

02

Поглощение мощного света свободными электронами в кристаллах: внутризонные электрон-фононные осцилляции Раби

© Е.Ю. Перлин, А.В. Иванов, А.А. Попов

Университет ИТМО,
199034 Санкт-Петербург, Россия
e-mail euperlin@itmo.ru

Поступила в редакцию 06.08.2020 г.

В окончательной редакции 06.08.2020 г.

Принята к публикации 25.08.2020 г.

В рамках модифицированного резонансного приближения рассчитано поглощение свободными электронами мощного лазерного излучения видимого либо ближнего ИК диапазона. Получены вероятности W_{exc} внутризонных переходов с изменением энергии электрона на $\hbar(\omega \pm \omega_l)$, где ω — частота света, ω_l — частота продольных оптических фононов, участвующих в процессе. Показано, что могут иметь место специфические электрон-фононные осцилляции Раби с частотой Ω_R , а поглощение света идет только до времени достижения первого максимума τ_1 на зависимости $W_{\text{exc}}(t)$, где t — время, прошедшее с начала действия лазерного импульса. Показано, что в случае предпробойных интенсивностей света процессы высоких порядков по полю световой волны существенным образом влияют на W_{exc} , τ_1 и Ω_R .

Ключевые слова: внутризонное поглощение света, оптический эффект Штарка, осцилляции Раби, гамильтониан Фрелиха, предпробойные интенсивности света.

DOI: 10.21883/OS.2020.12.50321.212-20

1. Введение

Исследование физических механизмов предпробойного возбуждения и пробоя прозрачных полупроводников и диэлектриков мощным лазерным излучением остается предметом многочисленных исследований в течение ряда десятилетий (см., например, [1–12]). Существенную роль в запуске процессов, ведущих к пробоя материала, играет поглощение мощного лазерного излучения свободными носителями заряда, появляющимися в зоне проводимости и валентной зоне за счет многофотонных межзонных переходов либо ударной ионизации кристаллической решетки. При поглощении света свободными электронами они приобретают кинетическую энергию, достаточную для ударной ионизации либо для комбинированной многофотонно-ударной ионизации [13,14]. Эти процессы могут вызвать лавинообразное нарастание концентрации свободных носителей заряда.

Поглощению света свободными электронами посвящено большое число работ (см., например, [15–23]). Как правило, при теоретическом рассмотрении не прямых внутризонных переходов используется второй порядок теории возмущений — один порядок по взаимодействию электрона с полем электромагнитной волны, а второй — по взаимодействию электрона с фононами либо потенциалом заряженных примесей¹. Прямые внутризонные оптические переходы невозможны, так как для них не могут одновременно выполняться законы сохранения энергии и импульса.

¹ В работе [15], а затем и в учебниках [16] и [17] приведены неточные формулы для вероятности перехода во втором порядке теории возмущений.

Нелинейное поглощение света и динамика электронов в присутствии мощного лазерного излучения рассматривались в работах [24–33]. Существенным обстоятельством, которое необходимо учитывать при описании одно- и многофотонного внутризонного поглощения сверхкоротких импульсов лазерного излучения предпробойной интенсивности, является неадекватность представления о вероятности перехода за единицу времени [30]. При этом возникает вопрос о возможности осцилляций Раби и проявлений резонансного оптического эффекта Штарка (ОЭШ) на не прямых внутризонных переходах.

ОЭШ (или эффект Отлера-Таунса [31]) в твердых телах исследовался в многочисленных работах (см., например, [32–60]). В работах [32–34] было показано, что в случае, когда в некоторой точке зоны Бриллюэна энергия кванта света $\hbar\omega$ совпадает с энергетическим зазором между зонами, в зависимости от параметров электронной зонной структуры происходит расщепление или разрыв зон, причем величина щели пропорциональна напряженности поля электромагнитной волны. В работах [35,37] предсказывалось появление системы щелей в энергетическом зонном спектре кристалла под действием лазерного излучения очень высокой интенсивности, причем в [35], а позже в [52] электронная зонная структура с самого начала была рассчитана с учетом сильного электромагнитного поля. Влияние ОЭШ при резонансе на переходе между двумя зонами проводимости на возбуждение нанокристаллов AgVg исследовано в работе [51]. Значительная часть работ по ОЭШ посвящена экситонным системам. В работах [36,38,48]

рассматривался случай, когда частота света попадает в резонанс между состоянием дискретного (экситонного) спектра и одним из состояний непрерывного зонного спектра. В этом случае проявляется резонанс Фано [49] в электрон-фотонной системе. В работе [39] исследовался ОЭШ под действием длинноволнового излучения CO₂-лазера при резонансе на переходах между экситонными состояниями 1s и 2p в Cu₂O. В работе [40] по ОЭШ в квантовых точках и большинстве других работ по ОЭШ (см., например, [40–42,50,55–60]) использовалось лазерное излучение с частотой, несколько меньшей ширины запрещенной зоны. В работах [43,44] исследовались сдвиги экситонных уровней с учетом многочастичных эффектов за счет заполнения зон при двухфотонных межзонных переходах. В работах [57,59] изучался ОЭШ в экситонно-биэкситонных системах. Поляризационно-зависимый ОЭШ стал предметом изучения в [57–59]. В работах [45,46,52,53] рассматривался ОЭШ в условиях двойного однофотонно-однофотонного [46], двухфотонно-однофотонного [45] и многофотонно-двухфотонного резонанса на смежных межзонных переходах. Было показано, что в перестроенном благодаря взаимодействию с сильным светом электронном зонном спектре появляются дополнительные сингулярности Ван-Хова. Положение этих сингулярностей в зоне Бриллюэна зависит от интенсивности света j_ω . В результате на графиках зависимости скорости многофотонной генерации неравновесных электронно-дырочных пар W_{vc} от j_ω появляются области, где малое (на единицы%) изменение j_ω приводит к изменению W_{vc} на несколько порядков величины, что, в свою очередь, может привести к запуску процесса оптического пробоя. В работе [55] предлагается использовать ОЭШ для управления переносом энергии в двухуровневых диссипативных системах в новом механизме лазерного охлаждения.

При высоких интенсивностях лазерного излучения осцилляции Раби и ОЭШ могут иметь место не только в случае однофотонного резонанса, но и в случае многофотонных (в том числе двухфотонных) резонансов [60,61,52]. В настоящей работе исследуются осцилляции Раби при двухквантовых (фотон+фонон) осцилляциях Раби при внутризонных переходах с участием продольных оптических (ЛО) фононов под действием мощного лазерного излучения видимого или ближнего ИК диапазона.

2. Гамильтониан электрон-фононной системы в поле электромагнитной волны

Представим \hat{H} электрон-фононной системы в поле электромагнитного излучения в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}', \quad \hat{H}_0 = \hat{H}_0^{(el)} + \hat{H}_0^{(phon)},$$

$$\hat{H}' = \hat{H}'_{e-phot} + \hat{H}'_{phon}, \quad (1)$$

где $\hat{H}_0^{(el)}$ и $\hat{H}_0^{(phon)}$ — гамильтонианы не взаимодействующих электронной и фононной подсистем:

$$\hat{H}_0^{(el)} \psi_{\mathbf{k}} = E_c(\mathbf{k}) \psi_{\mathbf{k}}, \quad (2)$$

$$\hat{H}_0^{(phon)} = \hbar \omega_l \sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^+ b_{\mathbf{q}}. \quad (3)$$

