Szilárdtesttel kölcsönható lézerimpulzus karakterizálása a keltett áramok mérésével: elméleti modell

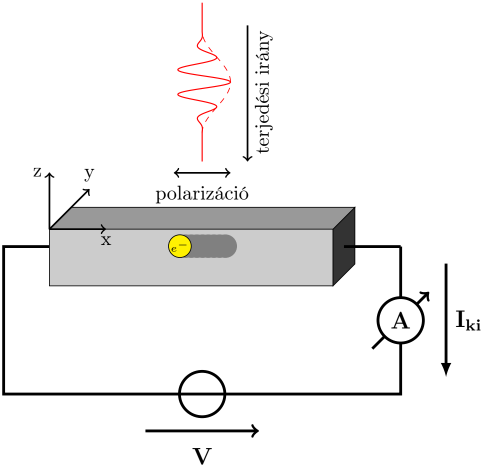
Készítette: Magashegyi István

Szegedi Tudományegyetem,
Természettudományi és Informatikai Kar,
Elméleti Fizikai Tanszék

2022. február 24.

"A Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal és az Innovációs és Technológiai Minisztérium ÚNKP-21-4 kódszámú Új Nemzeti Kiválósági Programjának támogatásával készült"

A sematikus kísérleti elrendezés



Alapfeltevések

- az elektronok mozgását csak egydimenzióban (x irány) vizsgáljuk
- a lézerimpulzus hatására létrejövő külső elektromos tér vektorpotenciáljának is csak az x irányú komponensét vesszük figyelembe.
- Femtoszekundumos tartományba eső impulzushosszak és GV/m csúcstérerősségek
- rácsrezgésektől eltekintünk
- több elektronvoltnyi szélességű tiltott sávok is áthidalhatók közeli infravörös gerjesztéssel => "többfotonos" folyamatok,
- pl. kristályos ZnO és amorf SiO_2,
- az intenzív lézerimpulzusok a szilárdtestekben áramokat is létrehoznak,
- az áramok időben olyan gyorsan oszcillálnak, hogy azt a jelenlegi detektorok nem képesek feloldani,
- időintegráljuk – azaz a lézerimpulzus által elmozdított töltés – már mérhető

Egy-elektron közelítés

$$\hat{H} = \frac{(\hat{p} - e\underline{\mathbf{A}})^2}{2m} + V(\underline{\mathbf{r}}) = \hat{H}_0 + \hat{H}_1$$

ahol a külső tér mentes

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\underline{\mathbf{r}})$$

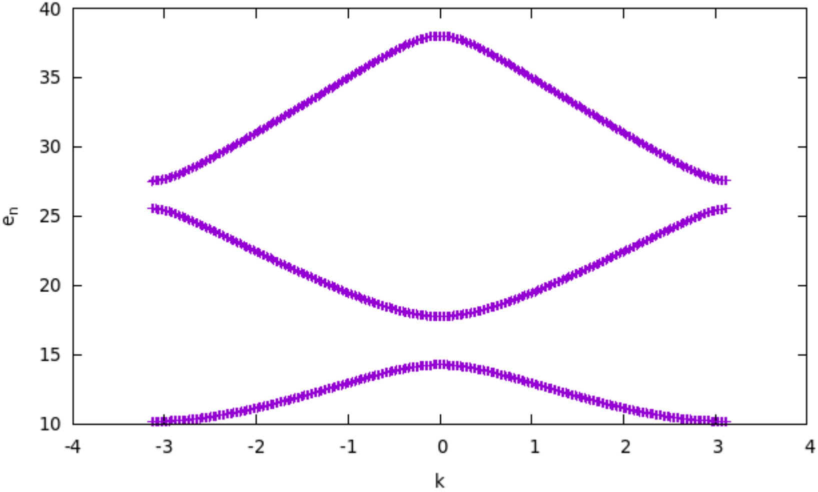
Bloch-állapotok:

$$\Psi_n(\underline{\mathbf{k}}, \underline{\mathbf{r}}) = \frac{1}{\sqrt{N}} u_n(\underline{\mathbf{k}}, \underline{\mathbf{r}}) e^{i\underline{\mathbf{k}}\underline{\mathbf{r}}},$$

