

**Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова**  
Физический факультет

# **Лазерная спектроскопия элементарных возбуждений в твердом теле**

**Учебное пособие**

**Москва  
2023**

**УДК 535.21**

Авторский коллектив: *К.А. Кузнецов*

**Лазерная спектроскопия элементарных возбуждений в твердом теле: учебное пособие. //– М.: Физический факультет МГУ, 2023. – 103 с. : 58 ил.**



**Проект реализуется победителем грантового конкурса для преподавателей магистратуры 2021/2022 Стипендиальной программы Владимира Потанина.**

Учебное пособие актуально в связи с переходом на новые образовательные стандарты, внедрением квантовых технологий в сфере бизнеса и коммуникаций. Представленный спецкурс, находящийся на стыке разных научных дисциплин - физики твердого тела, лазерной физики, квантовой оптики, востребован образовательным сообществом. Новизна курса состоит в операциональном подходе к наблюдаемым явлениям, в стремлении выразить физические понятия через наблюдаемые и измеряемые в эксперименте величины. Исследования новых явлений и физических объектов таких, как: сверхбыстрый оптомагнетизм, топологические изоляторы, полупроводниковые наногетероструктуры, экситонный бозе-эйнштейновский конденсат, а также обзор некоторых важных терагерцевых и квантовых технологий, нашли отражение в этой книге.

**Учебное пособие предназначено для студентов старших курсов и аспирантов физических специальностей.**

**Рецензент:**

*Д.ф.-м.н. В.В. Губернов*

© К.А. Кузнецов, 2023

© Физический факультет МГУ, 2023

## Оглавление

<b>Предисловие</b> .....	4
<b>Глава 1. Спектроскопия бозонных возбуждений</b>	
1.1 Фононы. Комбинационное (рамановское) рассеяние. Рассеяние Мандельштама-Бриллюэна. Рассеяние света на когерентных фононах (методы ISRS и DECP) .....	5
1.2 Фононные поляритоны. Спектроскопия спонтанного параметрического рассеяния света. Рассеяние света на поляритонах.....	16
1.3 Экситоны, экситонные поляритоны. Бозе-конденсация экситонных поляритонов. Резонансное рассеяние .....	38
1.4 Активная спектроскопия поляритонов. Метод когерентного антистоксового рассеяния (КАРС). Поляритонная спектроскопия с временным разрешением.....	44
1.5 Магноны. Сверхбыстрый оптомагнетизм.....	52
<b>Задачи и вопросы</b> .....	57
<b>Глава 2. Спектроскопия фермионных возбуждений</b>	
2.1 Диэлектрическая функция полупроводника, сингулярности Ван Хофа. ....	58
2.2 Модуляционная спектроскопия. Электроотражение, эффект Франца-Келдыша.....	61
2.3 Терагерцовые фотопроводящие антенны.....	65
2.4 Электрон-фононное взаимодействие. Поляроны большого и малого радиуса. Спектры поглощения. Кинетика внутризонного поглощения света поляронами малого радиуса.....	68
<b>Задачи и вопросы</b> .....	85
<b>Глава 3. Поверхностные возбуждения в твердом теле</b>	
3.1 Поверхностные возбуждения: фононные поляритоны, .....	86
3.2 Нелинейнооптическая активная спектроскопия поверхностных возбуждений.....	89
3.3 Топологические изоляторы. Фотоэлектронная спектроскопия с угловым разрешением (ARPES).....	92
<b>Задачи и вопросы</b> .....	102
<b>Литература</b> .....	103

## Предисловие

Учебное пособие предназначено для студентов старших курсов и аспирантов физических специальностей. Его преимущественная задача состоит в ознакомлении студентов с экспериментальными методами исследования элементарных возбуждений в твердом теле методами современной лазерной спектроскопии, а также с теоретическими основами физики конденсированного состояния.

Представленное пособие даст студентам и аспирантам сведения о фундаментальных явлениях современной физики таких как: эффект Франца-Келдыша, параметрическое рассеяние света в нецентросимметричных средах, сверхбыстрый оптомагнетизм в ферро- и антиферромагнетиках, топологические изоляторы и другими. Многие рассмотренные физические эффекты активно используются в таких практически важных направлениях, как физика наносистем, квантовая электроника, терагерцовая фотоника, классическая и квантовая информатика. В пособии дается представление о современных методах лазерной спектроскопии на примере метода «накачка-зондирование» (pump-probe), модуляционной спектроскопии, а также таком мощном методе диагностики электронных спектров полупроводников и топологических изоляторов как фотоэлектронная спектроскопия с угловым разрешением (ARPES).

Пособие разбито на 3 части: спектроскопия бозонных возбуждений, спектроскопия фермионных возбуждений и спектроскопия поверхностных возбуждений в твердом теле. Каждая часть включает теоретическое введение, содержащее необходимую информацию для понимания экспериментальных результатов, представленных и собранных в настоящем пособии на основании литературных источников и работ автора.

# Глава 1. Спектроскопия бозонных возбуждений

## 1.1 Фононы. Комбинационное (рамановское) рассеяние. Бриллюэновское рассеяние. Рассеяние света на когерентных фононах (методы ISRS и DECP)

### Фононы

Задачу о нахождении нормальных механических колебаний в твердом теле, характеризующимся наличием дальнего порядка (периодичностью в расположении структурных атомов или ионов) можно рассмотреть, записав гамильтониан системы:

$$H = \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} + \sum_{l,l'} \frac{u_{l,l'} x_l x_{l'}}{2}. \quad (1.1)$$

Далее, записав гамильтоновы уравнения движения:

$$\begin{cases} \dot{p}_i = -\frac{\partial H}{\partial x_i} \\ \dot{x}_i = \frac{\partial H}{\partial p_i} \end{cases}, \quad (1.2)$$

и решив их, можно получить закон дисперсии нормальных колебаний  $\omega_j = \omega_j(k)$  в трехмерном кристалле. Общее число ветвей равно  $3s$ , где  $s$  – число атомов в элементарной кристаллической ячейке. Из этих ветвей 3 акустические (одна продольная LA и две вырожденные поперечные  $TA_{1,2}$ ), а также  $3s-3$  оптических ветвей (Рис.1).

