

ФИЗИЧЕСКАЯ ОПТИКА

УДК 535.14

НЕЛИНЕЙНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ СВЕТОВЫХ ИМПУЛЬСОВ ПРИ ДВУХФОТОННОМ РЕЗОНАНСЕ В ОБЪЕМНЫХ КРИСТАЛЛАХ И НАНОСТРУКТУРАХ

© 2011 г. Е. Ю. Перлин, доктор физ.-мат. наук; К. А. Елисеев; Э. Г. Идрисов; Я. Т. Халилов

Центр “Информационные оптические технологии” СПбГУ ИТМО, Санкт-Петербург

E-mail: eyperlin@mail.ru

Развита теория нестационарного поглощения сверхкоротких световых импульсов в объемных материалах и гетероструктурах с квантовыми ямами при двухфотонном резонансе на межзонных переходах, а также на переходах между дискретными состояниями либо между подуровнями (подзонами) размерного квантования. Получены аналитические выражения для нелинейных поляризуемостей, определяющих энергию, поглощенную из фемтосекундного светового импульса. Получены зависимости поглощенной энергии от расстройек двухфотонных резонансов и от длительности импульсов.

Ключевые слова: двухфотонные переходы, нелинейные поляризуемости, фемтосекундные световые импульсы, кристаллы, наноструктуры, квантовые ямы.

Коды OCIS: 190.0190, 320.0320, 300.0300.

Поступила в редакцию 21.03.2011.

1. Введение

При исследовании взаимодействия мощного лазерного излучения с прозрачными диэлектриками или полупроводниками, а также с полупроводниковыми наноструктурами широко используются световые импульсы фемтосекундной длительности (см., например, [1–8]). При продолжительности импульсов $\tau_i \leq 100$ фс величина τ_i оказывается малой по сравнению с τ_p – временем релаксации импульса электронов или дырок. При умеренных концентрациях свободных электронов (n) и дырок (p) ($n, p \leq 10^{17}$ см⁻³) время τ_p обычно определяется процессами рассеяния носителей заряда на продольных оптических колебаниях решетки и составляет в объемных кристаллах, как правило, сотни фемтосекунд. В гетероструктурах с глубокими квантовыми ямами τ_p определяется внутриподзонами переходами за счет взаимодействия электронов с оптическими фононами. При этом заметный вклад в процессы релаксации вносит взаимодействие с интерфейсными колебательными модами [9–18].

При $\tau_i < \tau_p$ обычные методы расчета вероятностей оптических переходов, как одно-, так и многофотонных, оперирующие понятием числа переходов в единицу времени, оказываются принципиально непригодными. Таким образом, для последовательной интерпретации экспериментальных данных по нелинейному отклику материалов различной размерности на фемтосекундные световые импульсы нельзя использовать формулы, полученные для случая квазистационарных электромагнитных полей (см., например, [19–22]), и требуется иной подход. Без учета этого обстоятельства можно прийти к неточной интерпретации наблюдающихся фотоиндуцированных процессов.

В следующих разделах настоящей работы приведены результаты исследования нелинейного отклика объемных кристаллов и гетероструктур различной размерности на фемтосекундные световые импульсы в условиях двухфотонного резонанса на межзонных переходах и переходах между подуровнями (подзонами) размерного квантования.

2. Поглощение сверхкоротких импульсов света в системах с дискретными уровнями

Пусть свет с частотой ω распространяется в среде вдоль направления x между передней ($x = 0$) и задней ($x = L$) ее поверхностями. Тогда поглощаемая мощность на единицу площади определяется выражением [23]

$$J = -\omega L F_0 P_s, \quad (1)$$

где $F_0 = F_0(t)$ – амплитуда напряженности электрического поля волны, а P_s – амплитуда реактивной компоненты поляризации среды. Предполагаем, что изменение этого поля при прохождении через среду мало по сравнению с самим $F_0(t)$.

Тогда P_s определяется формулой

$$P_s = \frac{1}{2} \text{Im} \left\{ \text{Sp}(\hat{d}\hat{\rho}) \right\}. \quad (2)$$

В формуле (2) \hat{d} – оператор дипольного момента, действующий в электронной подсистеме,

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

где ρ – матрица плотности электронной системы

$$\rho = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H} t} \rho_0 e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H} t}. \quad (4)$$

Здесь \hat{H} – гамильтониан электронной системы в поле электромагнитной волны. Если для простоты предположить, что все возможные начальные состояния системы заняты, а возможные конечные состояния свободны, то матрицу плотности в начальный момент времени ($t = -\infty$) можно представить в виде проекционного оператора

$$\rho_0 = \sum_i |i\rangle \langle i|, \quad (5)$$

где $|i\rangle$ – возможные заполненные начальные состояния системы.

Дважды воспользовавшись известной формулой Фейнмана для “распутывания” экспоненциальных операторов, получим

$$e^{-\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_0 + \hat{H}'_t)t} = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t} T \exp \left\{ \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} \hat{H}'_{t_1} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} \right\}, \quad (6)$$

где \hat{H}_0 – гамильтониан электронной системы материала в отсутствие взаимодействия со светом, \hat{H}'_t – оператор взаимодействия электронной системы со светом (нижний индекс t ука-

зывает на то, что этот оператор может зависеть от времени, как это бывает при полуклассическом рассмотрении взаимодействия электронной системы с полем), T – символ хронологического упорядочения операторов.