В формулах (3), (4) $\psi_{\mathbf{k}}$ и $E_c(\mathbf{k})$ — блоховская функция и блоховская энергия электронов в зоне проводимости, ω_l — предельная частота ЛО-фононов, дисперсию которых мы не учитываем, $b_{\mathbf{q}}^+$ и $b_{\mathbf{q}}$ — операторы рождения и уничтожения ЛО-фононов с волновым вектором \mathbf{q} . Оператор взаимодействия электрона с полем электромагнитной волны имеет вид

$$\hat{H}'_{e-phot} = \hat{H}_{e-phot}^{(1)} + \hat{H}_{e-phot}^{(2)},$$

$$\hat{H}_{e-phot}^{(1)} = -\frac{e}{2mc} (\mathbf{A} \cdot \hat{\mathbf{q}} + \hat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{A}),$$

$$\hat{H}_{e-phot}^{(2)} = \frac{1}{2} \left(\frac{e}{mc} \right)^2 \mathbf{A}^2, \quad (4)$$

где e и m — заряд и масса свободного электрона, c — скорость света, $\hat{\mathbf{q}}$ — оператор импульса, действующий в электронной подсистеме, \mathbf{A} — вектор-потенциал электромагнитного поля, который мы представим в виде

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \text{Re} [A_0 \mathbf{e}_{\mathbf{k}} e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}]. \quad (5)$$

В формуле (5) $\mathbf{e}_{\mathbf{k}}$ — единичный вектор поляризации света, \mathbf{k} — волновой вектор, ω — частота света. Амплитуду A_0 вектора-потенциала можно выразить через интенсивность излучения j_ω с помощью соотношения

$$A_0^2 = \frac{8\pi c}{\sqrt{\varepsilon_\infty} \omega^2} j_\omega, \quad (6)$$

где ε_∞ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость.

Взаимодействие электронной подсистемы с оптическими фононами описывается гамильтонианом Фрëлиха [62]

$$H'_{e-phon} = \frac{\vartheta}{\sqrt{\Omega}} \sum_{\mathbf{q}} q^{-1} (b_{\mathbf{q}} - b_{\mathbf{q}}^+) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}, \quad (7)$$

где Ω — нормировочный объем,

$$\vartheta = -ie \sqrt{2\pi \hbar \omega_l / \varepsilon^*}, \quad 1/\varepsilon^* = 1/\varepsilon_0 - 1/\varepsilon_\infty, \quad (8)$$

ε_0 — статическая диэлектрическая проницаемость.

Квадратичный по полю член в правой части (4) не приводит к однофотонным внутризонным переходам. В пренебрежении малым волновым вектором фотона роль этого члена сведется к изменению энергии электрона на величину, пропорциональную интенсивности

света $j\omega$. Мы приближенно учтем это обстоятельство введением эффективной электронной температуры

$$T_{\text{eff}} = T_0 + \Delta T, \quad \Delta T = \frac{8\pi j\omega}{3ck_B m_c \omega^2}, \quad (9)$$

где T_0 — температура решетки, которая не успевает измениться за короткое время действия мощного лазерного импульса, k_B — постоянная Больцмана. Отметим, что в результате стандартной процедуры исключения межзонной части взаимодействия электрона в зоне c с полем световой волны в квадратичном члене в правой части (4) и в правой части (9) вместо массы свободного электрона m появляется эффективная масса m_c .

3. Расчет вероятности возбуждения электронной системы

Вероятность W_{exc} того, что в момент времени t электрон перейдет из группы состояний с волновыми векторами \mathbf{k} и энергиями $E_c(\mathbf{k})$ вблизи дна зоны проводимости c в возбужденные состояния с волновыми векторами $\mathbf{k} \pm \mathbf{q}$ и энергией $E_c(\mathbf{k} \pm \mathbf{q}) = E_c(\mathbf{k}) + \hbar\omega \pm \hbar\omega_l$, дается выражением

$$W_{\text{exc}} = \left\langle \sum_{\mathbf{q}} \left| \langle \mathbf{k} \pm \mathbf{q}, n_{\mathbf{q}} \mp 1 | e^{-i\hat{H}t/\hbar} | \mathbf{k}, n_{\mathbf{q}} \rangle \right| \right\rangle_{\text{el,phon}}, \quad (10)$$

где $n_{\mathbf{q}}$ — числа заполнения фононов, $\langle \dots \rangle_{\text{el,phon}}$ — усреднение по состояниям электронной и колебательной подсистем кристалла.

Воспользуемся дважды известным соотношением для распутывания экспоненциальных операторов

$$e^{-i(\hat{H}_0 + \hat{H}'_{\text{e-phon}} + \hat{H}'_{\text{c-phon}})t/\hbar} = e^{-i(\hat{H}_0 + \hat{H}'_{\text{c-phon}})t/\hbar} \hat{S},$$

$$\hat{S} = T \exp \left\{ -(i/\hbar)^n \int_0^t e^{i(\hat{H}_0 + \hat{H}'_{\text{c-phon}})t_1/\hbar} \right.$$

$$\left. \times \hat{H}'_{\text{e-phon}} e^{-i(\hat{H}_0 + \hat{H}'_{\text{c-phon}})t_1/\hbar} dt_1 \right\}, \quad (11)$$

$$e^{-i(\hat{H}_0 + \hat{H}'_{\text{c-phon}})t/\hbar} = e^{-i\hat{H}_0 t/\hbar} \hat{g}(t),$$

$$\hat{g}(t) = T \exp \left\{ -(i/\hbar)^n \int_0^t e^{i\hat{H}_0 t_1/\hbar} \right.$$

$$\left. \times \hat{H}'_{\text{e-phon}} e^{-i\hat{H}_0 t_1/\hbar} dt_1 \right\}, \quad (12)$$

где T обозначает хронологическое упорядочение операторов.

В пренебрежении импульсом фотона \mathbf{k} у оператора $\hat{g}(t)$ отличны от нуля лишь диагональные матричные элементы, которые легко вычисляются. Пусть вектор поляризации света $\mathbf{e}_{\mathbf{k}}$ направлен вдоль оси x . С учетом соотношения

$$\mathbf{p}_{\mathbf{k},\mathbf{c}\mathbf{k}} = \frac{m}{m_c} \hbar \mathbf{k}, \quad (13)$$

где m_c — эффективная масса электрона, имеем для диагональных матричных элементов $\hat{g}(t)$:

$$g_{k_x k_x}(t) = \exp[i\xi(k_x) \sin \omega t] = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n[\xi(k_x)] e^{in\omega}, \quad (14)$$

где $J_n(\xi)$ — функции Бесселя (см., например, [63]),

$$\xi(k_x) = \frac{2ek_x}{m_c \omega^2} \sqrt{\frac{2\pi j\omega}{c\sqrt{\epsilon_\infty}}}. \quad (15)$$

Для упрощения задачи предположим, что зона проводимости достаточно узкая, так что двухфотонные внутрizonные переходы невозможны. Предположим также, что частота света ω намного превышает частоту оптических колебаний решетки ω_l , соответственно длина q волнового вектора намного превосходит длину k_1 x -компоненты волнового вектора электрона в начальном состоянии:

$$\omega \gg \omega_l, \quad q \gg k_1, \quad \hbar\omega \gg k_B T_{\text{eff}}. \quad (16)$$

При выполнении условий (16) приближенно получим

$$k_1 \approx \frac{1}{\hbar} \sqrt{m_c k_B T_{\text{eff}}}, \quad k_2 \approx \sqrt{\frac{m_c \omega}{3\hbar}}, \quad (17)$$

где k_2 — длина вектора x -компоненты волнового вектора электрона в возбужденном состоянии (далее для сокращения записи будем обозначать основное и возбужденное состояния электрона в зоне проводимости индексами i и f).