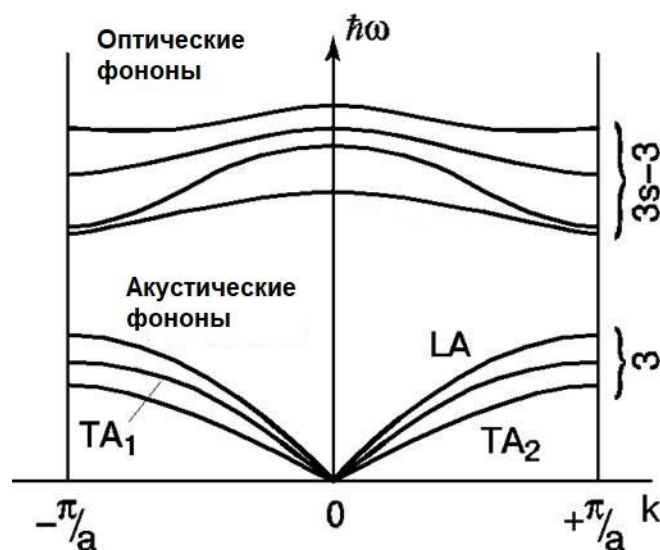
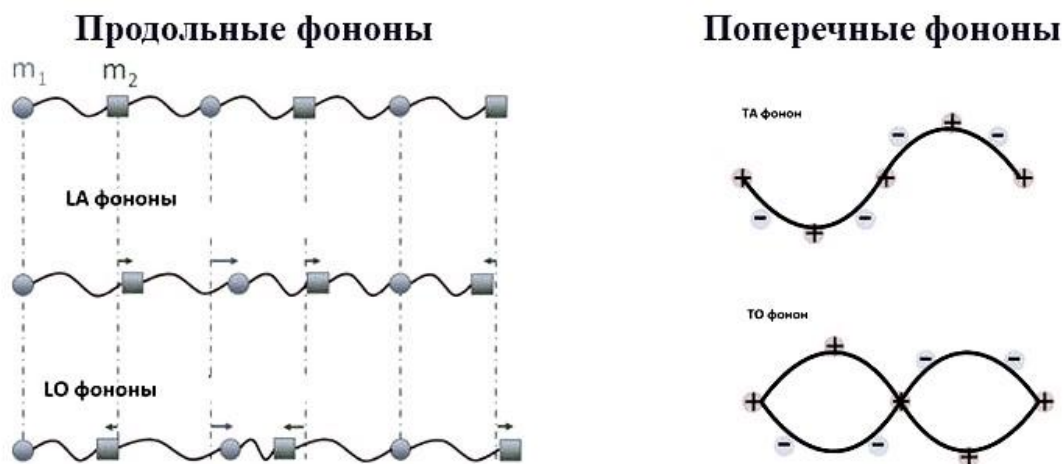


Рис.1. Дисперсия нормальных колебаний в трехмерном кристалле

Отличия в характере оптических и акустических колебаний можно понять из Рис.1 на примере двухатомной цепочки с атомам массой  $m_1$  и  $m_2$ . В случае оптических мод, соседние атомы движутся в противофазе друг с

другом, поэтому такие моды характеризуются осциллирующим дипольным моментом вследствие изменения расстояния между соседними атомами или ионами. В то время как в случае акустических мод соседние атомы движутся синфазно, и осцилляция дипольного момента не наблюдается.



**Рис.2.** Особенности движения атомов одномерной решетки при возбуждении продольных и поперечных колебаний

Используя стандартную процедуру разложения смещений атомов и их импульсов по плоским волнам, а также метод вторичного квантования с операторами рождения  $\hat{a}_k^+$  и уничтожения  $\hat{a}_k$  фононов в моде  $k$ :

$$\begin{aligned} x_n &\propto \sum_k A_k (\hat{a}_k e^{ikl} + \hat{a}_k^+ e^{-ikl}) \\ p_n &\propto i \sum_k B_k (\hat{a}_k e^{ikl} - \hat{a}_k^+ e^{-ikl}) \end{aligned} \quad (1.3)$$

получим следующий гамильтониан:

$$\hat{H} = \sum_k \hbar \omega_k (\hat{a}_k^+ \hat{a}_k + 1/2). \quad (1.4)$$

Оператор  $\hat{N}_k = \hat{a}_k^+ \hat{a}_k$  естественно считать оператором числа фононов на моду по аналогии с оператором числа фотонов, известного из квантовой оптики. Если учитывать ангармонические члены, описывающие трехфононные процессы распада и слияния фононов, то гамильтониан будет выглядеть следующим образом:

$$\hat{H} = \sum_k \hbar \omega_k (\hat{a}_k^+ \hat{a}_k + 1/2) + \sum_k \sum_q \Gamma(k, q) (\hat{a}_{k-q}^+ \hat{a}_q^+ \hat{a}_k - \hat{a}_k^+ \hat{a}_q \hat{a}_{k-q}) + \dots \quad (1.5)$$

Такие процессы отвечают за затухание и определяют время жизни фононов.