Воспользовавшись также возможностью циклической перестановки операторов под знаком шпура в формуле (2), из (2)–(6) получим

$$P_s = \frac{1}{2} \text{Im} \left\{ \sum_{i,j,k} d_{ij} \exp \left[\frac{i(E_i - E_j + \hbar\omega)}{\hbar} \right] s_{jk} s_{ki}^+ \right\}, \quad (7)$$

где E_i – энергия i -го электронного состояния (например, зонного или дискретного состояния в объемном материале или подзоны размерного квантования в полупроводниковой квантовой яме), s_{mn} – матричные элементы оператора эволюции системы

$$\hat{s} = T \exp \left\{ \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} \hat{H}'_{t_1} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} \right\}. \quad (8)$$

Для упрощения задачи считаем, что для матричных элементов H'_{ik} оператора взаимодействия со светом, который мы выбираем в дипольном приближении в виде

$$\hat{H}'_t = \hat{d} F_0(t) e^{i(\omega t - kz)} + \text{H.c.},^1 \quad (9)$$

выполняется соотношение $H'_{ik}/\hbar\omega \ll 1$.

При энергиях кванта света $\hbar\omega$ в диапазоне 0,1–1 эВ это неравенство выполняется вплоть до значений интенсивности света $j \leq 10^{11} - 10^{12}$ Вт/см². В данном приближении в случае двухфотонного резонанса в правой части выражения (7) будут фигурировать члены 3-го порядка по напряженности F_0 электрического поля световой волны. Следует иметь в виду, что в принятом приближении не учитываются так называемые процессы переизлучения фотонов, в которых, например, при переходе, когда энергия электрона увеличивается на $2\hbar\omega$, происходит поглощение трех фотонов и испускание одного фотона, поглощение четырех фотонов и испускание двух фотонов и т. д.

Далее следует принять во внимание то обстоятельство, что амплитуда реактивной компоненты нелинейной поляризации среды P_s по определению не может включать быстро осциллирующие множители вида $\exp(i\omega t)$. В то же время из условия двухфотонного резонанса на переходах между i -м и f -м состояниями электронной системы вытекает наличие в подынтегральном выражении в правой части ¹ H.c. – эрмитово-сопряженные (Hermitian conjugate).

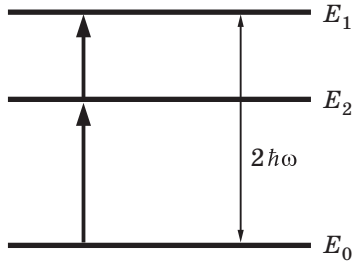


Рис. 1. Модель трехуровневой системы с дискретными уровнями.

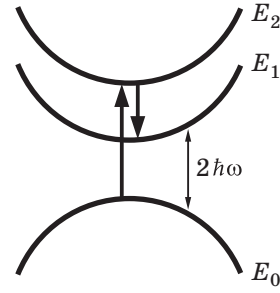


Рис. 2. Модель зонной структуры кристалла или материала с квантовыми ямами или проводниками.

формулы (8) множителя вида $\exp[i(\omega_{fi} - 2\omega)t]$, где $\omega_{fi} = (E_f - E_i)/\hbar$. Как показывает анализ структуры выражения в правой части (8), из этих двух фактов вытекает, что именно “левый” матричный элемент оператора эволюции s_{jk} включает члены не ниже второго порядка по полю F_0 , тогда как “правый” матричный элемент эрмитовски сопряженного оператора s_{ki}^+ включает члены не выше первого порядка по полю F_0 .

С учетом сказанного выше выражение (7) для амплитуды реактивной компоненты нелинейной поляризации среды можно представить в виде

$$P_s = \frac{1}{2} \text{Im} \times \left\{ \sum_{i,j,k} \sum_{p=0}^1 d_{ij} \exp \left[\frac{i(E_i - E_j + \hbar\omega)}{\hbar} \right] s_{jk}^{(4-p-1)} s_{ki}^{(p)+} \right\} \quad (10)$$

где $s_{jk}^{(4-p-1)}$ и $s_{ki}^{(p)+}$ – матричные элементы оператора эволюции системы \hat{s} и эрмитовски сопряженного оператора \hat{s}^+ , рассчитанные в $(4 - p - 1)$ -м и p -м порядке по полю электромагнитной волны F_0 соответственно.

Для упрощения расчетов рассмотрим нелинейную поляризацию для случая трехуровневой системы с дискретными уровнями (например, квантовой точки или локального центра), в которой двухфотонному резонансу соответствует переход между уровнями $|0\rangle$ и $|1\rangle$,

т. е. $E_1 - E_0 = 2\hbar\omega$ (рис. 1). В дальнейшем рассмотрим также поглощение в трехзонной модели электронной структуры одно- или двумерной системы или объемного кристалла (рис. 2), причем зоны (или подзоны размерного квантования) будем рассматривать в виде совокупности невзаимодействующих трехуровневых систем. Будем предполагать, что разрешены переходы между состояниями $|0\rangle$ и $|2\rangle$, а также между состояниями $|2\rangle$ и $|1\rangle$. Так, например, в случае квантовой ямы в роли состояния $|0\rangle$ может быть первая подзона размерного квантования в яме для дырок, в роли состояния $|1\rangle$ – вторая подзона размерного квантования в яме для электронов, а в роли состояния $|2\rangle$ – первая подзона размерного квантования в яме для электронов.

3. Аналитические выражения для поглощенной энергии

Предположим, что световой импульс имеет гауссову форму

$$F_0(t) = F_0^0 \exp \left[-\frac{(t-t_0)^2}{\sigma} \right], \quad (11)$$

где σ представляет собой квадрат длительности импульса.

