

Analitikus módszer szilárdtestekben lézerimpulzus által elmozdított töltések kiszámítására

Magashegyi István¹, Földi Péter^{1,2}

¹Szegedi Tudományegyetem, Elméleti Fizikai Tanszék, Tisza L. krt. 84-86, 6720 Szeged

²ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Kft., Wolfgang Sandner utca 3, 6728 Szeged

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.25>

1. Bevezetés

Szilárdtestek optikai gerjesztésének modellezésére jól kidolgozott elméleti módszerek léteznek, különösen az alacsony intenzitástartományban, Tankönyvekből ismert pl. hogy félvezetők közel monokromatikus megvilágítása esetén csak olyan hullámhosszakon jönnek létre sávátmenetek, amelyeknél a gerjesztő fotonenergia nagyobb, mint a tiltott sáv szélessége. Ezzel szemben, a femtoszekundumos tartományba eső impulzushosszak és a GV/m csúcstérerősségek egy olyan tartományt jelentenek, amelyben akár több elektronvoltnyi szélességű tiltott sávok is áthidalhatók közeli infravörös gerjesztéssel, anélkül, hogy maga a szilárdtest struktúra visszafordíthatatlan sérülést szenvedne. Kísérletileg pl. kristályos ZnO [1,2] és amorfi SiO₂ [3] esetében is detektáltak sávátmenettel járó jelenségeket; ezekben az esetekben tipikus fotonenergiák és a tiltott sáv szélességének viszonya miatt "többfotonos" folyamatokról szokás beszélni. Ebben a tartományban az alkalmazott modellek jelenleg még sokkal kevésbé letisztultak.

A sávátmenetek indukálása mellett az intenzív lézerimpulzusok a szilárdtestekben áramokat is létrehozhatnak. Ezek az áramok időben olyan gyorsan oszcillálnak [4], hogy azt a jelenlegi detektorok nem képesek feloldani. Ezzel szemben időintegráljuk – azaz a lézerimpulzus által elmozdított töltés – már mérhető. A továbbiakban egy olyan elméleti módszert mutatunk be, amelynek segítségével ki tudjuk számítani ezt a töltést.

2. Modell

Tételezzük fel azt, hogy kezdetben a szilárdtest termikus egyensúlyban van, így az eredő áram nulla [5]. Ez úgy adódik, hogy $\Psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ Bloch-állapotokat tekintve (ahol \mathbf{k} az állapot síkhullám részének a kitevőjében szerepel, n pedig a sávindex), egyensúlyban $\Psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ és $\Psi_n(-\mathbf{k}, \mathbf{r})$ azonos mértékben populáltak, az általuk hordozott áramok pedig azonos nagyságúak, de ellentétes irányúak. A továbbiakban egyelektron képben dolgozva, egyetlen $\Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r})$ kezdőállapotból induló dinamikára koncentrálnunk. Az optikai gerjesztés hatására ez a Bloch-állapotoknak egy szuperpozíciójába megy át, amit a következő alakba írunk:

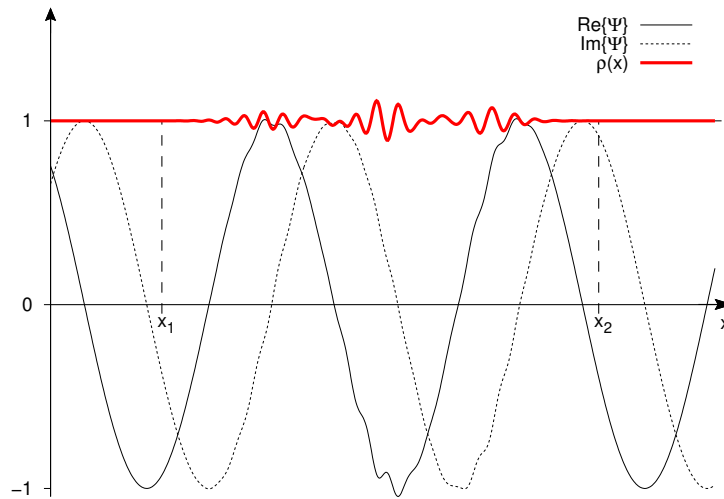
$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) + \Phi(\mathbf{r}, t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) + \sum_n \int_{BZ} \phi_n(\mathbf{k}) \Psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t) d^3\mathbf{k}, \quad (1)$$