## Комбинационное (рамановское) рассеяние

Рассмотрим макроскопическую теорию рассеяния света на фононах в твердом теле [1]. Пусть на среду падает излучение накачки:

$$E(r, t) = E(k_i, \omega_i) \cos(k_i r - \omega_i t). \quad (1.6)$$

В линейном приближении излучение вызовет поляризацию среды на той же частоте  $\omega_i$ :

$$P(r, t) = P(k_i, \omega_i) \cos(k_i r - \omega_i t). \quad (1.7)$$

Фурье-амплитуды поляризации и напряженности поля связаны через линейную восприимчивость среды  $\chi(k_i, \omega_i)$ :

$$P(k_i, \omega_i) = \chi(k_i, \omega_i) E(k_i, \omega_i). \quad (1.8)$$

Возбуждение фононов приводит к появлению новых гармоник в отклике среды на внешнее электромагнитное поле. Смещение атомов при возбуждении фононов можно представить как:

$$Q(r, t) = Q(q, \omega_0) \cos(qr - \omega_0 t). \quad (1.9)$$

Где  $q$  и  $\omega_0$ , соответственно, можно рассматривать как волновой вектор и частоту фонона. Появление этих колебаний приводит к “модуляции” восприимчивости и появлению в разложении  $\chi(k_i, \omega_i)$  новых членов. В приближении, что частоты электронных переходов много больше частот фононов (адиабатическое приближение), в разложении восприимчивости будут только производные по смещениям  $Q$ , полагаемым малыми:

$$\chi(k_i, \omega_i, Q) = \chi_0(k_i, \omega_i) + \left( \frac{\partial \chi}{\partial Q} \right)_0 Q(r, t) + \left( \frac{\partial^2 \chi}{\partial Q^2} \right)_0 Q^2(r, t) + \dots \quad (1.10)$$

В результате, в поляризации появятся несколько вкладов:

$$P(r, t, Q) = P_0(r, t) + P_{ind}(r, t, Q). \quad (1.11)$$

Первый член  $P_0(r, t) = \chi_0(k_i, \omega_i) E_i(k_i, \omega_i) \cos(k_i r - \omega_i t)$  находится в фазе с возбуждающим излучением, а второй в первом приближении описывает комбинационное (рамановское) рассеяние света, индуцированное фононом:

$$P_{ind}(r, t, Q) = \left( \frac{\partial \chi}{\partial Q} \right)_0 Q(r, t) E_i(k_i, \omega_i) \cos(k_i r - \omega_i t). \quad (1.12)$$

Если расписать выражение (1.12), то мы получим:

$$\begin{aligned} P_{ind}(r, t, Q) &= \left( \frac{\partial \chi}{\partial Q} \right)_0 Q(q, \omega_0) \cos(qr - \omega_0 t) E_i(k_i, \omega_i) \cos(k_i r - \omega_i t) = \\ &= \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \chi}{\partial Q} \right)_0 Q(q, \omega_0) E_i(k_i, \omega_i) \left[ \cos((k_i + q)r - (\omega_i + \omega_0)t) + \cos((k_i - q)r - (\omega_i - \omega_0)t) \right] \end{aligned} \quad (1.13)$$

Из (1.13) видно, что возникают новые частотные вклады, описывающие антистоксово и стоксово рассеяние света. Для этих процессов выполняются условия сохранения энергии и импульса:

$$\begin{cases} k_{Anti\_stokes} = k_i + q \\ \omega_{Anti\_stokes} = \omega_i + \omega_0 \end{cases}, \begin{cases} k_{Stokes} = k_i - q \\ \omega_{Stokes} = \omega_i - \omega_0 \end{cases}. \quad (1.14)$$

Интенсивность рассеянного излучения, регистрируемая в эксперименте, пропорциональна квадрату поляризации:

$$I_s \propto |\vec{P}_{ind} \vec{e}_s|^2 \propto \left| \vec{e}_i \left( \frac{\partial \chi}{\partial Q} \right)_0 Q(\omega_0) \vec{e}_s \right|^2 = |\vec{e}_i \hat{R} \vec{e}_s|^2. \quad (1.15)$$

Где  $\vec{e}_s$  и  $\vec{e}_i$  - единичные орты векторов поляризации электрического поля, а через  $\hat{R}$  обозначен новый тензор, называемый также рамановским тензором:

$$\hat{R} \equiv \left( \frac{\partial \chi}{\partial Q} \right)_0 Q(\omega_0). \quad (1.16)$$

Поскольку этот тензор связывает два вектора  $\vec{P}_s = \hat{R} \vec{E}_i$ , то он является тензором второго ранга. Геометрия рассеяния обычно обозначается общепринятым способом как  $\vec{k}_i(\vec{e}_i, \vec{e}_s)\vec{k}_s$ . На Рис.3 в качестве примера приведено рассеяние в геометрии рассеяния назад:

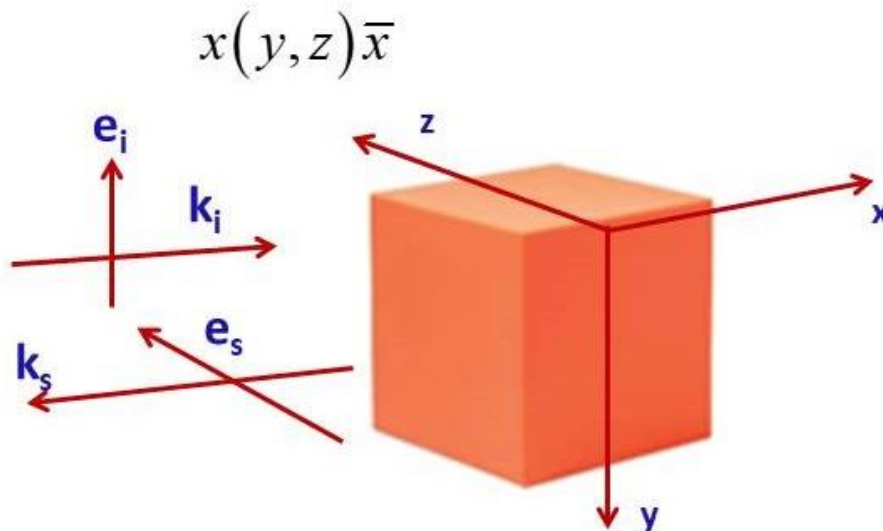


Рис.3. Геометрия комбинационного рассеяния «назад»

Подчеркнем, что несмотря то, что Нобелевская премия за открытие комбинационного рассеяния (КР) была присуждена в далеком 1930 году, КР остается мощным инструментом исследования конденсированных сред. Например, методом КР разрешимы спектры даже отдельных монослоев и связей (типа Ge-Si) на интерфейсе.