Представим оператор эволюции системы (хронологически упорядоченную экспоненту) в виде разложения в ряд:

$$\hat{s} = \hat{T} \exp \left\{ \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 e^{i\hat{H}_0 t_1} H'_{t_1} e^{-i\hat{H}_0 t_1} \right\} = \sum_{m=0}^{\infty} \left(\frac{1}{i\hbar} \right)^m \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{m-1}} dt_m H'_{t_1}(t_1) H'_{t_2}(t_2) \dots H'_{t_m}(t_m) \quad (12)$$

или

$$\hat{s} = 1 + \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t e^{i\hat{H}_0 t_1} H'_{t_1} e^{-i\hat{H}_0 t_1} dt_1 + \frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{-\infty}^t e^{i\hat{H}_0 t_1} H'_{t_1} e^{-i\hat{H}_0 t_1} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} e^{i\hat{H}_0 t_2} H'_{t_2} e^{-i\hat{H}_0 t_2} dt_2 + \dots \quad (13)$$

Запишем в явном виде выражение для матричного элемента этого оператора:

$$s_{ij}^{(n)} = \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{1}{i\hbar} \right)^n \int_{-\infty}^t H'_{ik} e^{-i(\omega_{ik} \pm \omega)t_1 - \gamma|t_1|} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} H'_{kl} e^{-i(\omega_{kl} \mp \omega)t_2 - \gamma|t_2|} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} H'_{mj} e^{-i(\omega_{mj} \mp \omega)t_n - \gamma|t_n|} dt_n, \quad (14)$$

где γ – феноменологический параметр затухания (обратное время релаксации в электронной системе).

Как уже отмечалось выше, если пренебречь эффектами переизлучения, в случае двухфотонного резонанса между состояниями $|0\rangle$ и $|1\rangle$ в правой части выражения (7)

должны фигурировать члены третьего порядка по напряженности F_0 электрического поля световой волны. Таким образом, достаточно взять первые четыре слагаемых в разложении оператора эволюции системы (12–14) и вычислить от них матричные элементы:

$$s_{j0}^{(2)} = \frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{-\infty}^t H'_{jk} e^{i(\omega_{jk} - \omega)t_1 - \gamma|t_1|} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} H'_{k0} e^{i(\omega_{k0} - \omega)t_2 - \gamma|t_2|} dt_2, \quad (15)$$

$$s_{0i}^{(0)+} = \delta_{0i},$$

$$s_{0i}^{(1)+} = \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t H'_{0i} e^{-i(\omega_{0i} + \omega)t_1 - \gamma|t_1|} dt_1,$$

$$s_{j0}^{(3)} = \frac{1}{(i\hbar)^3} \int_{-\infty}^t H'_{jk} e^{i(\omega_{jk} + \omega)t_1 - \gamma|t_1|} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} H'_{kl} e^{i(\omega_{kl} - \omega)t_2 - \gamma|t_2|} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} H'_{l0} e^{i(\omega_{l0} - \omega)t_3 - \gamma|t_3|} dt_3,$$

где δ_{0i} – символ Кронекера.

Для вычисления энергии J , поглощенной за время действия сверхкороткого светового импульса, следует проинтегрировать выражение для поглощенной мощности по времени от начала до конца импульса. С учетом формы импульса (11) интегрирование можно распространить на область от $-\infty$ до $+\infty$.

Таким образом,

$$J = -\omega L \int_{-\infty}^{\infty} Q^{(2)} dt. \quad (16)$$

Как следует из формул (10)–(15), подынтегральное выражение в правой части формулы (16) состоит из двух слагаемых

$$Q^{(2)} = Q_1^{(2)} + Q_2^{(2)}, \quad (17)$$

где

$$Q_1^{(2)} = H'_{02} e^{-i(\omega_{02} + \omega)t} s_{20}^{(3)} s_{00}^{+(0)}, \quad (18)$$

$$Q_2^{(2)} = H'_{21} e^{-i(\omega_{21} + \omega)t} s_{10}^{(2)} s_{02}^{(1)+}.$$

Проинтегрируем отдельно каждое из слагаемых $Q_1^{(2)}$ и $Q_2^{(2)}$. Следует иметь в виду, что мы рассматриваем импульсы с длительностями, меньшими времен релаксации в электронной подсистеме. Это означает, что $2\gamma\sigma^{1/2} < 1$. Кроме того, очевидно, что в рассматриваемой ситуации выполняется условие $\gamma \ll \omega$. Полагаем, что вектор поляризации световой волны направлен вдоль оси z . Интегрирование в (16) оказывается технически весьма сложным. В случаях, когда интегралы соответствуют переходам в нерезонансные виртуальные состояния, для них удастся получить сравнительно простые приближенные выражения. В противном случае, когда интегралы соответствуют переходам в резонансные состояния, сколько-нибудь обзримый результат удастся получить, лишь комбинируя аналитические и численные аппроксимации².

В результате весьма трудоемких вычислений получают следующие приближенные формулы:

² Для поиска и подбора этих аппроксимаций использовалась программа Wolfram Mathematica 8.0.

$$J_1 = - \int_{-\infty}^{\infty} Q_1^{(2)} dt \approx n_0 \omega \frac{32\sqrt{10}e^4 \pi W^2}{c^2 \hbar^3 \varepsilon_\infty} \frac{(z_{20} z_{21})^2}{(\omega_{20} - \omega)^2} \times \exp\left[-\frac{11}{8} \gamma \sqrt{\sigma}\right] \exp\left[-\frac{\sigma \omega_1^2}{2\sqrt{\pi}}\right], \quad (19)$$

$$J_2 = - \int_{-\infty}^{\infty} Q_2^{(2)} dt \approx n_0 \omega \frac{32\sqrt{10}e^4 \pi W^2}{c^2 \hbar^3 \varepsilon_\infty} \frac{(z_{20} z_{21})^2}{(\omega_{20} - \omega)^2} \times \exp\left[-\frac{(1+3\sqrt{14})}{3(\sqrt{2\pi})} \gamma \sqrt{\sigma}\right] \exp\left[-\frac{\sigma \omega_1^2}{2\sqrt{\pi}}\right],$$