azaz leválasztjuk az $E_{n_0}(\mathbf{k}) = \hbar\omega_{n_0}(\mathbf{k})$ diszperziós reláció ismeretében a triviális időfüggéssel

$$\Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}) e^{-i\omega_{n_0}(\mathbf{k})t} \quad (2)$$

jellemezhető kezdőállapot. (Az (1) egyenletben a BZ index arra utal, hogy az integrálást az első Brillouin zónára kell elvégezni.) Ezt szemlélteti egydimenzióban az 1. ábra.

Itt érdemes megjegyezni, hogy szigorúan véve a dipólközelítést, az (1) egyenlet jobb oldalán az integrál csak olyan tagokat tartalmaz, amelyek esetén \mathbf{k} megegyezik a kiinduló állapotéval. ("Az



1. ábra. Lézertér hatása az elemi cellára átlagolt Bloch-hullámfüggvényre kvadratikus diszperziós reláció esetén. A piros görbe a $\rho(x) = |\Psi(x)|^2$ sűrűséget mutatja a lézerimpulzussal történő kölcsönhatás után, illetve láthatjuk $\Psi(x)$ valós és képzetes részét is.

optikai átmenetek vertikálisak", ami a mértékválasztástól függetlenül igaz [6].) A dipólközelítés érvényességét ahhoz szokás kötni, hogy az elemi cella lineáris mérete sokkal kisebb a hullámhossznál. Ez természetesen infravörös tartományban mindenképpen igaz, ugyanakkor a lokális gerjesztés mindenképpen okoz kicsiny eltéréseket a pusztán vertikális átmenetek esetétől.

Ezután a szokásos nemrelativisztikus áramsűrűséget

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \frac{e\hbar}{m} \text{Im} \{ \Psi^*(\mathbf{r}, t) \nabla \Psi(\mathbf{r}, t) \} \quad (3)$$

számítjuk ki az (1) állapotban. Az egyszerűség kedvéért a továbbiakban legyen $e = 1$. Csak az x komponenszt kiírva azt kapjuk hogy:

$$j_x(\mathbf{r}, t) = \underbrace{\frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \Psi_{n_0}^*(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) \frac{\partial \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t)}{\partial x} \right\}}_{j_0(\mathbf{r}, t)} + \underbrace{\frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \Phi(\mathbf{r}, t) \frac{\partial \Phi(\mathbf{r}, t)}{\partial x} \right\}}_{j_\Phi(\mathbf{r}, t)} + \underbrace{\frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \Psi_{n_0}^*(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) \frac{\partial \Phi(\mathbf{r}, t)}{\partial x} + \Phi^*(\mathbf{r}, t) \frac{\partial \Psi_{n_0}(\mathbf{r}, t)}{\partial x} \right\}}_{j_c(\mathbf{r}, t)}.$$

Itt a $j_0(\mathbf{r}, t)$ tag tisztán a $\Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t)$ állapothoz tartozó áramsűrűség, $j_\Phi(\mathbf{r}, t)$ ugyanígy $\Phi(\mathbf{r}, t)$ -hez tartozik, a $j_c(\mathbf{r}, t)$ kereszttag pedig a két korábbi állapot közötti szuperpozíció eredménye.

Tegyük fel, hogy a töltés meghatározására szolgáló detektorok $t = 0$ -ban kapcsolnak be. Természetesen a Q_0 töltés (ami j_0 időintegrálja) lineárisan növekszik. Ugyanakkor ha elvégezzük a

számítást a kezdeti állapothoz képest ellentétes k esetén is, akkor ez a tag kiesik. Így elegendő a

$$\begin{aligned} Q_d(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) &= Q_d(\mathbf{r}) = \int_0^{\infty} j(\mathbf{r}, t) - j_0(\mathbf{r}, t) dt \\ &= \underbrace{\int_0^{\infty} j_{\Phi}(\mathbf{r}, t) dt}_{Q_{\Phi}(\mathbf{r})} + \underbrace{\int_0^{\infty} j_c(\mathbf{r}, t) dt}_{Q_c(\mathbf{r})}. \end{aligned} \quad (4)$$

különbségre koncentrálunk, ami teljes egészében a lézerimpulzus hatására jön létre.