Согласно (11), (12), получим для оператора эволюции следующее выражение:

$$\hat{S} = T \exp \left\{ -(i/\hbar)^n \int_0^t \hat{g}^+(t_1) e^{i\hat{H}_0^{(el)} t_1/\hbar} \right.$$

$$\left. \times H'_{\text{e-phon}}(t_1) e^{-i\hat{H}_0^{(el)} t_1/\hbar} \hat{g}(t_1) dt_1 \right\},$$

$$H'_{\text{e-phon}}(t_1) = e^{i\hat{H}_0^{(\text{phon})} t_1/\hbar} H'_{\text{e-phon}}(t_1) e^{-i\hat{H}_0^{(\text{phon})} t_1/\hbar}. \quad (18)$$

Введем обозначения

$$\delta_{1,2}(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = \frac{1}{\hbar} [E_c(\mathbf{k} \pm \mathbf{q}) - E_c(\mathbf{k})] - \omega \pm \omega_l \quad (19)$$

для процессов с поглощением (1) либо испусканием (2) ЛО-фонона. Для параболического закона дисперсии $E_c(\mathbf{k}) = \hbar^2 k^2 / (2m_c)$ при выполнении условий (16)

$$\delta_{1,2}(\mathbf{k}, \mathbf{q}) \approx \delta_{1,2}(q) = \frac{\hbar q^2}{2m_c} - \omega \pm \omega_l. \quad (20)$$

Матричный элемент S_{fi} оператора \hat{S} (18) будем вычислять в резонансном приближении (приближении вращающегося поля). Это означает, что при разложении в ряд T -экспоненты в правой части (18) мы будем

сохранять в каждом порядке члены, где в показателе экспоненты фигурируют величины $i\delta_{1,2}(\mathbf{q})t$, чередующиеся с $-i\delta_{1,2}(\mathbf{q})t$. В резонансном приближении в каждом из интегралов по dt_n появляется, согласно (14), множитель

$$v = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\xi_1)J_{n+1}(\xi_2). \quad (21)$$

Воспользовавшись теоремой сложения Неймана для функций Бесселя [63], преобразуем (21) к виду

$$v = J_1(\xi_2 - \xi_1), \quad (22)$$

причем в случае высоких интенсивностей света $j_\omega \sim 10^{11} - 10^{13} \text{ W/cm}^2$ и частот лазерного излучения $\omega \sim 0.3 \cdot 10^{15} - 3 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ аргументы функций Бесселя $\xi_1 = \xi(k_1)$ и $\xi_2 = \xi(k_2)$ могут значительно превышать единицу. Множитель v описывает влияние процессов высших порядков на частоту внутризонных электрон-фононных осцилляций Раби.

Нетрудно убедиться в том, что основной вклад в суммирование по волновым векторам фонона \mathbf{q} в правой части (10) дает достаточно узкая область вблизи значений q , при которых $\delta_{1,2}(q) = 0$. При выполнении условий (16) ширина этой области $\Delta q \sim 2k_1$. В пределах этой области неэкспоненциальная часть подынтегрального выражения в каждой из сумм по \mathbf{q} изменяется слабо.

В разложении S_{fi} в ряд по степеням $H'_{e\text{-phon}}$ сохраняются лишь члены нечетного $(2n + 1)$ -го порядка. Заменим приближенно усреднение каждого члена разложения S_{fi} на произведение попарно усредненных операторов в интегралах по dt_{2n} и dt_{2n+1} :

$$\begin{aligned} \Xi^2 &= \langle \sum_{\mathbf{q}} |\langle \mathbf{k} \pm \mathbf{q}, n_{\mathbf{q}} \mp 1 | H'_{e\text{-phon}} | \mathbf{k}, n_{\mathbf{q}} \rangle|^2 \rangle_{\text{phon}} \\ &= \frac{1}{(2\pi)^3} |\vartheta|^2 \int d\mathbf{q} \frac{1}{q^2} \left\{ \begin{matrix} n_{\mathbf{q}} \\ n_{\mathbf{q}} + 1 \end{matrix} \right. \\ &\approx \frac{4\pi}{(2\pi)^3} |\vartheta| \int_{q_0}^{q_0 + \Delta q} dq \left\{ \begin{matrix} n_1 \\ n_1 + 1 \end{matrix} \right. \approx \frac{|\vartheta|^2}{\pi^2} k_1 \left\{ \begin{matrix} n_l \\ n_l + 1 \end{matrix} \right. , \quad (23) \end{aligned}$$

где $n_l = \{\exp[\hbar\omega_l/(k_B T)] - 1\}^{-1}$.

В принятых приближениях матричный элемент S_{fi}^s (верхние индексы $s = 1$ и $s = 2$ соответствуют процессам с поглощением и испусканием ЛО-фонона) является решением уравнения

$$\ddot{S}_{fi}^{(s)} - i\delta_s \dot{S}_{fi}^{(s)} + |P_s(k_1)|^2 S_{fi}^{(s)} = 0 \quad (24)$$

с начальными условиями

$$S_{fi}^{(s)}|_{t=0} = 1, \quad \dot{S}_{fi}^{(s)}|_{t=0} = -ie^{i\delta_s(q)t} \tilde{P}_{s\mathbf{q}}, \quad (25)$$

где

$$P_s = \frac{v\vartheta}{\hbar} \sqrt{\frac{k_1 \eta_s}{\pi}}, \quad \tilde{P}_{s\mathbf{q}} = \frac{v\vartheta}{\hbar} \sqrt{\frac{\eta_s}{\Omega}} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{q}, \quad (26)$$

$\eta_1 = n_l, \eta_2 = n_l + 1$. Имеем

$$\begin{aligned} S_{fi}^{(s)}(\mathbf{q}, t) &= -i \exp \left[i \frac{\delta_s(\mathbf{q})}{2} t \right] \frac{\tilde{P}_{s\mathbf{q}}}{\sqrt{[\delta_s(\mathbf{q})/2]^2 + |P_s|^2}} \\ &\times \sin \sqrt{[\delta_s(\mathbf{q})/2]^2 + |P_s|^2} t. \quad (27) \end{aligned}$$

Подставляя (27) в (10), получим после некоторых вычислений

$$\begin{aligned} W_{\text{exc}}(t) &= \frac{1}{2} \int_0^\infty f(k) k dk \int_0^\infty \sum_{s=1}^2 \frac{|P_s(k)|^2}{|P_s(k)|^2 + [\frac{1}{2}\delta_s(q)]^2} \\ &\times \sin^2 \left\{ \sqrt{|P_s(k)|^2 + \left[\frac{1}{2}\delta_s(q) \right]^2} t \right\} dq, \quad (28) \end{aligned}$$

где

$$f(k) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \left(\frac{\hbar^2}{m_c k_B T_{\text{eff}}} \right)^{\frac{3}{2}} \exp \left[-\frac{\hbar^2 k^2}{2m_c k_B T_{\text{eff}}} \right].$$

4. Результаты расчетов

В расчетах используем следующие значения параметров, типичные для кристаллов типа A_2B_6 , например, ZnS: $m_c = 0.35m$, $\omega_l = 5 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$, $\epsilon_0 = 8.5$, $\epsilon_\infty = 5.2$. Отметим, что изменение этих параметров в разумных пределах не приводит к изменению качественной картины рассматриваемых процессов.

На рис. 1, *a-d* представлены зависимости вероятности перехода в возбужденные состояния зоны проводимости W_{exc} от времени, рассчитанные с помощью (28), (29), (26), (22). Мы видим, что после достижения первого пика W_{exc} происходят осцилляции вокруг некоторого среднего значения.

Обозначим через W_{max} максимальное значение W_{exc} , которое обычно достигается в первом или втором пике на зависимостях $W_{\text{exc}}(t)$. На рис. 2 приведены зависимости W_{max} от интенсивности света j_ω при фиксированных значениях частоты света ω .

На рис. 3 показана зависимость времени достижения первого максимума τ_1 на зависимости $W_{\text{max}}(t)$ от интенсивности j_ω .

Определим также частоту Раби для рассматриваемого процесса как $\Omega_R = 2\pi/(\tau_2 - \tau_1)$, где τ_2 — время, за которое достигается второй максимум на кривой $W_{\text{exc}}(t)$. На рис. 4 даются зависимости $\Omega_R(j_\omega)$.