где $\omega_{ji} \equiv (E_j - E_i)/\hbar$ – частоты переходов между j -м и i -м состояниями в электронной системе, $\omega_1 = 2\omega - \omega_{10}$ – величина расстройки двухфотонного резонанса, причем $\omega_1 \ll 2\omega$; z_{20} и z_{21} – матричные элементы оператора координаты, e – заряд электрона, c – скорость света в вакууме, ε_∞ – высокочастотная диэлектрическая проницаемость материала, W – полная энергия светового импульса, n_0 – количество трехуровневых систем (квантовых точек или примесных атомов) в единице объема вещества. При актуальных значениях параметров задачи формулы (19) дают совпадение с результатами проведенных численных расчетов с точностью до единиц процентов. Полная поглощенная энергия $J = J_1 + J_2$ определяется уравнением

$$J \approx n_0 \omega \frac{32\sqrt{10}e^4 \pi W^2}{c^2 \hbar^3 \varepsilon_\infty} \frac{(z_{20} z_{21})^2}{(\omega_{20} - \omega)^2} \exp\left[-\frac{\sigma \omega_1^2}{2\sqrt{\pi}}\right] \times \left\{ \exp\left[-\frac{11}{8} \gamma \sqrt{\sigma}\right] + \exp\left[-\frac{(1+3\sqrt{14})}{3\sqrt{2\pi}} \gamma \sqrt{\sigma}\right] \right\}. \quad (20)$$

Видно, что величины J_1 и J_2 различаются только показателем степени одной из экспонент (два слагаемых в фигурных скобках в правой части формулы (20)). Это различие практически оказывается не очень существенным, так как в случае световых импульсов с длительностями, меньшими времен релаксации, показатели этих экспонент малы по сравнению с единицей.

В случае межзональных переходов между l -м и m -м состояниями в одной квантовой яме (например в яме для электронов) матричные элементы координаты определяются выражением

$$z_{lm} = -\frac{4a}{\pi^2} \frac{lm}{(l^2 - m^2)^2} [1 - (-1)^{l+m}]. \quad (21)$$

В формуле (21) a обозначает ширину квантовой ямы. В случае межзональных переходов в кванто-

вых ямах, т. е. переходов между l -м состоянием в яме для дырок и m -состоянием в яме для электронов, матричный элемент координаты имеет вид

$$z_{vl,cm} = z_{vc} \delta_{ml}, \quad (22)$$

где z_{vc} – обычный межзональный матричный элемент оператора координаты, построенный на блоховских волновых функциях валентной зоны и зоны проводимости объемного кристалла. В рамках известной кейновской модели зонной структуры полупроводников (см., например, [24]) может быть получена следующая оценка:

$$z_{vc} \approx \hbar \sqrt{\frac{3}{2} \left(\frac{1}{m_c} + \frac{1}{m} \right) \frac{(E_g + \Delta_{SO})}{E_g (3E_g + 2\Delta_{SO})}}, \quad (23)$$

где E_g – ширина запрещенной зоны (зазор между верхней валентной зоной v и нижней зоной проводимости c), Δ_{SO} – величина спинорбитального расщепления потолка валентной зоной.

Из формул (19) и (20) видно, что зависимость поглощенной световой энергии от расстройки двухфотонного резонанса ω_1 имеет характер гауссовой кривой:

$$|J(\omega_1)| \sim \exp(-\alpha \omega_1^2).$$

Аналогичную форму имеет и зависимость от длительности импульса τ_i : при фиксированной расстройке двухфотонного резонанса ω_1 –

$$|J(\tau_i)| \sim \tau_i^0 \exp(-\beta \tau_i^2),$$

при нулевой расстройке частоты $\omega_1 = 0$ (точный двухфотонный резонанс в системе с дискретными уровнями) –

$$|J(\tau_i)| \sim \tau_i^0.$$

Здесь следует заметить, что при фиксированной энергии W в импульсе в случае длинных импульсов ($\tau_i \gamma \gg 1$) поглощаемая энергия

$$J(\tau_i) \sim \tau_i^{-1} = \sigma^{-1/2}.$$

В самом деле, в квазистационарном случае поглощенная энергия пропорциональна квадрату напряженности поля световой волны и длительности взаимодействия, т. е. при фиксированной энергии W в импульсе имеем

$$(F_0^0)^2 = \frac{8W}{c\sigma^{1/2}} \left(\frac{2\pi}{\varepsilon_\infty} \right)^{1/2}. \quad (24)$$

Таким образом, для систем с дискретными уровнями, в том числе экситонов в структурах

различной размерности, квантовых точек, примесных центров и т. д., нелинейный отклик на сверхкороткие и более длинные лазерные импульсы в условиях многофотонного резонанса демонстрирует принципиальные различия.

4. Численные оценки

Для численной оценки масштабов поглощенной энергии (при фиксированной энергии в импульсе) и построения графиков зададим следующие значения параметров: $\omega_{10} = 2,1 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$ – частота перехода, на котором имеет место двухфотонный резонанс; $\gamma = 2 \times 10^{12} \text{ с}^{-1}$ – феноменологический параметр затухания (обратное время релаксации); $W = 10^{-3} \text{ эрг/см}^2$ – энергия, переносимая одним импульсом через единицу поверхности

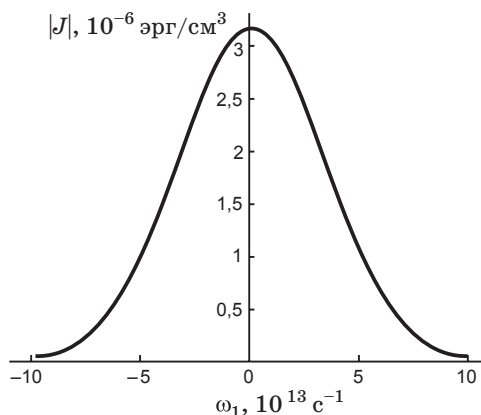


Рис. 3. Зависимость энергии $|J|$, поглощенной из импульса в единице объема, от отстройки от резонанса ω_1 в системе с дискретными уровнями при $\sqrt{\sigma} = 4 \times 10^{-14} \text{ с}$.