3. A lézerimpulzus által elmozdított ösztöltés analitikus kiszámítása

A könnyebb átláthatóság kedvéért a továbbiakban egy dimenzióban (1D) vizsgáljuk a kérdést. Elsőként tekintsük $Q_{\Phi}(x)$ -t, azaz $Q_{\Phi}(\mathbf{r})$ 1D verzióját:

$$Q_{\Phi}(x) = \frac{\hbar}{m} \operatorname{Im} \left\{ \sum_{n,n'} \int_0^{\infty} \int_{BZ} \int_{BZ} e^{-i[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)]t} \phi_n^*(k) \phi_{n'}(k') \Psi_n^*(k, x) \frac{\partial \Psi_{n'}(k', x)}{\partial x} dk dk' dt \right\}. \quad (5)$$

Ez az integrál egyszerűsödik, ha alkalmazzuk az

$$\int_0^{\infty} e^{-i[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)]t} dt = \pi \delta[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)] - \frac{i}{\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)}, \quad (6)$$

összefüggést, ahol a jobb oldalon Dirac-delta jelenik meg és Cauchy-féle főérték értendő. Érdemes bevezetni a $Q_{\Phi}(x) = Q'_{\Phi}(x) + Q''_{\Phi}(x)$, jelölést, ahol $Q'_{\Phi}(x)$ esetén az (6) egyenlet jobb oldalának első tagját helyettesítjük az (5) egyenletbe, míg $Q''_{\Phi}(x)$ tartalmazza a főértékintegrált.

A továbblépéshez szükség van arra, hogy legalább kvalitatív képünk legyen a rendszer diszperziós relációjáról. Az egyszerűség kedvéért tételezzük fel, hogy a tiltott sávok direktek, azaz $\delta[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)]$ csak azonos n és n' sávindexek esetén ad nem nulla járulékot. Az $\omega_n(k') = \omega_n(k)$ egyenlőség triviálisan igaz a $k = k'$ esetben, de természetesen nem ez az egyetlen lehetőség. Bloch-elektronok esetén fennáll, hogy $\omega_n(k) = \omega_n(-k)$, így a $-k = k'$ is megoldása az egyenlőségnek. Az egyszerűség kedvéért a továbbiakban csak ezt a két lehetőséget tekintjük. Így azt kapjuk, hogy

$$\begin{aligned} Q'_{\Phi}(x) &= \frac{\hbar}{m} \operatorname{Im} \left\{ \pi \sum_n \int_{BZ} \frac{|\phi_n(k)|^2}{|\omega'_n(k)|} \Psi_n^*(k, x) \frac{\partial \Psi_n(k, x)}{\partial x} dk \right. \\ &\quad \left. + \pi \sum_n \int_{BZ} \frac{\phi_n^*(k) \phi_n(-k)}{|\omega'_n(-k)|} \Psi_n^*(k, x) \frac{\partial \Psi_n(-k, x)}{\partial x} dk \right\}, \end{aligned} \quad (7)$$

ahol $\omega'_n(k) = \frac{\omega_n(k')}{\partial k'}|_{k'=k}$, azaz a Bloch-elektronokhoz tartozó sebesség az n -edik sávban. Mivel $\Psi_n(-k, x) = \Psi_n^*(k, x)$, a második tag képzetes része eltűnik, így az nem ad járulékot Q_{Φ} -hez. Ha átlagolunk egy, az x -et tartalmazó, a hosszúságú elemi cellára a

$$\overline{Q'_{\Phi}(x)} = \frac{1}{a} \int_{x-a/2}^{x+a/2} Q'_{\Phi}(s) ds \quad (8)$$

módon, akkor felhasználva az

$$\frac{1}{m} \int_0^a \Psi_n^*(k, x) (-i\hbar) \frac{\partial \Psi_n(k, x)}{x} dx = \frac{\omega'_n(k)}{N} \quad (9)$$

összefüggést, írhatjuk, hogy

$$\overline{Q'_\Phi} = \frac{\pi}{L} \sum_n \int_{BZ} \text{sgn}[\omega'_n(k)] |\phi_n(k)|^2 dk. \quad (10)$$

Itt N az elemi cellák számát jelenti, $L = Na$ pedig az egydimenziós kristály teljes hossza.