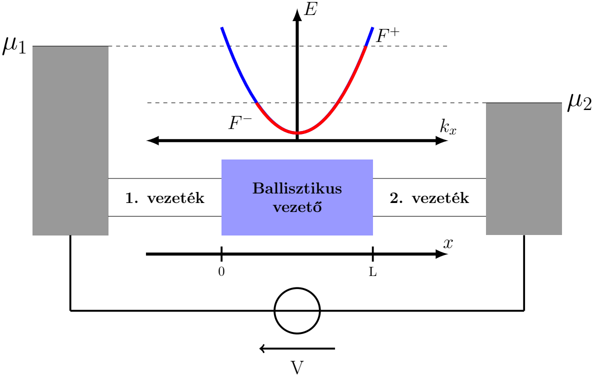
Az $u_n(\underline{\mathbf{k}}, \underline{\mathbf{r}})$ rács-periodikus függvények és az $\varepsilon_n(\underline{\mathbf{k}})$ sajátenergiák a H_0-ra felírt sajátérték egyenletből határozhatók meg.

$$\hat{H}_0 \left|\Psi_{n,\underline{\mathbf{k}}}\right\rangle = \varepsilon_n(\underline{\mathbf{k}}) \left|\Psi_{n,\underline{\mathbf{k}}}\right\rangle$$

Egy-elektron közelítés

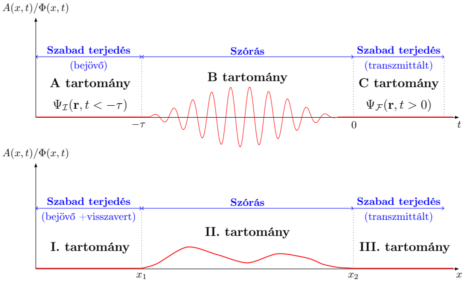


Modell



Modell

- kezdetben $t < -\tau$ a szilárdtest termikus egyensúlyban van => eredő áram nulla



- Kezdőállapot $\Psi_{\mathcal{I}}(\mathbf{r}, t < -\tau)$
- Az optikai gerjesztés hatására

$$\Psi_{\mathcal{F}}(\mathbf{r}, t = 0) = \Psi_{\mathcal{I}}(\mathbf{r}, t = 0) + \Psi_{\mathcal{A}}(\mathbf{r}, t = 0) \quad (1)$$

Térmentes időfejlődés

- $t = 0$-ban kezdjük a töltés mérését
- $t < -\tau$ és $t > 0$-ra külső tér mentes időfejlődés
- tetszőleges Φ energia sajátállapotra

$$\begin{aligned}\Phi(\mathbf{k},\mathbf{r},t) &= \Phi(\mathbf{k},\mathbf{r},t=0)\, e^{-i\frac{\mathcal{E}(\mathbf{k})}{\hbar}t} \\ &= \Phi(\mathbf{k},\mathbf{r},0)\, e^{-i\omega(\mathbf{k})t},\end{aligned}$$

  ahol $\mathcal{E}(\mathbf{k}) = \hbar\omega(\mathbf{k})$.
- szabad potenciáltér $\rightarrow$ síkhullám energia sajátállapotok, periodikus potenciáltér $\rightarrow$ Bloch-energia sajátállapotok
- Kezdőállapot $\Psi_{\mathcal{I}}(\mathbf{r},t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0,\mathbf{r},0)\, e^{-i\frac{\varepsilon_{n_0}(\mathbf{k_0})}{\hbar}t}$
- egyszerűség kedvéért:
  valószínűségi áram $\leftrightarrow$ áram, valószínűség $\leftrightarrow$ töltés

Dinamika meghatározása a külső lézerimpulzus hatása alatt

Vektorpotenciál:

$$A(x,t) = A_0 f(x) g(t) = A_0 \sin^2\left(\frac{\pi}{l}x\right)\sin^2\left(\frac{\pi}{\tau}t\right)\sin\left(\omega_0 t\right), \tag{2}$$

ahol τ a lézerimpulzus időbeli hossza, l pedig a térbeli kiterjedése.
A szimulációk folyamán a lézerimpulzus

- időbeli hossza $\tau = 26,7fs$ (10 teljes ciklus)
- központi körfrekvenciája $\lambda_0 = 800nm$
- térbeli kiterjedése $l = 160nm$

Dinamika meghatározása a külső lézerimpulzus hatása alatt

A rendszert leíró állapot: $|\Phi\rangle = \sum_{n,\underline{\mathbf{k}}} c_{n,\underline{\mathbf{k}}} \left|\Psi_{n,\underline{\mathbf{k}}}\right\rangle$