На рис. 5 приводится зависимость W_{max} от частоты света ω для $j_\omega = 100 \text{ GW/cm}^2$.

Сложный характер зависимостей, представленных на рис. 2–5, обусловлен в основном множителем v (22), описывающим вклад процессов высших порядков по полю в эффективный матричный элемент перехода (26).

Определенный интерес представляет случай моноэнергетического распределения электронов в начальном

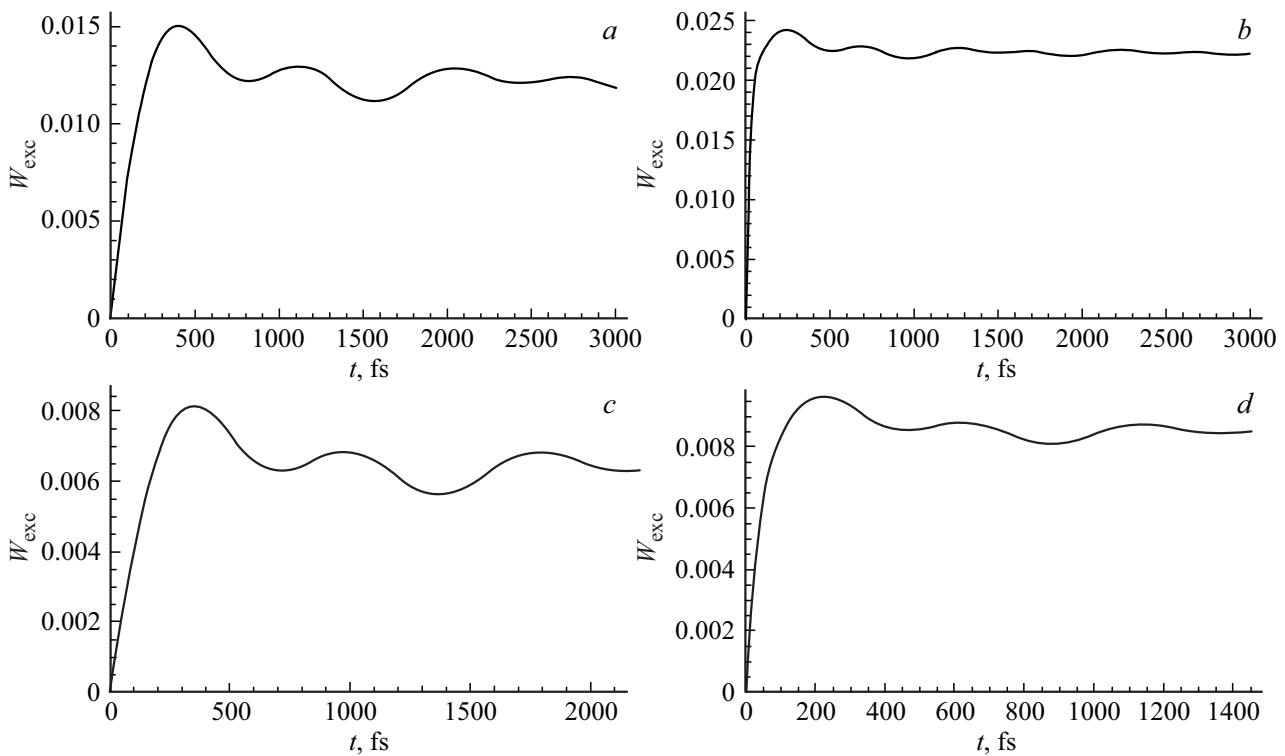


Рис. 1. Зависимости вероятности W_{exc} от времени с начала действия лазерного излучения: (a) $j_{\omega} = 30 \text{ GW/cm}^2$, $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$; (b) $j_{\omega} = 80 \text{ GW/cm}^2$, $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$; (c) $j_{\omega} = 400 \text{ GW/cm}^2$, $\omega = 1.78 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$; (d) $j_{\omega} = 1000 \text{ GW/cm}^2$, $\omega = 1.78 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$.

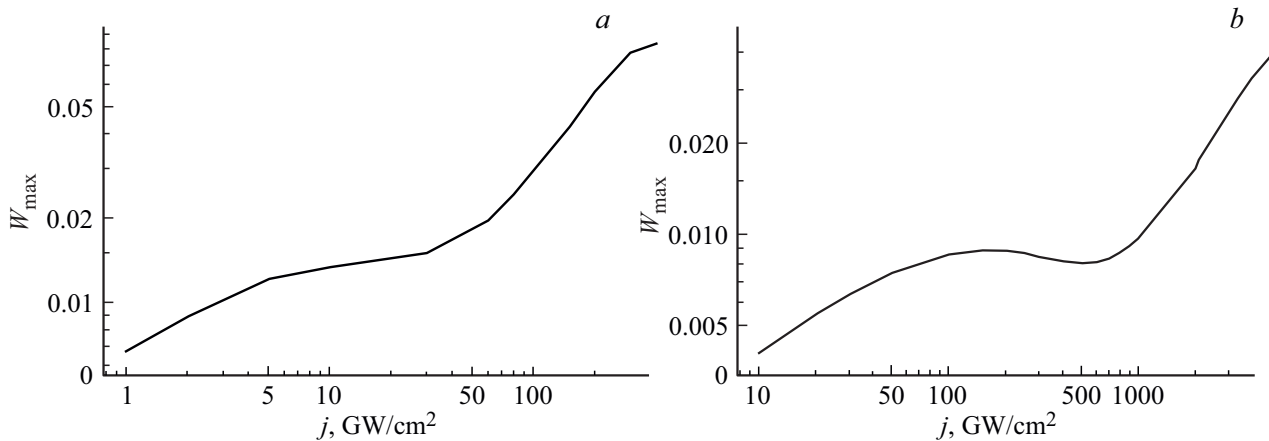


Рис. 2. Зависимости W_{max} от интенсивности света j_{ω} : (a) $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$; (b) $\omega = 1.78 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$.

состоянии, которое может возникнуть в результате прямого оптического межзонного перехода под действием дополнительного света с частотой, большей ω , и сохраняться в течение времени $t < \tau_r$, где τ_r — время релаксации импульса электрона ($\tau_r \sim 10^{-12} - 10^{-13} \text{ s}$). На рис. 6, *a* для этого случая показана типичная зависимость W_{max} от интенсивности j_{ω} при фиксированной частоте $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, на рис. 6, *b* — при $\omega = 1.78 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, а на рис. 6, *c* — зависимость W_{max} от ω при фиксированном значении $j_{\omega} = 100 \text{ GW/cm}^2$. В расчетах использованы значения параметров, указан-

ные в начале данного раздела. Кроме того, принимаем, что начальная кинетическая энергия $\delta E = 0.1 \text{ eV}$; $k_1 = \hbar^{-1} \sqrt{m_c (\frac{2}{3} \delta E + \Delta T)}$.