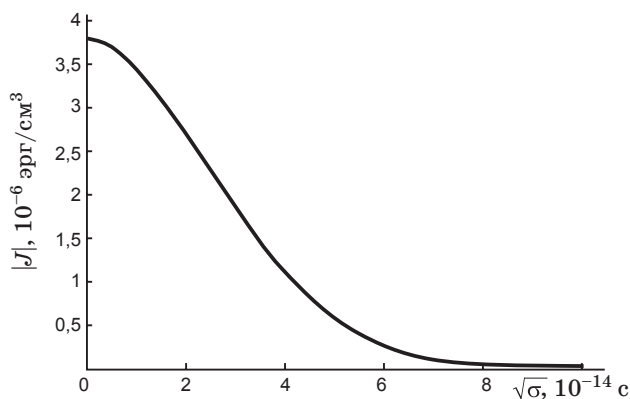


Рис. 4. Зависимость энергии $|J|$, поглощенной из импульса в единице объема в системе с дискретными уровнями, от длительности импульса $\sqrt{\sigma}$ при $\omega_1 = 5 \times 10^{13} \text{ с}^{-1}$.

(фиксирована); $\epsilon_\infty = 3,5$ – высокочастотная диэлектрическая проницаемость материала; $z_{21} = 3 \times 10^{-7} \text{ см}$, $z_{20} = 3 \times 10^{-8} \text{ см}$ – матричные элементы переходов; $\omega_{21} = 4,9 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\omega_{20} = 7,0 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$ – частоты переходов между состояниями электронной системы; $n_0 = 10^{18} \text{ см}^{-3}$ – количество трехуровневых атомов (квантовых точек) в единице объема, $\mu = 0,3m$ – приведенная масса электрона и дырки (понадобится в дальнейшем, при расчете поглощения в моделях зонной структуры).

Результаты расчетов представлены на рис. 3 и рис. 4.

5. Нелинейный отклик гетероструктур с непрерывным спектром при двухфотонном резонансе

В случае межзонных (межподзонных) переходов можно приближенно представить электронную систему кристалла в виде совокупности невзаимодействующих трехуровневых систем, каждая из которых характеризуется своим значением волнового вектора \mathbf{k} (трех-, двух- или одномерного) и соответствующими ему энергиями $E_i(\mathbf{k})$. Очевидно, что такой подход является приближенным, но факторы, нарушающие, в принципе, его адекватность, оказываются в рассматриваемой ситуации несущественными. К числу таких факторов относится неопределенность квазиимпульса электрон-дырочных пар, возникающая при двухфотонном межзонном переходе под действием сверхкороткого светового импульса. Однако учет актуальных непрямых переходов ведет в данном случае к тем же результатам, какие получаются для системы с прямыми переходами, связывающими состояния с одинаковыми \mathbf{k} в разных зонах (или подзонах).

Таким образом, в случае межзонного (межподзонного) двухфотонного резонанса в кристаллах при вычислении нелинейной поляризации среды необходимо провести в правой части (20) суммирование по электронным состояниям зоны Бриллюэна, которые характеризуются различными значениями волнового вектора \mathbf{k} и, следовательно, различными значениями расстройки двухфотонного резонанса. Приближенное интегрирование по \mathbf{k} -пространству выполняется методом перевала.

Заменим в формулах (19) и (20) переменную ω_1 на δ , так чтобы величина ω_1 обозначала отстройку от резонанса минимальной частоты межзонного (межподзонного) перехода, кото-

рую, в свою очередь, будем теперь обозначать через ω_{10} как $\omega_1 = 2\omega - \omega_{10}$. Тогда имеем

$$\delta = \omega_1 - \frac{\hbar k^2}{2\mu}, \quad (25)$$

где $\mu = m_c m_v / (m_c + m_v)$ – обратная приведенная масса электрона и дырки. Обозначив через D размерность структуры ($D = 3$ в случае объемных кристаллов, $D = 2$ в случае квантовых ям и $D = 1$ в случае квантовых проводов), получим

$$\begin{aligned} J^{(D)} &= 2\theta_D \int_0^\infty dk (k^2)^{(D-1)/2} J(k) \approx \\ &\approx \theta_D \frac{32\sqrt{10}e^4 \pi W^2 \sigma}{c^2 \hbar^3 \varepsilon_\infty} \frac{(z_{20} z_{21})^2}{(\omega_{20} - \omega)^2} \times \\ &\times \left[\exp\left(-\frac{11}{8} \gamma \sqrt{\sigma}\right) + \exp\left[-\frac{(1+3\sqrt{14})}{3\sqrt{2}\pi} \gamma \sqrt{\sigma}\right] \right] \times \\ &\times \int_0^\infty dk (k^2)^{(D-1)/2} \exp\left[-\frac{\sigma \delta^2}{2\sqrt{\pi}}\right]. \end{aligned} \quad (26)$$

где $\theta_1 = \theta_2 = 1/2\pi$, $\theta_3 = 1/2\pi^2$.

Интегрирование в (26) выполняем приближенно, воспользовавшись методом перевала. Можно показать, что критерием применимости метода перевала в данном случае является выполнение условия

$$4\sigma\omega_1^2/\sqrt{\pi} \gg 1, \quad (27)$$

справедливого лишь в случае, когда точка двухфотонного резонанса в зоне Бриллюэна (в D -мерном k -пространстве) на основной (центральной) частоте светового импульса расположена заметно выше края фундаментальной полосы в объемных кристаллах или границы межподзонного поглощения в квантовых ямах или проводах. Так, при длительностях импульсов в десятки фемтосекунд отстройки должны составлять, по меньшей мере, десятки мэВ.

Выполняя приближенно интегрирование, получаем следующие результаты (обозначения далее везде такие же, как в формулах (19) и (20)).