TDSE:

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}|\Phi\rangle = \hat{H}|\Phi\rangle = \hat{H}_0|\Phi\rangle + \hat{H}_1|\Phi\rangle$$

$$\begin{aligned}
i\hbar\frac{\partial}{\partial t}|\Phi\rangle = \hat{H}|\Phi\rangle &= \hat{H}_0|\Phi\rangle + \hat{H}_1|\Phi\rangle \\
i\hbar\left\langle\varphi_{m,\underline{\mathbf{q}}}\right|\frac{\partial}{\partial t}|\Phi\rangle &= \left\langle\varphi_{n,\underline{\mathbf{q}}}\right|\hat{H}_0|\Phi\rangle + \left\langle\varphi_{m,\underline{\mathbf{q}}}\right|\hat{H}_1|\Phi\rangle \\
\frac{\partial}{\partial t}c_{m,\underline{\mathbf{q}}} &= -\frac{i}{\hbar}\varepsilon_{m,\underline{\mathbf{q}}}c_{m,\underline{\mathbf{q}}} - \frac{i}{\hbar}\left\langle\varphi_{m,\underline{\mathbf{q}}}\right|\hat{H}_1|\Phi\rangle
\end{aligned}$$

Valószínűségi áram

$$
\begin{aligned}
j_{(x)}(\mathbf{r},t) &= \frac{\hbar}{m}\mathrm{Im}\left\{\Psi^*_{\mathcal{F}}(\mathbf{r},t)\frac{\partial\Psi_{\mathcal{F}}(\mathbf{r},t)}{\partial x}\right\} \\
&= \frac{\hbar}{m}\mathrm{Im}\left\{\Psi^*_{\mathcal{I}}(\mathbf{r},t)\frac{\partial\Psi_{\mathcal{I}}(\mathbf{r},t)}{\partial x}\right\} \\
&\quad +\frac{\hbar}{m}\mathrm{Im}\left\{\Psi^*_{\mathcal{A}}(\mathbf{r},t)\frac{\partial\Psi_{\mathcal{A}}(\mathbf{r},t)}{\partial x}\right\} \\
&\quad +\frac{\hbar}{m}\mathrm{Im}\left\{\Psi^*_{\mathcal{I}}(\mathbf{r},t)\frac{\partial\Psi_{\mathcal{A}}(\mathbf{r},t)}{\partial x}+\Psi^*_{\mathcal{A}}(\mathbf{r},t)\frac{\partial\Psi_{\mathcal{I}}(\mathbf{r},t)}{\partial x}\right\} \\
&= j_{\mathcal{I}}(\mathbf{r},t)+j_{\mathcal{A}}(\mathbf{r},t)+j_{\mathcal{C}}(\mathbf{r},t)
\end{aligned}
$$

Töltés

- tegyük fel $\mu_1 = \mu_2$
- $Q = \int\limits_0^\infty j_{(x)}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{d}t = Q_\mathcal{I} + Q_d$
- a $Q_\mathcal{I} = \int\limits_0^\infty j_\mathcal{I}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{d}t$ töltés az ellentétes **k**-jú tagok miatt kiesik,
- csak a

$$Q_d(\mathbf{r}, t \to \infty) = Q_d(\mathbf{r}) = \int\limits_0^\infty j_{(x)}(\mathbf{r}, t) - j_\mathcal{I}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{d}t$$

$$= \underbrace{\int\limits_0^\infty j_\mathcal{A}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{d}t}_{Q_a(\mathbf{r})} + \underbrace{\int\limits_0^\infty j_\mathcal{C}(\mathbf{r}, t)\,\mathrm{d}t}_{Q_c(\mathbf{r})}.$$

különbséget vizsgáljuk.