Видно, что на кривых $W_{\text{max}}(j_{\omega})$ и $W_{\text{max}}(\omega)$ имеются узкие провалы вплоть до нулевых значений W_{max} . Эти провалы соответствуют нулевым (или очень малым) значениям множителя ν (см. формулы (21), (22), (26)). Этот множитель, как уже отмечалось, описывает вклад процессов высших порядков по полю световой волны в вероятность возбуждения зонных электронов. Очевидно, что в актуальном для рассматриваемых процессов диапа-

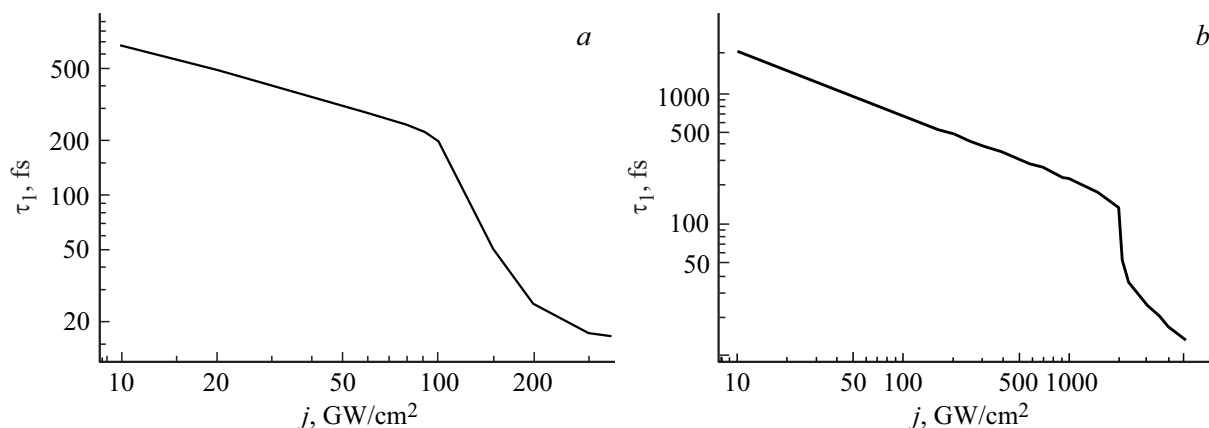


Рис. 3. Зависимости времени достижения 1-го максимума на кривой $W_{\text{exc}}(t)$ от интенсивности j_ω : (a) $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$; (b) $\omega = 1.78 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$.

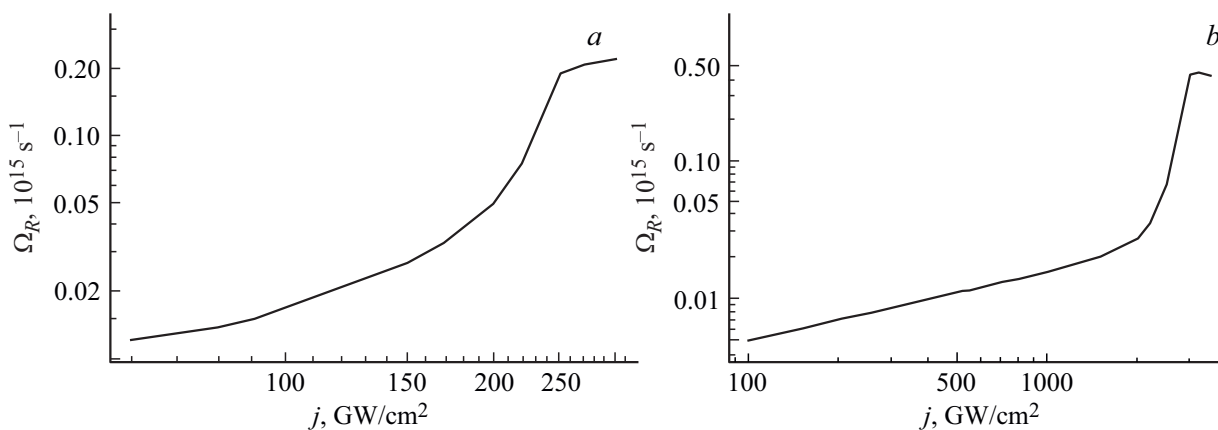


Рис. 4. Зависимости частоты Раби Ω_R от интенсивности j_ω : (a) $\omega = 0.4 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$; (b) $\omega = 1.78 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$.

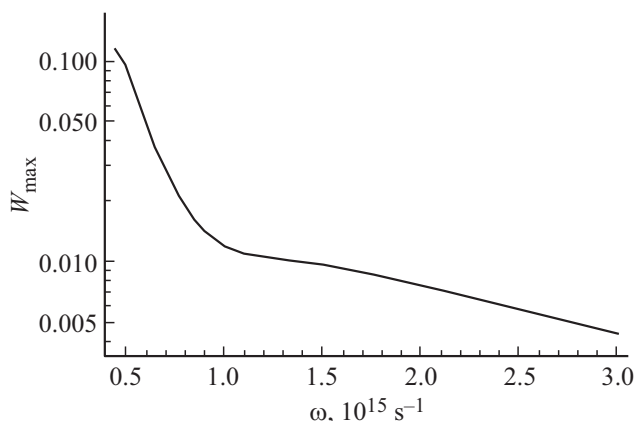


Рис. 5. Зависимость W_{max} от частоты света ω при $j_\omega = 100 \text{ GW/cm}^2$.

зоне интенсивностей j_ω этот вклад оказывается весьма существенным. Следует, однако, отметить, что провалы на кривых $W_{\text{max}}(j_\omega)$ и $W_{\text{max}}(\omega)$ (рис. 6) появляются в результате экстраполяции результатов расчетов на

область частот ω и интенсивностей j_ω , где условия (16) перестают выполняться.

5. Обсуждение результатов

При высоких интенсивностях света, как видно из приведенных в предыдущем разделе зависимостей, однофотонное внутризонное поглощение (процессы с изменением энергии электрона на $(\hbar\omega)$ претерпевает радикальные изменения по сравнению со случаем умеренных интенсивностей. Фактически поглощение идет только до времени достижения первого максимума τ_1 (рис. 1, 3). Затем происходит периодическое перекачивание энергии между электронной подсистемой и электромагнитным полем. Так, например, при $j_\omega = 1.5 \text{ TW/cm}^2$ и $\omega = 1.78 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ получим $\tau_1 \approx 150 \text{ fs}$, причем зависимость W_{exc} от t заметно отклоняется от линейной уже при временах действия импульса, больших 20 fs. Зависимость W_{exc} от j_ω при временах действия лазерного импульса от единиц до десятков fs также сильно отличается от линейной (см., например, рис. 7).