В случае объемных кристаллов ($D = 3$)

$$\begin{aligned} J^{(3)} &= \frac{\omega}{\sqrt{\sigma}} \frac{64\sqrt{10}e^4 \mu^{3/2} W^2}{c^2 \pi^{1/4} \hbar^{9/2} \varepsilon_\infty} \frac{(z_{20} z_{21})^2}{(\omega_{20} - \omega)^2} \times \\ &\times \left[\exp\left(-\frac{11}{8} \gamma \sqrt{\sigma}\right) + \exp\left[-\frac{(1+3\sqrt{14})}{3\sqrt{2}\pi} \gamma \sqrt{\sigma}\right] \right] \sqrt{\omega_1}. \end{aligned} \quad (28)$$

Отметим, что зависимость поглощенной энергии от ω_1 (отстройки резонанса от границы

фундаментальной полосы) получается такой же, как в случае квазистационарного поля –

$$J^{(3)} \propto \sqrt{\omega_1},$$

что соответствует плотности электронных состояний при $D = 3$. Зависимость поглощенной энергии от длительности действия поля получается (если не считать слабой зависимости экспоненциальных слагаемых в фигурных скобках в правой части формулы (28)) такой же, как в случае квазистационарного поля. Здесь ситуация отличается от случая системы с дискретными уровнями. Это становится понятным, если принять во внимание следующие соображения. При выполнении условия (27) в случае непрерывного электронного спектра практически все спектральные компоненты, формирующие сверхкороткий световой импульс, участвуют в резонансном двухфотонном поглощении на межзонных переходах, каждая фурье-компонента – в своей точке зоны Бриллюэна. Поэтому ситуация во многом оказывается сходной со случаем стационарного поглощения монохроматического света. Однако эта ситуация меняется, когда отстройка двухфотонного резонанса оказывается совсем малой и условие (27) не выполняется. К сожалению, аналитических выражений для поглощенной энергии в этом случае получить не удастся.

При тех же исходных данных и численных параметрах, что и в разд. 4, построим графики зависимости полной поглощенной энергии $J^{(3)}$ от отстройки резонанса (рис. 5) и длительности импульса (рис. 6).

Зависимости поглощенной энергии от длительности фемтосекундных импульсов в двух-

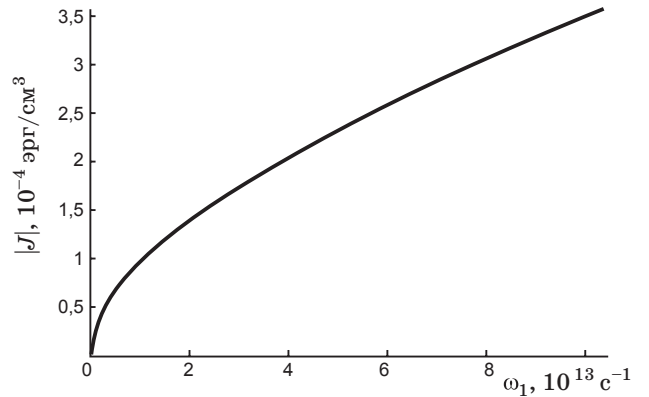


Рис. 5. Зависимость энергии $|J^{(3)}|$, поглощенной из импульса в единице объема в трехмерной системе, от отстройки от резонанса.

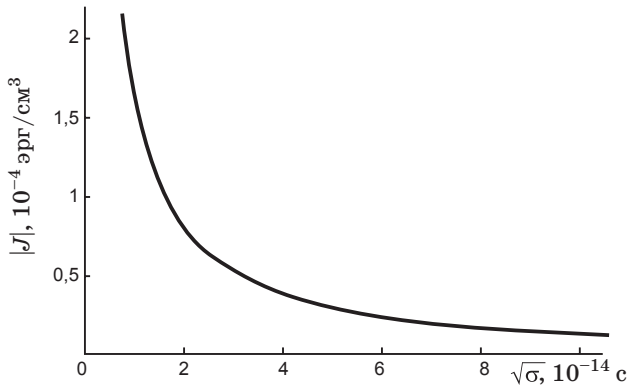


Рис. 6. Зависимость энергии $|J^{(3)}|$, поглощенной из фемтосекундного лазерного импульса в единице объема в трехмерной системе, от длительности импульса.

и одномерных структурах при достаточно большой отстройке от двухфотонного резонанса носят такой же характер, как в объемных кристаллах. Объяснение этого факта такое же, как и в случае объемных материалов.

Зависимости поглощенной энергии от отстройки от резонанса ω_1 в случае двух- и одномерных структур (при большой отстройке частоты света от двухфотонного резонанса) снова совпали с их квазистационарными аналогами, т. е. $|J| \approx \text{const}$ и $|J| \sim \omega^{-1/2}$ соответственно.

Для случая двумерных структур (квантовые ямы, $D = 2$) имеем

$$J^{(2)} = \frac{\omega}{\sqrt{\sigma}} \frac{64\sqrt{5}\pi^{7/4}e^4\mu W^2}{c^2\hbar^4\varepsilon_\infty} \frac{(z_{20}z_{21})^2}{(\omega_{20} - \omega)^2} \times \left\{ \exp\left(-\frac{11}{8}\gamma\sqrt{\sigma}\right) + \exp\left[-\frac{(1+3\sqrt{14})}{3\sqrt{2}\pi}\gamma\sqrt{\sigma}\right] \right\}. \quad (29)$$

На рис. 7 видна слабая линейная зависимость поглощенной энергии от расстройки частоты ω_{10} , связанная с тем, что удвоенная частота света 2ω представлена как сумма резонансной частоты и расстройки, т. е. $2\omega = \omega_{10} + \omega_1$. Фактически, при рассмотрении всей совокупности межзонных переходов, получаем ту же характерную лесенку в спектре поглощения, соответствующую двумерной плотности электронных состояний, что и в квазистационарном случае.