A Q''_Φ integrál kiszámításához az integrandusz, mint komplex függvény analitikus tulajdonságainak ismeretére van szükség. Ez természetesen általában (különösen, ha a $\phi_n(k)$ "kifejtési együtthatókat" numerikusan nyerjük) nem ismert. Fizikailag feltehetjük, hogy $\phi_n(k)$ minden sávra korlátos tartójú k -ban. Ha emellett még az is igaz, hogy a teljes integrandusz analitikus a komplex k síkon (kivéve a valós tengelyt), akkor Q''_Φ , mint kontúrintegrál, kiszámítható a kölcsönhatási tartománytól távol eső detektorok esetére:

$$\begin{aligned} \overline{Q_\Phi}(x \rightarrow \infty) &= \frac{\pi}{L} \left(\sum_n \int_{BZ} (1 + \text{sgn}[\omega'(k)]) |\phi_n(k)|^2 dk \right) \\ &= \frac{2\pi}{L} \sum_n \int^+ |\phi_n(k)|^2 dk, \end{aligned} \quad (11)$$

$$\overline{Q_\Phi}(x \rightarrow -\infty) = -\frac{2\pi}{L} \sum_n \int^- |\phi_n(k)|^2 dk. \quad (12)$$

Ezekben az egyenletekben a + illetve – felső indexek a Brillouin-zóna azon tartományára történő integrálást jelentenek, ahol $\omega'_n(k)$ pozitív illetve negatív. Mindez intuitívan azt jelenti, hogy a lézer által keltett $\Phi(x)$ hullámcsomag a pozitív (negatív) irányban azzal arányos töltést szállít, amennyi ebben a szuperpozícióban a pozitív (negatív) sebességű komponensek aránya. Azt is fontos észrevenni, hogy az egyes sávok járulékaik függetlenek egymástól.

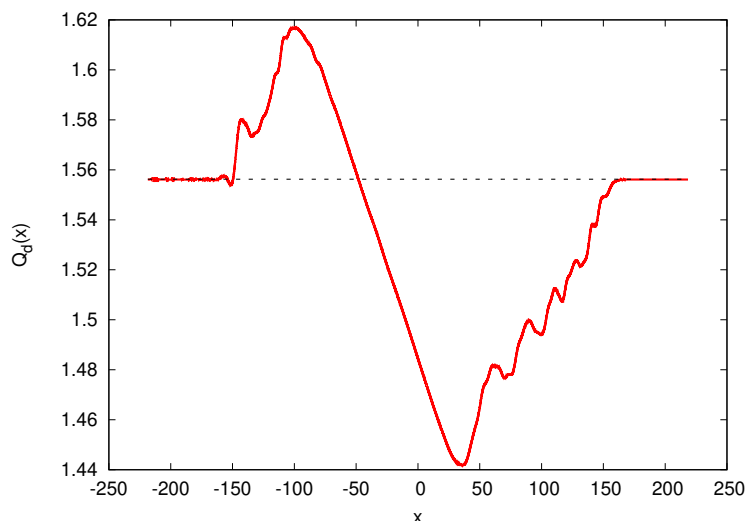
Az interferenciából származó Q_c töltést hasonló lépéseket követve számíthatjuk ki. Összegezve az eredményt, a teljes, cellára átlagolt $\overline{Q_d}$ töltésre, nagy, pozitív x értékek esetén adódik:

$$\overline{Q_d}(x \rightarrow \infty) = \frac{2\pi}{L} \sum_n \int^+ |\phi_n(k)|^2 dk + \begin{cases} \frac{2\pi}{L} \text{Re} \{ \phi_{n_0}(k_0) \} & \text{ha } \omega'_{n_0}(k_0) > 0 \\ 0 & \text{egyébként,} \end{cases} \quad (13)$$

míg a negatív irányban

$$\overline{Q_d}(x \rightarrow -\infty) = -\frac{2\pi}{L} \sum_n \int^- |\phi_n(k)|^2 dk - \begin{cases} \frac{2\pi}{L} \text{Re} \{ \phi_{n_0}(k_0) \} & \text{ha } \omega'_{n_0}(k_0) < 0 \\ 0 & \text{egyébként.} \end{cases} \quad (14)$$