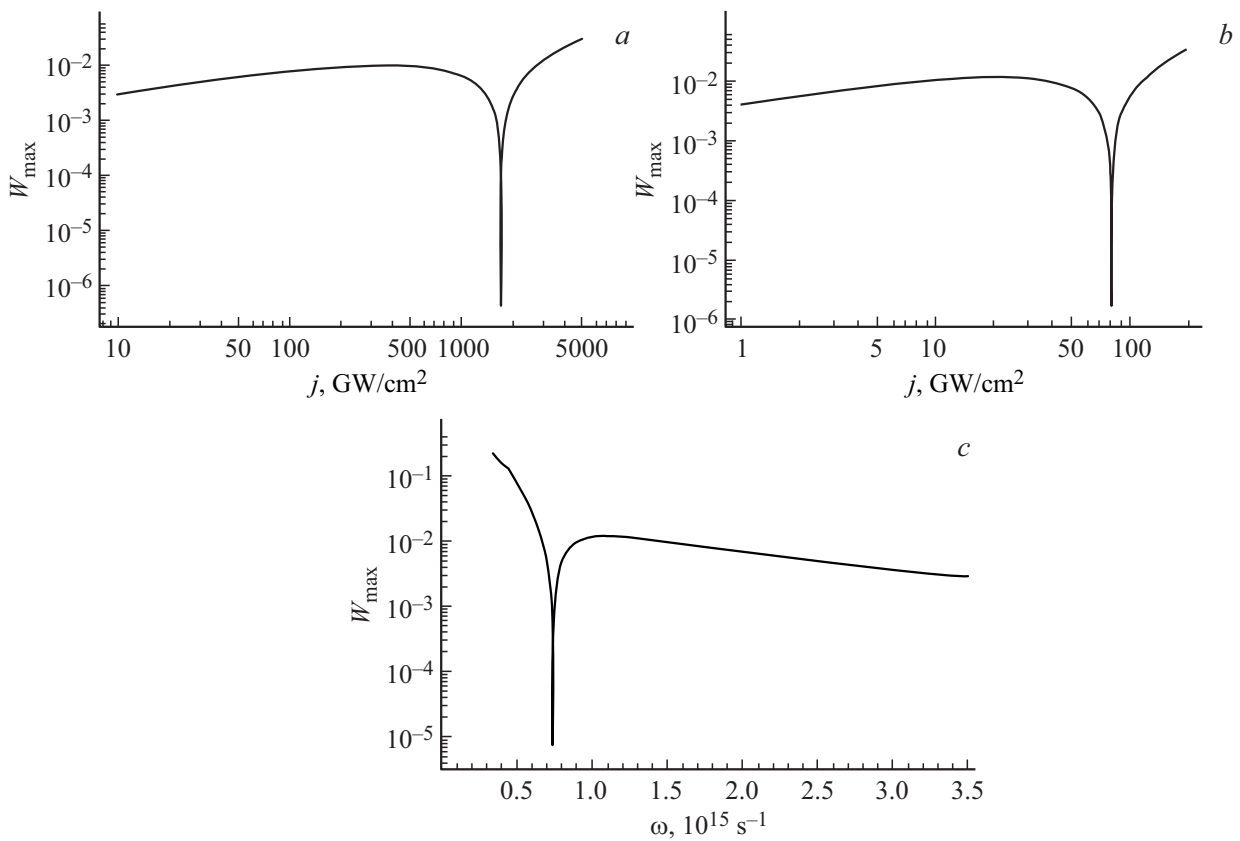


Рис. 6. Зависимости максимальной вероятности W_{\max}^{mono} от интенсивности j_{ω} : (а) при $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, (б) при $\omega = 1.78 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$; (с) от частоты ω при $j_{\omega} = 100 \text{ GW/cm}^2$.

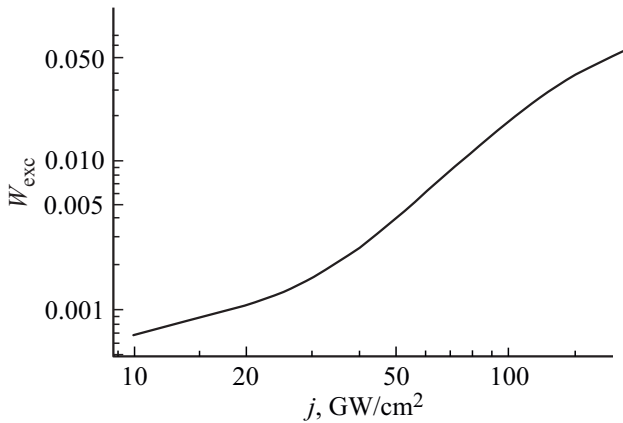


Рис. 7. Зависимость W_{exc} от интенсивности j_{ω} для времени действия лазерного импульса $t = 20 \text{ fs}$, $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$. Значения остальных параметров указаны в начале разд. 4.

Представленная в данной работе теория описывает в первую очередь случай очень высоких интенсивностей лазерного излучения. В то же время в случае умеренных интенсивностей света j_{ω} расчет по формуле (28) приводит к линейной зависимости W_{exc} как от времени (рис. 8, а), так и от интенсивности j_{ω} (рис. 8, б). В этом

случае можно ввести коэффициент поглощения

$$\alpha = n_0 W_{\text{exc}}(t) \hbar \omega / (j_{\omega} t), \tag{29}$$

где n_0 — концентрация электронов в зоне проводимости. При частоте света $\omega = 1.78 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $n_0 = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ и для указанных выше значений параметров кристалла $\alpha \approx 0.043 \text{ cm}^{-1}$, что является весьма разумным значением.

Следует иметь в виду, что для получения сравнительно простого выражения (28) в работе использовалась весьма упрощенная модель процесса нелинейного поглощения лазерного излучения свободными электронами в зоне проводимости. Отметим ряд важных факторов.

- Не учитывалась анизотропия электронного зонного спектра.
- Зона проводимости считалась достаточно узкой, так что электроны не могли переходить в зонные состояния с энергией $E_k \sim n \hbar \omega$ ($n > 1$).
- В работе был рассмотрен только механизм поглощения с участием ЛО-фононов, взаимодействие электронов с которыми описывалось гамильтонианом Фрелиха. В то же время вклад в поглощение могут дать механизмы, где электрон-фононное взаимодействие описывается оптическим деформационным потенциалом, либо механизмы с участием акустических фононов или с рассеянием на заряженных примесях.

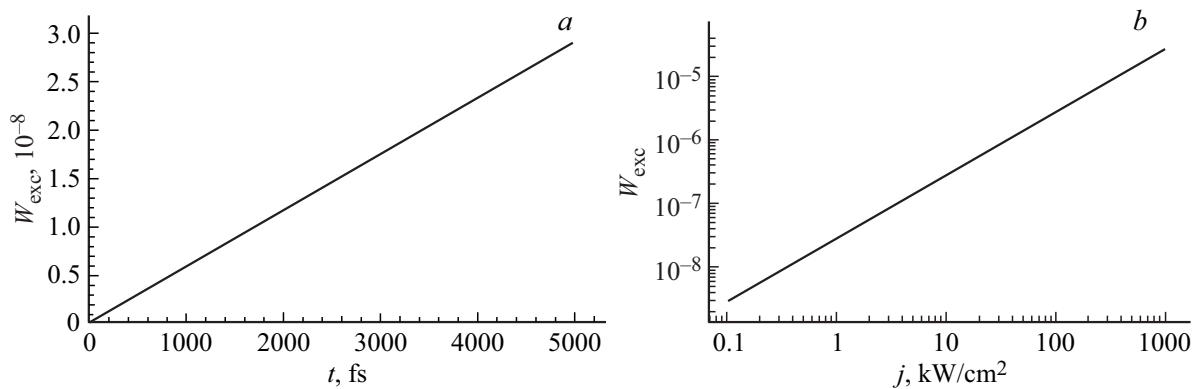


Рис. 8. Линейная зависимость W_{exc} : (a) от времени при умеренной интенсивности света $j_{\omega} = 1 \text{ kW/cm}^2$; (b) от интенсивности, $t = 5 \text{ ps}$. В обоих случаях $\omega = 0.7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$.

- Фактически рассматривались лазерные импульсы прямоугольной формы, хотя при длительностях импульсов порядка единиц или десятков фемтосекунд учет формы лазерного импульса заметно (хотя и некритическим образом) влияет на результат (см., например, [30]).
- Не учитывалось реальное распределение интенсивностей по поперечному сечению светового пучка.

Тем не менее при условии $P_s \tau \gg 1$, которое достигается при интенсивностях $j_{\omega} \sim 10\text{--}100 \text{ GW/cm}^2$, однофотонное поглощение будет ограничено временами достижения первого пика на зависимостях $W_{\text{exc}}(t)$. Это обстоятельство существенно снижает эффективность ступенчатого внутризонного возбуждения свободных электронов и проявляется в увеличении роли многофотонных процессов (МФП). В рамках развитого подхода могут быть рассмотрены и не прямые внутризонные МФП. В этом случае будут иметь место $(l + 1)$ -квантовые осцилляции Раби для l -фотонных переходов.

6. Заключение

В работе в рамках упрощенной модели рассмотрено поглощение лазерного излучения на свободных электронах в зоне проводимости неметаллического кристалла. Получено простое выражение для вероятности перехода W_{exc} из состояний электрона вблизи дна зоны проводимости в состояния с энергией, большей на величину светового кванта. Показано, что имеют место специфические электрон-фононные осцилляции Раби, а поглощение света идет только до времени достижения первого максимума τ_1 на зависимости W_{exc} от времени t с начала действия лазерного импульса. Получены нелинейные зависимости максимальных значений W_{exc} от интенсивности света j_{ω} при фиксированной частоте света ω и от W_{exc} при фиксированном значении j_{ω} . Получены также зависимости τ_1 и частоты фотон-фононных осцилляций Раби Ω_R от j_{ω} при нескольких значениях ω . Показано, что процессы высоких порядков по полю световой волны в рассматриваемом диапазоне предпробойных интенсивностей света существенным образом влияют на W_{exc} , τ_1

и Ω_R . В предельном случае слабых полей полученные формулы описывают линейное поглощение света и дают разумное значение коэффициента поглощения.

