bmatrix} \lambda_1 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_2 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_3 \end{bmatrix} \hat{\mathbf{D}}_d, \quad (45)$$

где для определенности мы полагаем все три числа, $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$, положительными. Выражение (45) можно выразить через матрицу $\hat{\Lambda}$ и ее собственные числа [19]:

$$\hat{\beta}_0 = \frac{I_\beta \sqrt{\Delta_\Lambda} \hat{\mathbf{I}} + \frac{1}{2} (I_\beta^2 + I_\Lambda) \hat{\Lambda} - \hat{\Lambda}^2}{\frac{1}{2} I_\beta (I_\beta^2 - I_\Lambda) \mp \sqrt{\Delta_\Lambda}}, \quad (46)$$

где $\hat{\mathbf{I}}$ — единичная матрица 3×3 , $\Delta_\Lambda = \det(\hat{\Lambda})$, а $I_\Lambda = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2$ и $I_\beta = \lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3$ — следы матриц $\hat{\Lambda}$ и $\hat{\beta}$. Заметим, что, несмотря на то что матрица $\hat{\beta}_0$ диагональна, в совокупность матриц (7), удовлетворяющих уравнению (6), входят как диагональные, так и недиагональные матрицы.

ЛИТЕРАТУРА

1. N. P. Armitage, E. J. Mele, and A. Vishwanath, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015001 (2018).
2. Hao Zheng and M. Z. Hasan, *Adv. Phys. X* **3**, 1466661 (2018).
3. E. L. Ivchenko, *Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures*, Alpha Science Int., Harrow, UK (2005).
4. F. de Juan, A. G. Grushin, T. Morimoto, and J. E. Moore, *Nature Comm.* **8**, 15995 (2017).
5. Q. Ma, S.-Y. Xu, C.-K. Chan, C.-L. Zhang, G. Chang, Y. Lin, W. Xie, T. Palacios, H. Lin, S. Jia, P. A. Lee, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, *Nature Phys.* **13**, 842 (2017).
6. B. Q. Lv, N. Xu, H. M. Weng, J. Z. Ma, P. Richard, X. C. Huang, L. X. Zhao, G. F. Chen, C. E. Matt, F. Bisti, V. N. Strocov, J. Mesot, Z. Fang, X. Dai, T. Qian, M. Shi, and H. Ding, *Nature Phys.* **11**, 724 (2015).
7. Hongming Weng, Chen Fang, Zhong Fang, B. A. Bernevig, and Xi Dai, *Phys. Rev. X* **5**, 011029 (2015).
8. Yan Sun, Shu-Chun Wu, and Binghai Yan, *Phys. Rev. B* **92**, 115428 (2015).
9. J. Buckeridge, D. Jevdokimovs, C. R. A. Catlow, and A. A. Sokol, *Phys. Rev. B* **93**, 125205 (2016).
10. Yonghui Zhou, Pengchao Lu, Yongping Du, Xiangde Zhu, Ganghua Zhang, Ranran Zhang, Dexi Shao, Xuliang Chen, Xuefei Wang, Mingliang Tian, Jian Sun, Xiangang Wan, Zhaorong Yang, Wenge Yang, Yuheng Zhang, and Dingyu Xing, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 146402 (2016).
11. D. Grassano, O. Pulci, A. M. Conte, and F. Bechstedt, *Sci. Rep.* **8**, 3534 (2018).
12. Yu-Hsin Su, Wujun Shi, C. Felser, and Yan Sun, *Phys. Rev. B* **97**, 155431 (2018).
13. C.-K. Chan, N. H. Lindner, G. Refael, and P. A. Lee, *Phys. Rev. B* **95**, 041104 (2017).

14. Л. Е. Голуб, Е. Л. Ивченко, Б. Э. Спивак, Письма в ЖЭТФ **105**, 744 (2017).
15. L. E. Golub and E. L. Ivchenko, Phys. Rev. B **98**, 075305 (2018).
16. A. A. Soluyanov, D. Gresch, Z. Wang, Q. Wu, M. Troyer, X. Dai, and B. A. Bernevig, Nature **527** (7579), 495 (2015).
17. June-Haak Ee, Dong-Won Jung, U-Rae Kim, and Jungil Lee, Eur. J. Phys. **38**, 025801 (2017).
18. Kai Sun, Shuai-Shuai Sun, Lin-Lin Wei, Cong Guo, Huan-Fang Tian, Gen-Fu Chen, Huai-Xin Yang, and Jian-Qi Li, Chin. Phys. Lett. **34**, 117203 (2017).
19. L. P. Franca, Comp. Math. Appl. **18**, 459 (1989).