Analitikus számítások

- kifejtjük a kezdeti és az additív dinamikát hordozó állapotokat az energia sajátállapotokon

$$\Psi_{\mathcal{A}}(\mathbf{r},t) = \sum_{n,\underline{\mathbf{k}}} \int c_{n,\underline{\mathbf{k}}}\ \Psi_n(\underline{\mathbf{k}},\mathbf{r})\ e^{-i\varepsilon_n(n,\underline{\mathbf{k}})t}\ \mathrm{d}\underline{\mathbf{k}}$$

- kezdeti állapot legyen $\Psi_{\mathcal{I}}(\mathbf{r},t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0,\mathbf{r}) \Rightarrow c_{n_0}(\mathbf{k}_0) = 1$

Analitikus számítások

- a kifejtést behelyettesítve például a Q_a

$$Q_a(x) = \frac{\hbar}{m} \operatorname{Im} \left\{ \sum_{n,n'} \int_0^\infty \int_{BZ} \int_{BZ} e^{-i[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)]t} \right. \\ \left. \times c_n^*(k) c_{n'}(k') \Psi_n^*(k,x) \frac{\partial \Psi_{n'}(k',x)}{\partial x} \,\mathrm{d}k \,\mathrm{d}k' \,\mathrm{d}t \right\}. \tag{3}$$

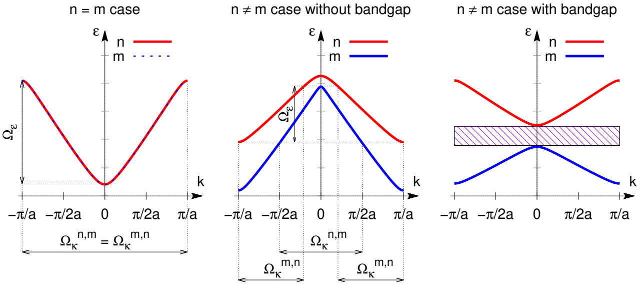
- szeparálhatóak a

$$\int_0^\infty e^{-i[\mathcal{E}_m(\kappa) - \mathcal{E}_n(\mathbf{k})]t} \,\mathrm{d}t = \pi\delta(\mathcal{E}_m(\kappa) - \mathcal{E}_n(\mathbf{k})) - \frac{i}{\mathcal{E}_m(\kappa) - \mathcal{E}_n(\mathbf{k})}$$

integrálok Q_a és Q_c-ben egyaránt.

Bloch-elektronok

- $\int\limits_0^\infty e^{-i[\mathcal{E}_m(\kappa)-\mathcal{E}_n(\mathbf{k})]t}\,\mathrm{d}t = \pi\delta(\mathcal{E}_m(\kappa)-\mathcal{E}_n(\mathbf{k})) - \frac{i}{\mathcal{E}_m(\kappa)-\mathcal{E}_n(\mathbf{k})}$



- tételezzük fel, hogy a tiltott sávok direktek, ekkor a kölcsönhatástól távol az $n \neq m$ tagok kiesnek,
- Bloch-elektronok esetén fennáll, hogy $\omega_n(k) = \omega_n(-k)$,

Analitikus számítások

- Q_a-t két részre bontjuk $Q_a(x) = Q_a'(x) + Q_a''(x)$,
- $$Q_a'(x) = \frac{\hbar}{m} \mathrm{Im} \Bigg\{ \pi \sum_n \int_{BZ} \frac{|c_n(k)|^2}{|\omega_n'(k)|} \Psi_n^*(k,x) \frac{\partial \Psi_n(k,x)}{\partial x} \, \mathrm{d}k + \pi \sum_n \int_{BZ} \frac{c_n^*(k) c_n(-k)}{|\omega_n'(-k)|} \Psi_n^*(k,x) \frac{\partial \Psi_n(-k,x)}{\partial x} \mathrm{d}k \Bigg\}, \tag{4}$$

$$Q_a''(x) = \mathrm{Im} \Bigg\{ \frac{-i\hbar}{m} \sum_{n,n'} \int_{BZ} \oint_{\Omega_+} \frac{c_n^*(k) c_{n'}(k')}{\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)} \times \Psi_n^*(k,x) \frac{\partial \Psi_{n'}(k',x)}{\partial x} \, \mathrm{d}k' \mathrm{d}k \Bigg\} \tag{5}$$

Analitikus számítások

- $Q'_a(x)$ átlagolása az egység cellára
- $$\overline{Q'_a}(x) = \frac{1}{a} \int\limits_{x-a/2}^{x+a/2} Q'_\Phi(s) ds. \tag{6}$$
- felhasználva, hogy

$$\int\limits_{-a/2}^{a/2} \Psi_n^*(k,x)(-i\hbar)\frac{\partial \Psi_n(k,x)}{\partial x} dx = \frac{1}{N}\omega'_n(k). \tag{7}$$