Если учитывать следующие по степеням смещений  $Q$  члены в разложении восприимчивости, то мы придем к двухфононному комбинационному рассеянию света. Существенным качественным отличием однофотонного и двухфононного КР является различие спектров по ширине. За счет того, что условия синхронизма для двухфононного КР



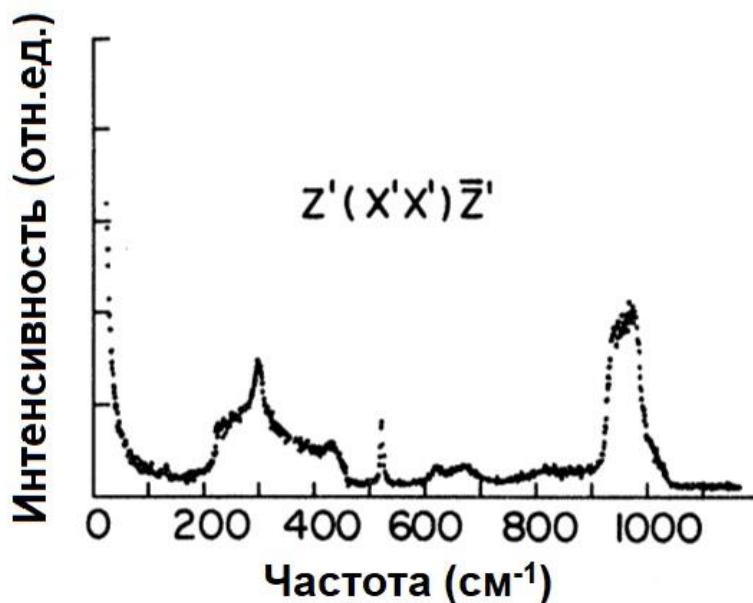
выполняются для двух фононов, поэтому снимаются ограничение малости волнового вектора фононов, участвующих в процессе КР (см. 1.14). Поскольку в законе сохранения импульса для 2-фотонного КР фигурируют волновые векторы двух фононов:

$$\vec{k}_s = \vec{k}_i \pm \vec{q}_{phon1} \pm \vec{q}_{phon2}, \quad (1.17)$$

то начинает «работать» большая часть зоны Бриллюэна, что и приводит к существенным ширинам спектров в эксперименте. Интересной особенностью двухфотонного КР является появление изломов и слабых пиков на фоне широких многофононных спектральных линий. Их появление обусловлено наличием сингулярностей Ван Хофа. По аналогии с электронными состояниями (см. раздел 2.1) можно ввести плотность фононных состояний:

$$\rho(\omega) = \frac{V}{4\pi^3} \sum_j \frac{dS_j}{grad(\omega_j(k))}. \quad (1.18)$$

На тех частотах, на которых наблюдаются разрывы и сингулярности функции плотности фононных состояний, будут проявляться особенности в спектрах двухфононного КР (Рис.4). Физические причины появления таких особых точек – пересечение различных фононных дисперсионных ветвей.



**Рис.4.** Двухфононное комбинационное рассеяние света в кремнии [2]

## Рассеяние Мандельштама-Бриллюэна

Рассеяние Мандельштама-Бриллюэна (РМБ) представляет собой процесс комбинационного рассеяния света на акустических фононах. Его особенностями являются малые по сравнению с КР частоты, волновые вектора и углы рассеяния. Это делают процедуру измерения спектров крайне сложной в экспериментальном плане из-за необходимости селекции сигнала на крайне малом удалении от накачки порядка 10-100 ГГц. В остальном процесс РМБ очень похож на КР. Анализируя треугольник синхронизма, составленный из волновых векторов накачки ( $k_i$ ), сигнальной волны ( $k_s$ ) и акустического фонона ( $q$ ), можно получить:

$$q = \sqrt{k_i^2 + k_s^2 - 2k_i k_s \cos \theta}, \quad (1.19)$$

где  $\theta$  – угол между векторами  $k_i$  и  $k_s$ . Преобразуя (19) к виду:

$$q = \sqrt{(k_i - k_s)^2 + 4k_i k_s \sin^2(\theta/2)}, \quad (1.20)$$

и полагая  $\omega_i \approx \omega_s$ , а также используя линейный характер дисперсии акустических фононов при малых  $q$ , легко получить:

$$\omega_{ac}(q) = \frac{2n_i \omega_i v_{ac}}{c} \sin(\theta/2). \quad (1.21)$$

Таким образом, измеряя частотно-угловые спектры РМБ, можно измерить скорость звука  $v_{ac}$  в среде.

