Возбуждение когерентных акустических фононов фемтосекундным импульсом

© Ю.Е. Лозовик, В.А. Шарапов

Институт спектроскопии Российской академии наук,
142092 Троицк, Московская обл., Россия

E-mail: lozovik@isan.troitsk.ru

(Поступила в Редакцию 14 октября 2002 г.)

Рассматривается возбуждение фемтосекундным импульсом когерентных акустических фононов в сверхрешетках или слоистых материалах. В сверхрешетках когерентные акустические фононы могут возбуждаться с волновым вектором $Q = 2\pi/a$, где a — период сверхрешетки. Приведены оценки числа и статистических свойств когерентных фононов.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований и Минпромнауки.

В ряде экспериментов [1–5] продемонстрирована возможность возбуждения когерентных оптических фононов в твердых телах с помощью ультракоротких лазерных импульсов. В частности, когерентные оптические фононы были возбуждены в полупроводниках GaAs [1], Ge [2], GaP и ZnSe [3], пористом кремнии [4], сверхпроводнике $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ [5], а также в полуметаллах (висмуте и сурьме) [2]. Когерентные фононы, которые могут возбуждаться в указанных материалах, имеют волновой вектор $q = 0$ [6], т. е. могут возбуждаться лишь оптические фононы. Однако это утверждение справедливо лишь для систем с однородной плотностью электронов. Далее показано, что в слоистых системах, например в сверхрешетках, можно возбудить также и когерентные акустические фононы с волновым вектором q, отличным от нуля.

Рассмотрим гамильтониан системы электронов и фононов в двухзонном слоистом полупроводнике или в сверхрешетке

$$\hat{H} = \sum_{\alpha,k} \varepsilon_{\alpha,k} c^+_{\alpha,k} c_{\alpha,k} + \sum_q \hbar\omega_q b^+_q b_q + V_{\text{int}}, \tag{1}$$

где $c^+_k(b^+_q)$ и $c_k(b_q)$ — соответственно операторы рождения и уничтожения электрона с импульсом k (фонона с волновым вектором q), $\alpha = 1, 2$ — номер зоны (индекс 1 соответствует валентной зоне, индекс 2 — зоне проводимости), V_{int} — электрон-фононное взаимодействие, причем

$$V_{\text{int}} = V_0 = \sum_{\alpha,k,q} g^\alpha_0 (b_q + b^+_{-q}) c^+_{\alpha k+q} c_{\alpha k} \tag{2}$$

в случае взаимодействия электронов с оптическими фононами и

$$V_{\text{int}} = V_a = \sum_{\alpha,k,q} g^\alpha_a (b_q - b^+_{-q}) c^+_{\alpha k+q} c_{\alpha k} \tag{3}$$

в случае взаимодействия с акустическими фононами. Связь деформационного потенциала U_d со смещением решетки $u(r)$ различна для оптических и акустических фононов. В случае оптических фононов U_d пропорционален смещению решетки $u(r)$, а в случае акустических $U_d \sim \nabla u(r)$. Константа электрон-фононного взаимодействия g_0 практически не зависит от k и q, а g_a зависит только от q, причем

$$g_a = -i\sigma \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho V \omega_q}} |q|, \tag{4}$$

где ρ и V — плотность и объем тела сответственно, σ — константа.

Мощный фемтосекундный импульс с характерной энергией фотонов $\hbar\omega$, большей ширины запрещенной зоны, при мгновенной мощности $\sim 10^{12}\,\text{W/cm}^2$ возбуждает вблизи поверхности твердого тела, на глубине экстинкции, большое число электронов ($\sim 10^{20}\,\text{cm}^{-3}$), перешедших из валентной зоны в зону проводимости, а также (для металлов) из зоны проводимости в высоколежащие энергетические состояния, что приводит к резкому изменению электрон-фононного взаимодействия. Электрон-фононное взаимодействие (2) или (3) можно рассматривать как внешнюю силу, действующую на осциллятор, соответствующий нормальной моде с волновым вектором q. Подставляя в (3) вместо b_q и b^+_q

$$b_q = \sqrt{\frac{\omega_q}{2\hbar}} x_q + i \frac{p_q}{\sqrt{2\hbar\omega_q}}, \quad b^+_q = \sqrt{\frac{\omega_q}{2\hbar}} x_q - i \frac{p_q}{\sqrt{2\hbar\omega_q}}, \tag{5}$$