Для одномерного случая (квантовые проводки, $D = 1$) имеем

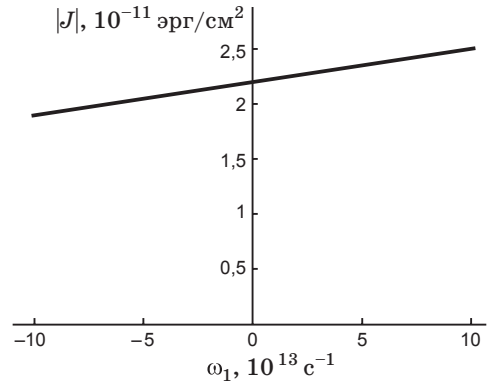


Рис. 7. Зависимость энергии $|J^{(2)}|$, поглощенной из фемтосекундного лазерного импульса в двумерной системе, от отстройки от резонанса. Для получения энергии, поглощенной в единице объема, эту величину следует умножить на величину n_{q2} , равную числу квантовых ям на единицу длины в направлении оси роста гетероструктуры, перпендикулярном плоскостям квантовых ям.

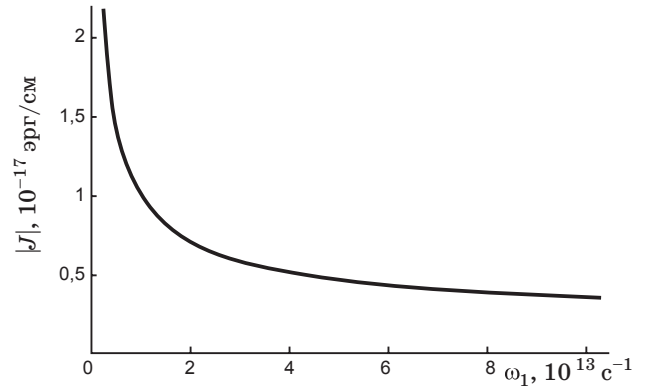


Рис. 8. Зависимость энергии $|J^{(1)}|$, поглощенной из фемтосекундного лазерного импульса в одномерной системе, от отстройки от резонанса. Для получения энергии, поглощенной в единице объема, эту величину следует умножить на величину n_{q1} , равную числу квантовых проводков на единицу площади в плоскости, перпендикулярной направлению проводков.

$$J_1^{(1)} = \frac{\omega}{\sqrt{\sigma}} \frac{32\sqrt{10}e^4\mu^{1/2}W^2}{c^2\hbar^{7/2}\varepsilon_\infty} \frac{(z_{20}z_{21})^2}{(\omega_{20} - \omega)^2} \frac{\pi^{3/4}}{\sqrt{\omega_1}} \times \left\{ \exp\left(-\frac{11}{8}\gamma\sqrt{\sigma}\right) + \exp\left[-\frac{(1+3\sqrt{14})}{3\sqrt{2}\pi}\gamma\sqrt{\sigma}\right] \right\}. \quad (30)$$

Здесь так же, как и в квазистационарном случае, проявляется характерное для движения электрона в квантующем магнитном поле свойство плотности электронных состояний – наличие особенности типа “квадратный корень из энергии” в знаменателе (см. рис. 8).

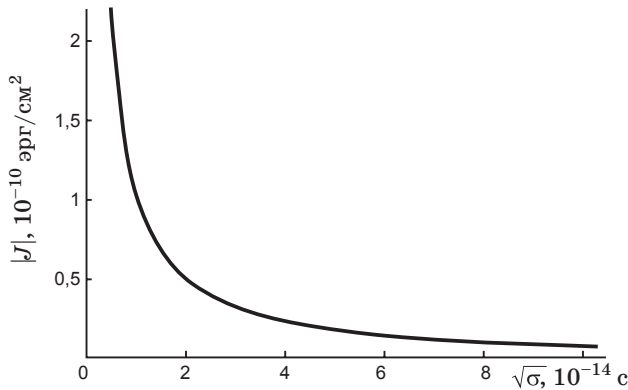


Рис. 9. Зависимость энергии $|J^{(2)}|$, поглощенной из импульса в двумерной системе, от длительности импульса. См. также подпись к рис. 7.

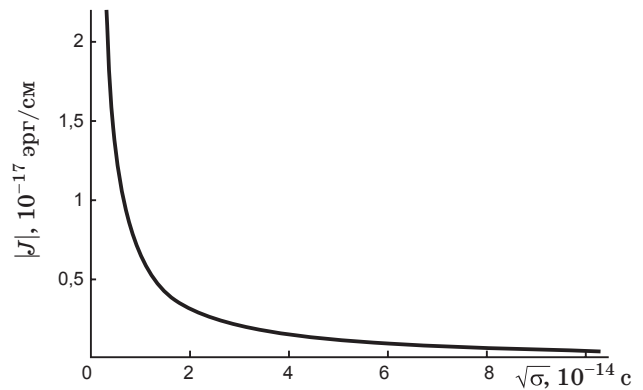


Рис. 10. Зависимость энергии $|J^{(1)}|$, поглощенной из импульса в одномерной системе, от длительности импульса. См. также подпись к рис. 8.

Зависимости поглощенной энергии от длительности импульса для двух- и одномерной систем приведены на рис. 9 и 10 соответственно.

6. Заключение

В представленной работе выполнен теоретический анализ нелинейного отклика объемных материалов и гетероструктур с квантовыми ямами, проводниками и точками на сверхкороткие световые импульсы с длительностями, меньшими времен внутризонной (внутриподзонной) релаксации импульса электрона или дырки. Получены аналитические выражения для динамических нелинейных поляризуемостей, которыми определяется энергия, поглощенная из сверхкороткого светового импульса структурами различной размерности в условиях двухфотонного резонанса на переходах между дискретными состояниями либо между подуровнями (подзонами) размерного

квантования. Получены зависимости поглощенной энергии от расстройек двухфотонных резонансов для наноструктур различной размерности. Аналогичным образом для структур различной размерности получены зависимости поглощенной световой энергии от длительности сверхкороткого импульса при фиксированной энергии в импульсе. Показано, что для нульмерных объектов (квантовые точки, примесные центры) эти зависимости существенно отличаются от тех, которые имеют место в случае относительно длинных импульсов. Это обстоятельство следует иметь в виду при интерпретации экспериментальных данных по нелинейному отклику гетероструктур с квантовыми ямами на сверхкороткие световые импульсы.