## Рассеяние света на когерентных фононах (методы ISRS и DECP)

Когерентные фоновые состояния по определению представляют собой собственные состояния оператора уничтожения фонона  $\hat{a}_k$  в моде  $k$ :

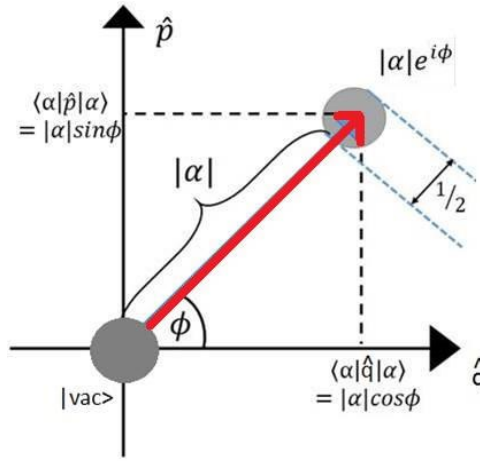
$$\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle. \quad (1.22)$$

Когерентное состояние можно получить из вакуумного путем действия оператора смещения на вакуумное состояние:

$$\begin{aligned} \hat{D} &= \exp(\alpha \hat{a}_k^+ - \alpha^* \hat{a}_k) \\ |\alpha\rangle &= \hat{D}|0\rangle \end{aligned} \quad (1.23)$$

Оператор координаты и сопряженный ему оператор импульса известным образом выражаются через операторы рождения и уничтожения:

$$\begin{aligned} \hat{q} &= \frac{\hat{a}_k + \hat{a}_k^+}{\sqrt{2}} \\ \hat{p} &= \frac{\hat{a}_k - \hat{a}_k^+}{\sqrt{2}i} \end{aligned} \quad (1.24)$$



**Рис.5.** Когерентное состояние

Принципиальным отличием когерентного состояния от вакуумного является ненулевое среднее число фононов на моду. Действительно, для вакуумных состояний:

$$\langle N_{vac} \rangle = \langle 0 | \hat{N} | 0 \rangle = \langle 0 | \hat{a}_k^+ \hat{a}_k | 0 \rangle = 0, \quad (1.25)$$

А для когерентных:

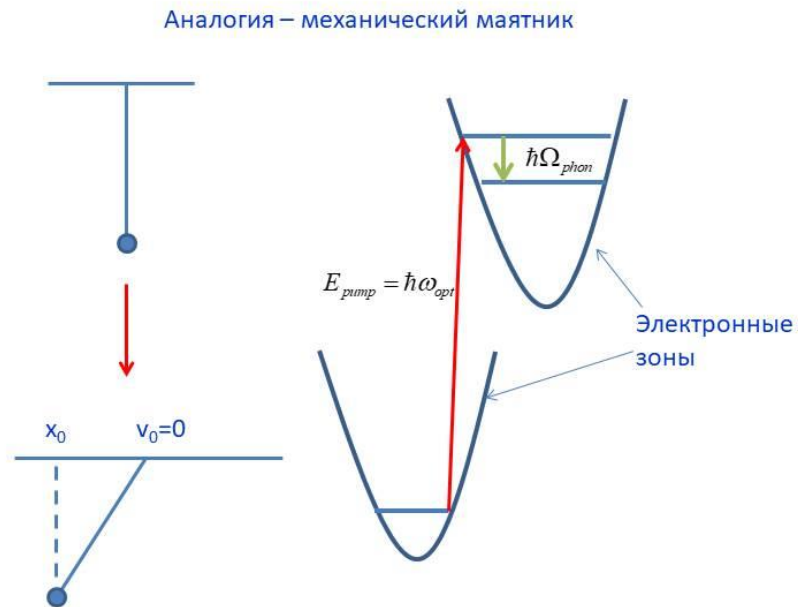
$$\langle N_{coh} \rangle = \langle \alpha | \hat{N} | \alpha \rangle = \langle \alpha | \hat{a}_k^+ \hat{a}_k | \alpha \rangle = |\alpha|^2, \quad (1.26)$$

что делает их наблюдаемыми и измеряемыми в эксперименте.

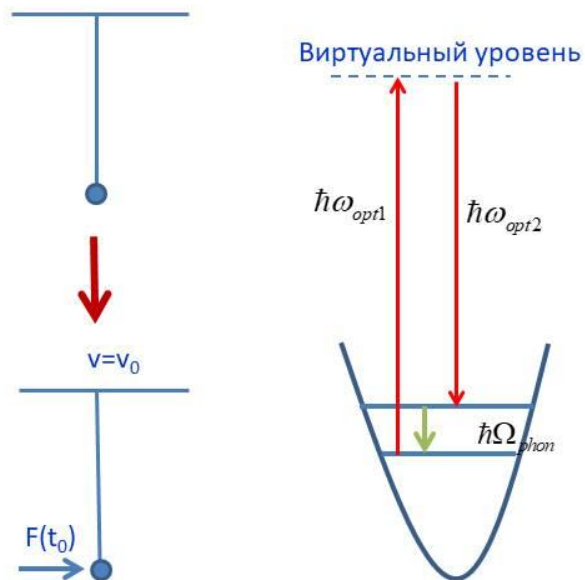
Экспериментально используются, как правило, два основных класса метода возбуждения когерентных фононов за счет механизма смещения и за счет ударного механизма. Механизм смещения (Displasive Excitations of Coherent Phonons - DECP) основан на изменении электронного состояния системы при поглощении оптической моно-накачки. При этом поле обеспечивает только энергию для возбуждения и последующей релаксации электронной системы, поэтому таким способом можно возбудить не любые, а только полно симметричные фононы. Напротив, при ударном механизме (Impulsive Stimulated Raman Scattering - ISRS). При этом электронное состояние системы не меняется и используется бигармоническая оптическая накачка. Поэтому фазовые характеристики и тип симметрии фононов определяются параметрами Фурье-компонент излучения, и возможно возбуждение любых комбинационно-активных фононов.