- $$\overline{Q'_\Phi} = \frac{\pi}{L} \sum_n \int\limits_{BZ} \operatorname{sgn}\left[\omega'_n(k)\right] \left|\phi_n(k)\right|^2 \mathrm{d}k, \tag{8}$$

Analitikus számítások

- $Q''_a(x)$ átlagolása + térbeli limesz + két eredmény összegzése
-

$$\overline{Q_a}(x \to \infty) = \frac{\pi}{L}\left(\sum_n \int_{BZ} (1 + \mathrm{sgn}[\omega'(k)]\, |c_n(k)|^2 \,\mathrm{d}k\right) = \frac{2\pi}{L} \sum_n \int^+ |c_n(k)|^2 \,\mathrm{d}k, \tag{9}$$

$$\overline{Q_a}(x \to -\infty) = -\frac{2\pi}{L} \sum_n \int^- |c_n(k)|^2 \,\mathrm{d}k. \tag{10}$$

- Q_c hasonló lépésekkel meghatározható

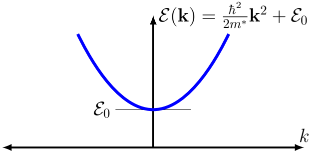
Analitikus számítások

$x \to \infty$-re tehát

$$\overline{Q_d}(x \to \infty) = \frac{2\pi}{L} \sum_n \int^{+} |c_n(k)|^2 \, \mathrm{d}k + \begin{cases} \frac{4\pi}{L} \operatorname{Re}\{c_{n_0}(k_0)\} & \text{if } \omega'_{n_0}(k_0) > 0 \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases} , \tag{11}$$

Kvázi szabad részecske

- parabolikus diszperziós reláció

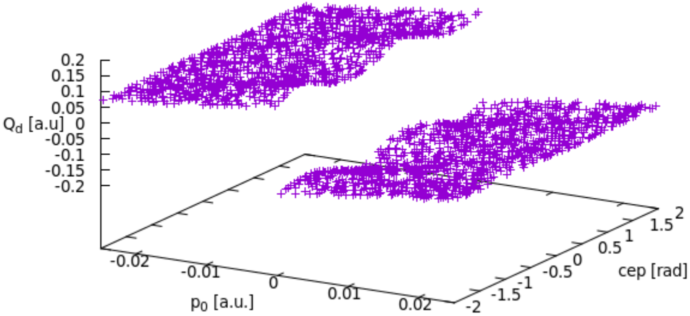


- egyetlen sáv
- analitikusan számolható töltés

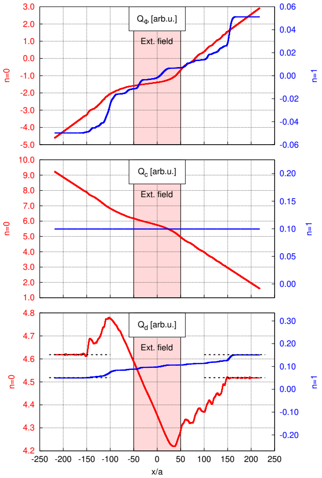
$$Q_d(x) = -\frac{m^*}{m}\int^{-} \tilde{\rho}_{\mathcal{A}}(k)\,\mathrm{d}k + \frac{m^*}{m}\int\limits_{-\infty}^{x} \rho_{\mathcal{A}}(s)\,\mathrm{d}s$$

$$+\,2\mathrm{Re}\left\{\frac{1}{\sqrt{L}}\int\limits_{-\infty}^{x} \Psi_{\mathcal{A}}(x')\,e^{-ik_0x'}\,\mathrm{d}x'\right\} - \begin{cases} \frac{4\pi}{L}\,\mathrm{Re}\left\{\tilde{\Psi}_{\mathcal{A}}(k_0)\right\} & \text{ha } k_0 < 0 \\ 0 & \text{különben} \end{cases}$$

Numerikus eredmények



Numerikus eredmény



- A $Q_d(x)$ mennyiség (önkényes egységekben) két, kvadratikus diszperzióval rendelkező sáv numerikusan számolt gerjesztése után.
- A paraméterek: A lézerimpulzus központi hullámhossza 800 nm, csúcstérerőssége 1 GV/m, hossza 10 optikai ciklus. A tiltott sáv szélessége 3 eV, $k_0 a = 0.1$.

Összefoglaló

- 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.

Köszönöm a megtisztelő figyelmet!