Финансирование работы

Работа выполнена при государственной поддержке ведущих университетов Российской Федерации (субсидия 08-08).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Маненков А.А., Прохоров А.М. // УФН. 1986. Т. 148. № 1. С. 179; Manenkov A.A., Prokhorov A.M. // Sov. Phys. Usp. 1986. V. 29. N 1. P. 104. doi 10.1070/PU1986v029n01ABEH003117
- [2] Jones S.C., Braunlich P., Casper R.T., Shen X.-A., Kelly P. // Opt. Engin. 1989. V. 28. N 10. 281039. doi 10.1117/12.7977089
- [3] Lenzner M., Krüger J., Sartania S., Cheng Z., Spielmann C., Mourou G., Kautek W., Krausz F. // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 80. N 18. P. 4076. doi 10.1103/PhysRevLett.80.4076
- [4] Stuart B.C., Feit M.D., Herman S., Rubenchik A.M., Shore B.W., Perry M.D. // Phys. Rev. B. 1996. V. 53. N 4. P. 1749. doi 10.1103/PhysRevB.53.1749
- [5] Simanovskii D.M., Schwettman H.A., Lee H., Welch A.J. // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 91. N 10. 107601. doi 10.1103/PhysRevLett.91.107601
- [6] Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V., Campbell E.E.B. // Phys. Rev. B. 2004. V. 69. N 5. 054102. doi 10.1103/PhysRevB.69.054102
- [7] Deng Y.P., Xie X.H., Xiong H., Leng Y.X., Cheng C.F., Lu H.H., Li R.X., Xu Z. // Opt. Express. 2005. V. 13. N 8. P. 3096. doi 10.1364/OPEX.13.003096
- [8] Rethfeld B. // Phys. Rev. B. 2006. V. 73. N 3. 035101. doi 10.1103/PhysRevB.73.035101

- [9] *Bachau H., Belsky A.N., Bogatyrev I.B., Gaudin J., Geofroy G., Guizard S., Martin P., Popov Yu.V., Vasil'ev A.N., Yatsenko B.N.* // *Appl. Phys. A.* 2010. V. 98. P. 679. doi 10.1007/s00339-009-5465-y
- [10] *Chen H.Y., Wan Z.Z., Han Y.L.* // *Appl. Mechanics and Materials.* 2011. V. 142. P. 134. doi 10.4028/www.scientific.net/amm.142.134
- [11] *Mirza I., Bulgakova N.M., Tomáščík J., Michálek V., Haderka O., Fekete L., Mocek T.* // *Sci. Rep.* 2016. V. 6. P. 39133. doi 10.1038/srep39133
- [12] *Lin Zh., Ji L., Hong M.* // *Photonics Research.* 2020. V. 8. N 3. P. 271. doi 10.1364/PRJ.379254
- [13] *Перлин Е.Ю., Федоров А.В., Кашевник М.Б.* // *ЖЭТФ.* 1983. Т. 85. № 4(10). С. 1357; *Perlin E.Yu., Fedorov A.V., Kashevnik M.B.* // *Sov. Phys. JETP.* 1983. V. 58. N 4. P. 787.
- [14] *Перлин Е.Ю., Иванов А.В., Левицкий Р.С.* // *ЖЭТФ.* 2005. Т. 128. № 2(8). С. 411; *Perlin E.Yu., Ivanov A.V., Levitskii R.S.* // *JETP.* 2005. V. 101. N 2. P. 357. doi 10.1134/1.2047802
- [15] *Fan H.Y., Spitzer W., Collins R.J.* // *Phys. Rev.* 1956. V. 101. N 2. P. 567. doi 10.1016/0038-1098(86)90279-6 (Eq. (5) is incorrect)
- [16] *Seeger K.* *Semiconductor Physics.* Wien, NY.: Springer, 1973 (Chapter 11); *Зеегер К.* *Физика полупроводников.* М.: Мир, 1977. 616 с.
- [17] *Ansel'm A.I.* *Introduction to Semiconductor Theory.* Upper Saddle River, NJ: Prentice-Hall, 1982; *Ансельм А.И.* *Введение в теорию полупроводников.* М.: Наука, 1978. 616 с.
- [18] *Ridley B.K.* *Quantum processes in semiconductors.* Clarendon Press. Oxford, 1982; *Ридли Б.* *Квантовые процессы в полупроводниках.* М.: Мир, 1986.
- [19] *Осипова М.О., Перлин Е.Ю.* // *Опт. журн.* 2016. Т. 83. № 11. С. 3; *Osipova M.O., Perlin E.Yu.* // *J. Opt. Technol.* 2016. V. 83. N 11. P. 648. doi 10.1364/JOT.83.000648
- [20] *Жукова М.О., Перлин Е.Ю.* // *Опт. журн.* 2017. Т. 84. № 10. С. 3–6; *Zhukova M.O., Perlin E.Yu.* // *J. Opt. Technol.* 2017. V. 84. N 10. P. 651. doi 10.1364/JOT.84.000651
- [21] *Леонов М.Ю., Орлова А.О., Баранов А.В., Рухленко И.Д., Гунько Ю.К., Федоров А.В.* // *Опт. журн.* 2013. Т. 80. В. 11. С. 7; *Leonov M.Yu., Orlova A.O., Baranov A.V., Fedorov A.V., Rukhlenko I.D., Gun'ko Yu.K.* // *J. Opt. Technol.* 2013. V. 80. N 11. P. 648. doi 10.1364/JOT.80.000648
- [22] *Pellemans H.P.M., Planken P.C.M.* // *Phys. Rev. B.* 1998. V. 57. N 8. R4222. doi 10.1103/PhysRevB.57.R4222
- [23] *Peelaers H., Van de Walle C.G.* // *Phys. Rev. B.* 2019. V. 100. 081202(R). doi 10.1103/PhysRevB.100.081202
- [24] *Малевиц В.Л., Эпштейн Э.М.* // *Квант. электрон.* 1974. Т. 1. № 6. С. 1468; *Malevich V.L., Epshtein E.M.* // *Sov. J. Quant. Electron.* 1974. V. 4. N 6. P. 1816. doi 10.1070/QE1974v004n06ABEH009345
- [25] *Fomin V.M., Pokatilov E.P.* // *Phys. Stat. Sol. B.* 1976. V. 78. N 2. P. 831. doi 10.1002/pssb.2220780244
- [26] *Fomin V.M., Pokatilov E.P.* // *Phys. Stat. Sol. B.* 1983. V. 119. N 2. P. 483. doi 10.1002/pssb.2221190206
- [27] *Apostolova T., Huang D.H., Alsing P.M., McIver J., Cardimona D.A.* // *Phys. Rev. B.* 2002. V. 66. 075208. doi 10.1103/PhysRevB.66.075208
- [28] *Huang D., Apostolova T., Alsing P.M., Cardimona D.A.* // *Phys. Rev. B.* 2004. V. 69. 075214. doi 10.1103/PhysRevB.69.075214
- [29] *Huang D., Alsing P.M., Apostolova T., Cardimona D.A.* // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 71. 045204. doi 10.1103/PhysRevB.71.045204
- [30] *Перлин Е.Ю., Бондарев М.А., Жукова М.О.* // *Опт. и спектр.* 2017. Т. 123. № 4. С. 566. doi 10.7868/S0030403417100178 (I), С. 571. doi 10.7868/S003040341710018X (II); *Perlin E.Yu., Bondarev M.A., Zhukova M.O.* // *Opt. Spectrosc.* 2017. V. 123. N 4. P. 578. doi 10.1134/S0030400X17100174, P. 583 (II). doi 10.1134/S0030400X17100186
- [31] *Autler S.H., Townes C.H.* // *Phys. Rev.* 1955. V. 100. N 2. P. 703. doi 10.1103/PhysRev.100.703
- [32] *Yacoby Y.* // *Phys. Rev. B.* 1970. V. 1. N 4. P. 1666. doi 10.1103/PhysRevB.1.1666
- [33] *Галицкий В.М., Гореславский С.П., Елесин В.Ф.* // *ЖЭТФ.* 1970. Т. 57. № 1. С. 207; *Galitskii V.M., Goreslavskii S.P., Elesin V.F.* // *JETP.* 1970. V. 30. N 1. P. 117.
- [34] *Перлин Е.Ю., Коварский В.А.* // *ФТТ.* 1970. Т. 17. № 11. С. 3105; *Perlin E.Yu., Kovarskii V.A.* // *Sov. Phys. Solid State.* 1970. V. 12. P. 2512.
- [35] *Tzoar N., Gersten J.I.* // *Phys. Rev. B.* 1975. V. 12. N 4. P. 1132. doi 10.1103/PhysRevB.12.1132
- [36] *Перлин Е.Ю.* // *ФТТ.* 1973. Т. 15. № 1. С. 66; *Perlin E.Yu.* // *Fiz. Tverd. Tela (Leningrad).* 1973. V. 15. N 1. P. 66.
- [37] *Балкарей Ю.И., Эпштейн Э.М.* // *ФТТ.* 1973. Т. 15. № 3. С. 925.
- [38] *Перлин Е.Ю.* // *Опт. и спектр.* 1976. Т. 41. № 2. С. 263; *Perlin E.Yu.* // *Opt. Spectrosc.* 1976. V. 41. N 8. P. 153.
- [39] *Fröhlich D., Nothe A., Reimann K.* // *Phys. Rev. Lett.* 1985. V. 55. N 12. P. 1335. doi 10.1103/PhysRevLett.55.1335
- [40] *Von Lehmen A., Chemla D.S., Heritage J.P., Zucker J.E.* // *Opt. Lett.* 1986. V. 11. N 10. P. 609. doi 10.1364/OL.11.000609
- [41] *Mysyrowicz A., Hulin D., Antonetti A., Migus A., Masselink W.T., Morko H.* // *Phys. Rev. Lett.* 1986. V. 56. N 25. P. 2748. doi 10.1103/PhysRevLett.56.2748
- [42] *Schäfer W., Schuldt K.H., Binder R.* // *Phys. Stat. Sol. B.* 1988. V. 150. N 2. P. 407. doi 10.1002/pssb.2221500209
- [43] *Knox W.H., Chemla D.S., Miller D.A.B., Stark J.B., Schmitt-Rink S.* // *Phys. Rev. Lett.* 1989. V. 62. N 10. P. 1189. doi 10.1103/PhysRevLett.62.1189
- [44] *Chemla D.S., Knox W.H., Miller D.A.B., Schmitt-Rink S., Stark J.B., Zimmermann R.* // *J. Luminesc.* 1989. V. 44. N 4. P. 233. doi 10.1016/0022-2313(89)90060-4
- [45] *Перлин Е.Ю., Федоров А.В.* // *Опт. и спектр.* 1995. Т. 78. № 3. С. 445; *Perlin E.Yu., Fedorov A.V.* // *Opt. Spectrosc.* 1995. V. 78. N 3. P. 400.
- [46] *Перлин Е.Ю., Федоров А.В.* // *ФТТ.* 1995. Т. 37. № 5. С. 1463; *Perlin E.Yu., Fedorov A.V.* // *Phys. Solid State.* 1995. V. 37. N 5. P. 792.
- [47] *Перлин Е.Ю.* // *ЖЭТФ.* 1994. Т. 78. № 1. С. 186; *Perlin E.Yu.* // *JETP.* 1994. V. 78. N 1. P. 98.
- [48] *Перлин Е.Ю.* // *Опт. и спектр.* 1997. Т. 83. № 2. С. 262; *Perlin E.Yu.* // *Opt. Spectrosc.* 1997. V. 83. N 2. P. 243. doi 10.1134/1.1953976
- [49] *Unold T., Mueller K., Lienau C., Elsaesser T., Wieck A.D.* // *Phys. Rev. Lett.* 2004. V. 92. N 15. 157401. doi 10.1103/PhysRevLett.92.157401
- [50] *Перлин Е.Ю., Стаселько Д.И.* // *Опт. и спектр.* 2005. Т. 98. № 6. С. 944; *Perlin E.Yu., Stasel'ko D.I.* // *Opt. Spectrosc.* 2005. V. 98. N 6. P. 844. doi 10.1134/1.1953976