На рис.6 приведена механическая аналогия, поясняющая принцип механизма смещения. Колебания в маятнике можно возбудить двумя способами. Первый – это вывести его из положения равновесия, сообщив ему некоторую потенциальную энергию, и отпустить с начальной нулевой скоростью. Это будет аналогом механизма смещения, в котором электронной подсистеме сообщается энергия накачки, электроны переходят в вышележащую зону проводимости и, релаксируя, излучают при том когерентные фононы. Напротив, в ударном механизме (рис.7) грузику маятника сообщается некоторая начальная скорость при упругом взаимодействии с другим телом, а начальная потенциальная энергия

маятника не меняется. Этому случаю соответствует бигармоническая лазерная накачка с промежуточным виртуальным состоянием.



**Рис. 6.** Возбуждение когерентных фононов через механизм смещения



**Рис.7.** Возбуждение когерентных фононов посредством ударного механизма

Рассмотрим феноменологическую модель возбуждения когерентных фононов за счет механизма DECP, предложенную в [3]. В рассматриваемой нами модели возбуждающий оптический импульс с частотой  $\omega$  падает в момент времени  $t = 0$  на поверхность материала. Возбуждение фонона вызывает изменение отражательной способности  $\Delta R(t)$ , которое в конечном итоге возвращается к нулю. При наблюдении DECP мы постулируем, что причиной колебаний  $\Delta R(t)$  является изменение квазиравновесной ядерной координаты  $Q_0(t)$  (где  $Q_0(t)$  определяет смещение ионов до падения оптического импульса на поверхность полупроводника). Оптический импульс изменит температуру электронов на уровне Ферми  $\Delta T_e(t)$ , но может также вызвать межзонные переходы, в результате которых в возбужденных зонах останется создается неравновесная концентрация электронов  $n(t)$ . Следует отметить, что все материалы, в которых до сих пор наблюдали DECP (Bi, Sb, Te,  $Ti_2O_3$ , GeTe и др.), являются либо полуметаллами, либо полупроводниками с энергетическими зонами выше уровня Ферми, доступными для возбуждения импульсами накачки свыше  $-2\text{эВ}$ , используемых в этих экспериментах. На современном этапе исследований сложно различить, является ли  $n(t)$  или  $\Delta T_e(t)$  доминирующим источником наблюдаемого DECP. Однако предположение о том, что изменение квазиравновесной ядерной координаты  $Q_0(t)$  пропорционально либо  $n(t)$ , либо  $\Delta T_e(t)$ , приводит к очень похожему результату для  $\Delta R(t)$  из-за DECP. Следующий вывод основан на  $n(t)$  как источнике DECP. Уравнение, описывающее скорость изменения  $n(t)$  на поверхности образца, имеет вид (первое уравнение в (1.27)):

$$\begin{cases} \frac{dN(t)}{dt} = \rho g(t) E_{pump} - \beta N(t) \\ Q_0(t) = \kappa N(t) \\ \frac{d^2 Q(t)}{dt^2} + 2\gamma \frac{dQ(t)}{dt} + \omega_0^2 (Q(t) - Q_0(t)) = 0 \end{cases} \quad (1.27)$$

Первое слагаемое в правой части первого уравнения - скорость генерации носителей в возбужденных зонах, которая считается пропорциональной плотности мощности  $g(t)E_{pump}$  - энергии в возбуждающем импульсе, приходящей на единицу площади в единицу времени на поверхность,  $g(t)$  — нормированная функция формы импульса, а  $\rho$  - константа пропорциональности. Второе слагаемое в первом уравнении (1.27) — скорость переходов электронов обратно в основное состояние в валентной зоне. Источником возбуждения фононной моды является возникновение неравновесной концентрации  $\Delta N(t)$ , эту зависимость примем линейной — второе уравнение системы (1.27). И, наконец, уравнение, описывающее временную зависимость  $Q(t)$ , запишем в виде третьего уравнения в (1.27). Здесь  $\omega_0$  — частота фонона,  $\gamma$  представляет собой константу затухания этой фононной моды. Мы предполагаем, что изменение частоты при

возбуждении фонона мало, и им в первом приближении можно пренебречь. Основной результат можно записать в виде:

$$N(t) = \rho E_{pump} \int_0^{\infty} g(t-\tau) e^{-\beta\tau} d\tau \quad (1.28)$$

Тогда для  $Q(t)$  несложно получить выражение:

$$, \quad (1.29)$$

где частота  $\Omega \equiv \sqrt{\omega_0^2 - \gamma^2}$ . Если  $R_0$  — невозмущенная отражательная способность до прихода импульса накачки, то нормированное приращение коэффициента отражения пробного импульса за счет возбуждения фонона при поглощении накачки можно записать как:

$$\frac{\Delta R(t)}{R} = \frac{1}{R} \left[ \frac{\partial R}{\partial N} N(t) + \frac{\partial R}{\partial Q} Q(t) \right]. \quad (1.30)$$

Производные  $R$  в уравнении. (1.30) появляются потому, что  $R$  является функцией комплексной диэлектрической проницаемости, которая, в свою очередь, модулируется  $N$  и  $Q$ . Хорошо известное выражение для коэффициента отражения при нормальном падении  $R$  через диэлектрическую функцию на частоте накачки и зондирования и имеет вид:

$$R = \frac{(n_1 - 1)^2 + n_2^2}{(n_1 + 1)^2 + n_2^2}, \quad (1.31)$$

где  $\varepsilon(\omega) = (n_1 + in_2)^2$ . В результате получаем:

$$\frac{\Delta R(t)}{R} = A \int_0^{\infty} g(t-\tau) e^{-\beta\tau} d\tau + B \frac{\omega_0^2}{\omega_0^2 + \beta^2 - 2\gamma\beta} \int_0^{\infty} g(t-\tau) \left[ e^{-\beta\tau} - e^{-\gamma\tau} \cos \Omega\tau - \left( \frac{\beta - \gamma}{\Omega} \right) \sin \Omega\tau \right] d\tau \quad (1.32)$$