получим (полагая $V = 1$)

$$V_a = g_a \sqrt{\frac{\omega_q}{2\hbar}} (\rho_q - \rho^+_q) x_g - g_a \sqrt{\frac{1}{2\hbar\omega_q}} (\rho_q + \rho^+_q) p_q, \tag{6}$$

где $\rho_q = \sum_k c^+_{k+q} c_k$ — фурье-экспонента функции плотности электронов. Основной вклад в электрон-фононное взаимодействие вносят электроны зоны проводимости; поэтому под ρ_q будем подразумевать фурье-компоненту функции плотности электронов в зоне проводимости (иначе говоря, электронов, возбужденных фемтосекундным импульсом). В сверхрешетке функцию плотности электронов можно аппроксимировать функцией

$$\rho(x) = \rho_0 + \rho_1 \sin(Qx), \tag{7}$$

где $Q = 2\pi/a$, a — период сверхрешетки. В этом случае $\rho_Q = -\frac{i}{2}\rho_1$, т.е. $\mathrm{Re}(\rho_Q) = 0$, и гамильтониан осциллятора, соответствующего моде с волновым вектором $q = Q$, имеет вид

$$H_q = \frac{p_q^2}{2} + \frac{\omega_q^2 x_q^2}{2} + f_q x_q, \tag{8}$$

где

$$f_q = i\rho_1 g_a \sqrt{\frac{\omega_Q}{2\hbar}}. \tag{9}$$

Для моды с $q = 0$ имеет место аналогичная ситуация. Для остальных мод $f_q = 0$ (как следует из (7)), поэтому в дальнейшем под индексом q будем подразумевать $q = 0$ или $q = Q$.

Возбуждение происходит при временах порядка длительности фемтосекундного лазерного импульса (например, порядка нескольких десятков фемтосекунд). Электронные возбуждения обычно релаксируют при временах, меньших периодов оптических и тем более акустических фононов (например, порядка сотен фемтосекунд для металлов и полупроводников). После релаксации электронов взаимодействие $V_a(V_0)$ (т.е. соответствующая ему сила f_q) возвращается к равновесному значению. В рамках гамильтонова формализма описанный процесс аналогичен появлению в момент времени $t = 0$ (момент падения лазерного импульса на образец) эффективной силы f_q и ее исчезновению в момент времени $t = t_0$, где t_0 — время релаксации электронов. Следует отметить, что ρ_Q в выражении (9) для f_q есть фурье-компонента функции плотности возбужденных электронов. Как уже отмечалось, время возбуждения электронов значительно меньше $1/\omega_q$, и, следовательно, можно считать, что возбуждение электронов происходит практически мгновенно. В таком приближении гамильтониан осциллятора имеет вид (рассмотрим случай $q = Q$)

$$H_q(t) = \frac{p_q^2}{2} + \frac{\omega_q^2 x_q^2}{2} + f_q(t) x_q,$$
$$f_q(t) = f_q\big(\theta(t) - \theta(t - t_0)\big), \tag{10}$$

где f_q дается выражением (9). Следовательно, мы свели задачу к рассмотрению квантовой системы с квадратичным гамильтонианом, зависящим от времени. Такие системы можно изучать с помощью метода интегралов движения [7]. Используя этот метод, можно найти эволюцию n-го стационарного состояния $\psi_n(x)$ системы с гамильтонианом (10) после возникновения силы f_q,

$$\psi_n(x,t) = \frac{1}{\sqrt{2^n n!}} \frac{1}{\sqrt{x_0\sqrt{\pi}}} \exp\bigg(-\frac{x^2}{2x_0^2} + \delta_0(t)x - \frac{y_0^2(t)x_0^2}{2} + i\varphi(t)\bigg) H_n\bigg(\frac{x + y_0(t)}{x_0}\bigg), \tag{11}$$