- [51] Mizumoto Y., Kayanuma Y., Srivastava A., Kono J., Chin A.H. // Phys. Rev. B. 2006. V. 74. N 4.045216. doi 10.1103/PhysRevB.74.045216
- [52] Иванов А.В., Перлин Е.Ю. // Опт. и спектр. 2009. Т. 106. № 5. С. 56 (I), 764 (II); Ivanov A.V., Perlín E.Yu. // Opt. Spectrosc. 2009. V. 106. N 5. P. 677. doi 10.1134/S0030400X09050099 (I), P. 685. doi 10.1134/S0030400X09050105 (II).
- [53] Бондарев М.А., Перлин Е.Ю. // Опт. и спектр. 2017. Т. 122. № 4. С. 580. (I), 586. (II); Bondarev M.A., Perlín E.Yu. // Opt. Spectrosc. 2017. V. 122. N 4. P. 561. doi 10.1134/S0030400X17040063 (I), P. 567. doi 10.1134/S0030400X17040075 (II)
- [54] Sim S., Lee D., Noh M., Cha S., Soh C.H., Sung J.H., Jo M.-H., Choi H. // Nat. Commun. 2016. V. 7. 13569. doi 10.1038/ncomms13569
- [55] Ivanov A. // JOSA B. 2018. V. 35. N 1. P. 20. doi 10.1364/JOSAB.35.000020
- [56] Yong C.-K., Horng J., Shen Y., Cai H., Wang A., Yang C.-S., Lin C.-K., Zhao S., Watanabe K., Taniguchi T., Tongay S., Wang F. // Nature Physics. 2018. V. 14. P. 1092. doi 10.1038/s41567-018-0216-7
- [57] Lamountain T., Bergeron H., Balla I., Stanev T.K., Hersam M.C., Stern N.P. // Phys. Rev. B. 2018. V. 97. 045307. doi 10.1103/PhysRevB.97.045307
- [58] Cunningham P.D., Hanbicki A.T., Reinecke T.L., McCreary K.M., Jonker B.T. // Nat. Commun. 2019. V. 10. 5539. doi 10.1038/s41467-019-13501-x
- [59] Fano U. // Phys. Rev. 1961. V. 124. P. 1866. doi 10.1103/PhysRev.124.1866
- [60] Акулин В.М., Карлов Н.В. Интенсивные резонансные взаимодействия в квантовой электронике. М.: Наука, 1987. 2 с.; Akulin V.M., Karlov N.V. Intense Resonant Interactions in Quantum Electronics. Berlin: Springer, 1992. Lecture 9.
- [61] Linskens A.F., Holleman I., Dam N., Reuss J. // Phys. Rev. A. 1996. V. 54. N 6. P. 4854. doi 10.1103/PhysRevA.54.4854
- [62] Kittel C. Quantum Theory of Solids. NY: Wiley, 1987. 528 p.; Киттель Ч. Квантовая теория твердых тел. М.: Наука, 1967. 492 с.
- [63] Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables / Ed. by Abramovitz M., Stegun I.A. National Bureau of Standards, Appl. Math. Ser. — 55. 1964; Справочник по специальным функциям с формулами, графиками и математическими таблицами / Под ред. Абрамовитца М., Стиган И. М.: Наука, 1979.