где коэффициенты  $A$  и  $B$  выражаются через частные производные действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости:

$$A = \frac{1}{R} \left[ \frac{\partial R}{\partial \varepsilon_1} \frac{\partial \varepsilon_1}{\partial N} + \frac{\partial R}{\partial \varepsilon_2} \frac{\partial \varepsilon_2}{\partial N} \right] \rho E_{pump} \quad (1.33)$$

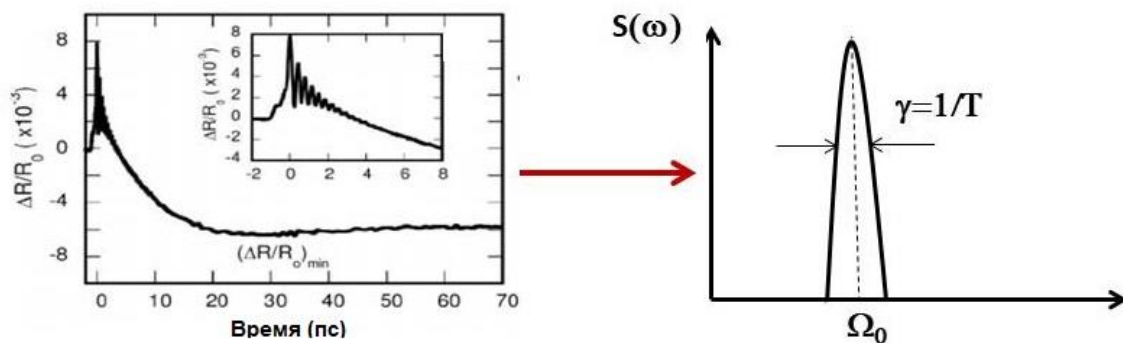
$$B = \frac{1}{R} \left[ \frac{\partial R}{\partial \varepsilon_2} \frac{\partial \varepsilon_2}{\partial Q} + \frac{\partial R}{\partial \varepsilon_1} \frac{\partial \varepsilon_1}{\partial Q} \right] \kappa \rho E_{pump}$$

В приближении  $\beta, \gamma \ll \omega_0$  и полагая, что импульс накачки очень узкий и может полагаться в выражении (1.32) как дельта-функция, получаем в результате интегрирования:

$$\frac{\Delta R(t)}{R} = A e^{-\beta t} + B \frac{\omega_0^2}{\omega_0^2 + \beta^2 - 2\gamma\beta} \left[ e^{-\beta t} - e^{-\gamma t} \cos \Omega t - \left( \frac{\beta - \gamma}{\Omega} \right) \sin \Omega t \right]. \quad (1.34)$$

Первый член, очевидно, представляет собой вклад в нормированное дифференциальное отражение за счет процессов межзонной релаксации носителей, он достаточно медленный и не представляет большого интереса. В то время как последние два члена, быстро осциллирующие на частоте  $\Omega$

непосредственно связаны с возбуждением когерентных фононов. На рис.8 приведен типичный результат эксперимента «накачка-зондирование» по возбуждению когерентных фононов в полупроводнике. Проводя процедуру преобразования Фурье от временной зависимости нормированного дифференциального отражения, на основании анализа спектра можно установить частоты возбуждаемых фононов и их константы затухания.



**Рис.8.** Возбуждение когерентных фононов методом DECP в эксперименте

## 1.2 Фононные поляритоны. Спектроскопия спонтанного параметрического рассеяния света. Рассеяние света на поляритонах

Рассмотрим задачу о стационарном взаимодействии электромагнитных волн с пространственно-однородной средой. Падающая на среду электромагнитная волна с напряженностью электрического поля  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  индуцирует поляризацию среды  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ . Напряженность поля и поляризацию можно представить в виде суммы независимых компонент:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{\alpha} \mathbf{E}_{\alpha}(\mathbf{k}_{\alpha}, \omega_{\alpha}) = \sum_{\alpha} \mathbf{E}_{\alpha} \cdot \exp[i(\mathbf{k}_{\alpha} \cdot \mathbf{r} - \omega_{\alpha} \cdot t)] \\ \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{\beta} \mathbf{P}_{\beta}(\mathbf{k}_{\beta}, \omega_{\beta}) = \sum_{\beta} \mathbf{P}_{\beta} \cdot \exp[i(\mathbf{k}_{\beta} \cdot \mathbf{r} - \omega_{\beta} \cdot t)] \end{aligned} \quad (1.35)$$

В дипольном приближении спектральные компоненты поляризации и электрического поля связаны следующим нелинейным соотношением (здесь и далее тензорный характер задачи не учитывается):

$$\mathbf{P}_m = \chi^{(1)}(\omega_m) \mathbf{E}_m + \chi^{(2)}(\omega_m = \omega_{\alpha} + \omega_{\beta}) \mathbf{E}_{\alpha} \mathbf{E}_{\beta} + \dots \quad (1.36)$$

где  $\chi^{(1)}$ ,  $\chi^{(2)}$ , ... - линейная и нелинейные восприимчивости среды.