Работа выполнена при поддержке аналитической ведомственной целевой программы “Развитие научного потенциала высшей школы” (проекты 2.1.1/9200, 9653) и РФФИ (грант 09-02-00223).

* * * * *

ЛИТЕРАТУРА

1. Cerullo G., De Silvestri S., Nisoli M., Sartania S., Stagira S., Svelto O. Few-optical-cycle laser pulses: from high peak power to frequency tenability // IEEE J. of Selected Topics in Quantum Electronics. 2000. V. 6. № 6. P. 948–958.
2. Lenzner M., Kruger J., Sartania S., Cheng Z., Spielmann C.H., Mourou G., Kautek W., Krausz F. Femtosecond optical breakdown in dielectric // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 80. № 18. P. 4076–4079.
3. Tien A.C., Backus S., Kapteyn H., Murname M., Mourou G. Short-Pulse Laser Damage in Transparent Materials as a Function of Pulse Duration // Phys. Rev. Lett. 1999. V. 82. P. 3883–3886.
4. Quere F., Guizard S., Martin Ph. Time-resolved study of laser induced breakdown in dielectrics // Europhys. Lett. 2001. V. 56. P. 138–144.
5. Simanovskii D.M., Schwettman H.A., Lee H., Welch A.J. Midinfrared optical breakdown in transparent dielectrics // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 91. P. 107601 (4 p.).

6. *Efimov O., Juodkazis S., Misawa H.* Intrinsic single- and multiple-pulse laser-induced damage in silicate glasses in the femtosecond-to-nanosecond region // *Phys. Rev. A.* 2004. V. 69. P. 042903 (7 p.).
7. *Winkler S.W., Burakov I.M., Stoian R., Bulgakova N.M., Husakou A., Mermillod-Blondin A., Rosenfeld A., Ashkenasi D., Hertel I.V.* Transient response of dielectric materials exposed to ultrafast laser radiation // *Appl. Phys. A.* 2006. V. 84. P. 413–422.
8. *Bonze J., Bachelier G., Siegel J., Solis J., Sturm H.* Time- and space-resolved dynamics of ablation and optical breakdown induced by femtosecond laser pulses in indium phosphide // *J. Appl. Phys.* 2008. V. 103. P. 054910 (6 p.).
9. *Degani M.H., Hipolito O.* Electron-phonon interaction effects in a quasi-two-dimensional electron gas in the GaAs-Ga_{1-x}Al_xAs heterostructure // *Phys. Rev. B.* 1987. V. 35. № 14. P. 7717–7720.
10. *Lassnig R.* Polar optical interface phonons and Fröhlich interaction in double heterostructures // *Phys. Rev. B.* 1984. V. 30. № 12. P. 7132–7137.
11. *Ridley B.K.* Electron scattering by confined LO polar phonons in a quantum well // *Phys. Rev. B.* 1989. V. 39. № 8. P. 5282–5286.
12. *Ridley B.K.* Electron-hybridon interaction in a quantum well // *Phys. Rev. B.* 1993. V. 47. № 8. P. 4592–4594.
13. *Rücker H., Molinari E., Lugli P.* Electron-phonon interaction in quasi-two-dimensional systems // *Phys. Rev. B.* 1991. V. 44. № 7. P. 3463–3466.
14. *Nash K.J.* Electron-phonon interactions and lattice dynamics of optic phonons in semiconductor heterostructures // *Phys. Rev. B.* 1992. V. 46. № 12. P. 7723–7744.
15. *Tsuchia T., Ando T.* Electron-phonon interaction in GaAs/AlAs superlattices // *Phys. Rev. B.* 1993. V. 47. № 12. P. 7240–7252.
16. *Trallero-Giner C., Comas F.* Electron-LO-phonon interaction in semiconductor double heterostructures // *Phys. Rev. B.* 1988. V. 37. № 9. P. 4583–4588.
17. *Trallero-Giner C., Comas F., Garsia-Moliner F.* Polar optical modes and electron-phonon interaction in semiconductor nanostructures // *Phys. Rev. B.* 1994. V. 50. № 3. P. 1755–1759.
18. *Gondar J.L., Comas F., Castro F.* Scattering rates in a semiconductor heterostructure: the effects of intersubband transitions // *Physica B.* 2000. V. 292. P. 354–358.
19. *Перлин Е.Ю., Федоров А.В.* Двухфотонное поглощение, контролируемое резонансным оптическим штарк-эффектом в кристаллах и квантовых наноструктурах // *Опт. и спектр.* 1995. Т. 79. № 2. С. 445–456.
20. *Перлин Е.Ю.* Многофотонная генерация электрон-дырочных пар в квантовой яме // *Опт. и спектр.* 1997. Т. 82. № 2. С. 259–265.
21. *Перлин Е.Ю.* Нелинейные восприимчивости квантовых точек // *Опт. и спектр.* 2000. Т. 88. № 3. С. 439–445.
22. *Перлин Е.Ю.* Нелинейно-оптические поляризационные эффекты в материале с квантовыми точками // *Опт. и спектр.* 2000. Т. 88. № 6. С. 987–992.
23. *Перлин Е.Ю.* Оптический штарк-эффект при переходном двойном резонансе в полупроводниках // *ЖЭТФ.* 1994. Т. 105. № 1. С. 186–197.
24. *Маделунг О.* Физика полупроводниковых соединений элементов III и V групп. М.: Мир, 1967. 480 с.