Érdeemes megjegyezni, hogy – bár a fenti két egyenletből nem látszik azonnal – a (13) és (14) egyenletekkel adott limeszek megegyeznek egymással. Ez analitikusan is belátható, ha a kontinuitási egyenletből indulunk ki, és észrevesszük, hogy lokális gerjesztés esetén, a kölcsönhatási tartománytól észrevehetően nagyobb intervallumot tekintve, a lézertér hatása nem változtatja meg az intervallumon belüli elektronsűrűséget.



2. ábra. A $Q_d(x)$ mennyiség (önkényes egységekben) két, kvadratikus diszperzióval rendelkező sáv numerikusan számolt gerjesztése után. Az x tengelyen az egység az elemi cella hossza, a . A szaggatott vonal a (13) és (14) egyenleteknek megfelelő eredmény. A paraméterek: A lézerimpulzus központi hullámhossza 800 nm, csúcstérerőssége 1 GV/m, hossza 10 optikai ciklus. A tiltott sáv szélessége 3 eV, $k_0a = 0.1$.

A (13) és (14) egyenletekkel adott eredményeinket több módon is ellenőriztük, és minden esetben érvényesnek találtuk. Kvadratikus diszperzió esetén, a síkhullámra szuperponált Gauss hullámcsomag esete analitikusan megoldható, és a (13) és (14) egyenletekkel adott határértékeket adja. A 2. ábra numerikus eredményt mutat, amikor a lézertér hatását a példa kedvéért két sáv figyelembe vételével számítottuk ki, és aztán direkt módon kiszámítottuk az egyes pontokon áthaladó áram integrálját a numerikusan értelemben vett hosszú idejű határesetben. Amint látható, a nagy $|x|$ értékekre érvényes határeset nagyon jó közelítéssel megegyezik a (13) és (14) eredményekkel.

4. Összefoglalás

Ebben a munkában a szilárdtestekben lézertérrel keltett áramokkal kapcsolatos eredményeinket foglaltuk össze. Megmutattuk, hogy ismerve az anyagi rendszer állapotát a kölcsönhatás után, a lézerimpulzus által elmozdított összes töltés analitikusan kiszámítható. Ez az eredmény jó kiindulópontot szolgáltat ahhoz, hogy elméleti úton megvizsgálhassuk, a lézertér paraméterei milyen mértékben határozhatók meg az általa elmozdított töltés megmérésével.

Köszönetnyilvánítás

A szerzők köszönik a Fehér Lászlónak és Papp Györgynek a hasznos konzultációkat.

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. EFOP-3.6.2-16-2017-00005-Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanostruktúrákban és biológiai rendszerekben.

Munkánkat támogatták továbbá a TUDFO/47138-1/2019-ITM FIKP és a GINOP-2.3.2-15-2016-00036 számú pályázatok. Magát az ELI-ALPS projektet (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió és az Európai Regionális Fejlesztési Alap támogatja.

Irodalom

- [1] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro és D. A. Reis, *Nat. Physics* **7**, 138 (2011)
<https://doi.org/10.1038/nphys1847>
- [2] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, U. B. Szafruga, P. Agostini, L. F. Di- Mauro és D. A. Reis, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 167407 (2011)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.167407>
- [3] A. Schiffrin, T. Paasch-Colberg, N. Karpowicz, V. Apalkov et al., *Nature* **493**, 70 (2013)
<https://doi.org/10.1038/nature11567>
- [4] I Magashegyi, L. Zs. Szabó, P. Földi, *J. Opt. Soc. Am. B* **35**, A116 (2018)
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.35.00A116>
- [5] P. Földi, M. G. Benedict, V. S. Yakovlev:, *New. J. Phys.* **15**, 063019 (2013)
<https://doi.org/10.1088/1367-2630/15/6/063019>
- [6] P. Földi, *Phys. Rev. B* **96**, 035112 (2017)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.035112>