где введены следующие обозначения:

$$\delta_0(t) = \mathrm{Re}\big(\delta_0(t)\big) + i\,\mathrm{Im}\big(\delta_0(t)\big)$$
$$= \begin{cases} -\frac{f_q}{\hbar\omega_q}\big(1 - \exp(-i\omega_q t)\big), & 0 \leqslant t \leqslant t_0, \\ -\frac{f_q}{\hbar\omega_q}\big(\exp(i\omega_q t_0) - 1\big)\exp(-i\omega_q t), & t \geqslant t_0, \end{cases} \tag{12}$$

$$y_0(t) = -x_0^2 \mathrm{Re}\big(\delta_0(t)\big), \quad x_0 = \sqrt{\frac{\hbar}{\omega_q}}. \tag{13}$$

Зная функцию $\psi_n(x,t)$, можем вычислить такие характеристики, как смещение равновесного положения атома решетки, вызываемое когерентными фононами, число элементарных возбуждений, родившихся в результате падения фемтосекундного импульса, а также статистические характеристики этих возбуждений. Операторы рождения и уничтожения фононов связаны с оператором смещения решетки стандартным выражением

$$\hat{u}(r) = \sum_q \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho V\omega_q}}\,\big(b_q e^{iqr} + b_q^+ e^{-iqr}\big). \tag{14}$$

Следовательно,

$$\langle\hat{u}(r)\rangle = \sum_q \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho V\omega_q}}\,\big(\langle b_q\rangle e^{iqr} + \langle b_q^+\rangle e^{-iqr}\big). \tag{15}$$

Средние $\langle b_q\rangle$ и $\langle b_q^+\rangle$ легко получить, используя явный вид операторов $\hat{b}_q$ и $\hat{b}_q^+$ (5) и выражение (11) для $\psi_n(x,t)$,

$$\alpha_q = \langle b_q\rangle = \int \psi_n^*(x,t)\bigg(\sqrt{\frac{\omega_q}{2\hbar}}\,x + \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega_q}}\frac{\partial}{\partial x}\bigg)\psi_n(x,t)\,dx. \tag{16}$$

Интеграл (16) можно вычислить с помощью соотношения (см. [8])

$$\int_{-\infty}^{\infty} H_m(x) H_n(\Lambda x + d)\exp(-Mx^2 + cx)\,dx = \sqrt{\frac{\pi}{M}}\exp\bigg(\frac{c^2}{4M}\bigg) H_{mn}^R(y_1, y_2), \tag{17}$$

где

$$R = 2\begin{pmatrix} 1 - \frac{1}{M} & -\frac{\Lambda}{M} \\ -\frac{\Lambda}{M} & 1 - \frac{\Lambda^2}{M} \end{pmatrix}, \tag{18}$$

$$\begin{pmatrix} y_1 \\ y_2 \end{pmatrix} = \frac{1}{2\Big(1 - \frac{(1+\Lambda^2)}{M}\Big)} \begin{pmatrix} \frac{c}{M} + \frac{2\Lambda d}{M} \\ \frac{\Lambda c}{M} - \frac{2}{d}\Big(1 - \frac{1}{M}\Big) \end{pmatrix}. \tag{19}$$

В результате получим

$$\alpha_q = \frac{1}{\sqrt{2}}\,x_0\delta_0(t) \tag{20}$$

для любого n и

$$\langle\hat{u}(r)\rangle = \frac{f_0 x_0}{\sqrt{\rho V}\omega_0^2}\,\mathrm{Re}\big(\delta_0(t)\big) + \frac{f_Q x_0}{\sqrt{\rho V}\omega_Q^2}\,\mathrm{Re}\big(\delta_0(t)\big)\cos(Qr)$$

$$- \frac{f_Q x_0}{\sqrt{\rho V}\omega_Q^2}\,\mathrm{Im}\big(\delta_0(t)\big)\sin(Qr). \tag{21}$$

Число элементарных возбуждений в модах с волновыми векторами $q = 0$ и $q = Q$ после воздействия фемтосекундным импульсом можно определить, вычисляя среднее от оператора числа фононов $N_q = b_q^+ b_q$,

$$\langle N_q\rangle = \langle b_q^+ b_q\rangle$$

$$= \int \psi_n^*(x,t)\left(\frac{\omega_q}{2\hbar}x^2 - \frac{\hbar}{2\omega_q}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2}\right)\psi_n(x,t)dx. \tag{22}$$

Вычислив интеграл (22), получим

$$\langle N_q\rangle = |\alpha_q|^2 + n. \tag{23}$$

Число фононов, возбужденных фемтосекундным импульсом, есть

$$n_{\mathrm{ph}} = \langle N_q\rangle - n = |\alpha_q|^2 = \frac{1}{2}x_0^2|\delta_0(t)|^2. \tag{24}$$

Подставив в (24) выражение (12) для $\delta_0(t)$ при $t \geqslant t_0$, получим окончательное выражение для числа возбужденных когерентных фононов

$$n_{\mathrm{ph}} = \frac{f_q^2}{2\hbar\omega_q}\big(1 - \cos(\omega_q t_0)\big). \tag{25}$$

Теперь определим некоторые статистические параметры системы когерентных фононов. Вычисляя дисперсии $\sigma_{pp} = \langle p^2\rangle - \langle p\rangle^2$, $\sigma_{xx} = \langle x^2\rangle - \langle x\rangle^2$, $\sigma_{xp} = (1/2)\langle xp + px\rangle - \langle x\rangle\langle p\rangle$, получим

$$\sigma_{pp} = \hbar\omega_q(n + 1/2), \quad \sigma_{xx} = \frac{\hbar}{\omega_q}(n + 1/2),$$

$$\sigma_{xp} = 0, \quad \sigma_{pp}\sigma_{xx} = (n + 1/2)^2\hbar^2. \tag{26}$$

Из (26) видно, что чисто когерентные фононы, т. е. фононы, минимизирующие соотношение неопределенностей, возбуждаются лишь из состояния с $n = 0$, т.е. при $T = 0$, где T — температура тела. Приведем некоторые оценки. Полагая $\rho = 5\,\mathrm{g/cm^3}$, $V = 1\,\mathrm{cm^3}$, $\omega_0 = 10\,\mathrm{THz}$, $\omega_Q = 20\,\mathrm{THz}$, $g_0 = 2\cdot 10^{-12}\,\mathrm{eV}$, $\rho_0 = 10^{20}\,\mathrm{cm^{-3}}$, $\rho_Q = 10^{18}\,\mathrm{cm^{-3}}$, $a = 10^{-6}\,\mathrm{cm}$, $g_a = 10^{-13}\,\mathrm{eV}$, получим, что максимальное смещение атома $u_0 \simeq 10^{-3}\,\mathrm{nm}$. Полагая $t_0 \approx 6\cdot 10^{-13}\,\mathrm{s}$, находим для числа возбужденных оптических когерентных фононов $n_{\mathrm{ph}} \sim 10^{21}$ и для числа когерентных акустических фононов $n_{\mathrm{ph}} \sim 10^{17}$.

В настоящей работе мы для качественного описания эффекта генерации акустических фононов ограничилась описанием одного из механизмов генерации, связанного с появлением индуцированной лазерным импульсом мгновенной силы, действующей на соответствующий осциллятор решетки. Описанию других механизмов будет посвящена отдельная публикация.

Список литературы

[1] G.C. Cho, W. Kutt, H. Kurz. Phys. Rev. Lett. **65**, *6*, 764 (1990).
[2] T. Pfeifer, W. Kutt, H. Kurz, H. Scholz. Phys. Rev. Lett. **69**, *22*, 3248 (1992).
[3] W.E. Bron, J. Kuhl, B.K. Rhee. Phys. Rev. B **34**, *10*, 6961 (1986).
[4] А.Л. Добряков, В.А. Караванский, С.А. Коваленко, С.П. Меркулова, Ю.Е. Лозовик. Письма в ЖЭТФ **71**, *7*, 430 (2000).
[5] J.M. Chwalek, C. Uher, J.F. Withaker, G.A. Mourou. Appl. Phys. Lett. **58**, *9*, 980 (1991).
[6] A.V. Kuznetsov, C.J. Stanton. Phys. Rev. Lett. **73**, *24*, 3243 (1994).
[7] V.V. Dodonov, V.I. Man'ko. Invariants and Evolution of Nonstationary Quantum Systems. Proc. of the Lebedev Physical Institute. Nova Science, N.Y. (1989). V. 183.
[8] V.I. Man'ko, A. Wunsche. Quantum Semiclassic Opt. **9**, *3*, 381 (1997).