Используя (1.35) и (1.36), из уравнений Максвелла можно получить систему уравнений Гельмгольца:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) - \frac{\omega_i^2}{c^2} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) = \frac{4\pi\omega_i^2}{c^2} \cdot \mathbf{P}(\mathbf{k}_m, \omega_m = \omega_i) \quad (1.37)$$

Система уравнений (1.37) описывает нелинейно-оптические процессы взаимодействия излучения с веществом, когда частоты взаимодействующих волн лежат в области прозрачности среды. Если же частота одной из взаимодействующих волн попадает в область решеточного резонанса, то уравнения (1.37) следует дополнить уравнениями, описывающими движение ионов кристаллической решетки под действием нелинейной вынуждающей силы. Впервые такое рассмотрение было проведено в работах Б.Н.Толпыго, Хуанга Куна и М.Борна. Задачу о линейном (и нелинейном) взаимодействии электромагнитного поля с дипольно-активными колебаниями среды будем рассматривать в кубической двухатомной решетке, следуя работе [4]. Плотность полной энергии системы ионов в электрическом поле в адиабатическом приближении можно разложить по степеням электрического поля:

$$H = T + \Phi(R) - \mu(R)E - \chi^{(1)}(R) \frac{E^2}{2} - \chi^{(2)}(R) \frac{E^3}{3} - \dots \quad (1.38),$$

где  $T$  – кинетическая энергия ядер,  $\Phi(R)$  - потенциальная энергия ядер в поле электронов при фиксированных ядерных координатах,  $\mu$  – дипольный момент. Восприимчивости в этом выражении можно разложить по малым смещениям ядер из положений равновесия  $q=R-R_0$ . Далее используя уравнение движения



$$\ddot{q} = -\frac{\partial H}{\partial q}, \quad (1.39)$$

связь поляризации среды с плотностью энергии

$$P = -\frac{\partial H}{\partial E^*} \quad (1.40)$$

и уравнение Гельмгольца (1.37), можно получить систему из двух связанных уравнений, описывающих нелинейно-оптическое взаимодействие электромагнитного поля с кристаллической решеткой. Если ограничиться линейными членами по электрическому полю  $E$  и смещению  $q$ , то можно получить систему уравнений, описывающих распространение электромагнитной волны в среде с одним дипольно-активным колебанием:

$$\ddot{q} + \Gamma \dot{q} + \omega_0^2 q = \frac{\partial \mu}{\partial q} E \quad (1.41)$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} - \frac{\omega^2 \mathbf{E}}{c^2} = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}$$

где  $P = \chi_e^{(1)} E + q \frac{\partial \mu}{\partial q}$ ,  $\chi_e^{(1)}$  - нерезонансный вклад в восприимчивость от межзонных электронных переходов,  $\Gamma$  - феноменологически введенное затухание колебания. Из системы уравнений (1.41) можно получить известное выражение для частотной дисперсии диэлектрической проницаемости:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{f \cdot \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \quad (1.42)$$

где  $f = \frac{4\pi}{\omega_0^2} \left( \frac{\partial \mu}{\partial q} \right)^2$  - сила осциллятора колебания,  $\varepsilon_\infty = 1 + 4\pi\chi_e^{(1)}$ . В случае, когда в среде есть  $N$  дипольно-активных колебаний, формулу (1.42) можно обобщить следующим образом:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_{i=1}^N \frac{f_i \cdot \omega_{0_i}^2}{\omega_{0_i}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_i} \quad (1.43)$$

Используя формальное разложение поля на продольную и поперечную компоненты по отношению к волновому вектору, из волнового уравнения можно получить дисперсионные уравнения для поперечных (1.44) и продольных (1.45) электромагнитных волн:

$$\frac{k_p^2 c^2}{\omega^2} = \varepsilon(\omega) \quad (1.44)$$

$$\varepsilon(\omega_{LO}) = 0 \quad (1.45)$$

где  $k_p$ -волновой вектор собственной поперечной волны (поляритона). Продольные волны не могут распространяться в среде, поскольку их групповая скорость равна нулю. Из формулы (1.45) в пренебрежении

затуханием следует соотношение Лиддена-Сакса-Теллера, связывающее частоты продольных и поперечных фононов:

$$\frac{\omega_{LO}}{\omega_{TO}} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_\infty}} \quad (1.46)$$

где  $\omega_{TO} \equiv \omega_0$ ,  $\varepsilon_0 = \varepsilon_\infty + f$  - статическая диэлектрическая проницаемость. Из (1.46) следует также, что так называемое продольно-поперечное расщепление ("LO-TO" расщепление) пропорционально силе осциллятора дипольно-активного поперечного колебания:

$$\omega_{LO} - \omega_{TO} \approx \frac{f \cdot \omega_0}{2 \cdot \varepsilon_\infty} \quad (1.47).$$

Дисперсия поляритонов для изотропного кристалла с двумя дипольно-активными колебаниями представлена на рис.9. Наклонная штриховая

линия  $\omega = \frac{kc}{\sqrt{\varepsilon_\infty}}$  описывает дисперсию электромагнитных волн без учета их

взаимодействия с дипольно-активными колебаниями среды. Штриховые горизонтальные прямые  $\omega(k) = \omega_{LO_i}$  представляют собой дисперсионные

зависимости для продольных фононов в области малых волновых векторов.

Из графика видно, что взаимодействие фотонов с полярными фононами приводит к изменениям в их законах дисперсии; при учете взаимодействия закон дисперсии имеет характерный вид "антипересечения" дисперсионных

ветвей. Кривые  $\omega(k)$ , для которых, соответственно, при  $k \rightarrow \infty$

асимптотами являются функции  $\omega = \frac{kc}{\sqrt{\varepsilon_\infty}}$  и  $\omega(k) = \omega_{TO_i}$ , принято называть,

соответственно, верхней и нижними поляритонными ветвями. С точки зрения квантовой теории, поляритоны представляют собой кванты

смешанных колебаний электромагнитного поля (фотонов) и дипольно-активных возбуждений среды (фононов). Одной из первых работ по квантовой теории поляритонов была статья Хопфилда, где и был введен

термин *поляритон*.

Отметим, что объемные поляритоны с частотами  $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$  не могут распространяться в кристалле, поскольку диэлектрическая проницаемость отрицательна, однако в этой области возможно существование мод поля,

локализованных на поверхности среды и называемых поверхностными поляритонами.

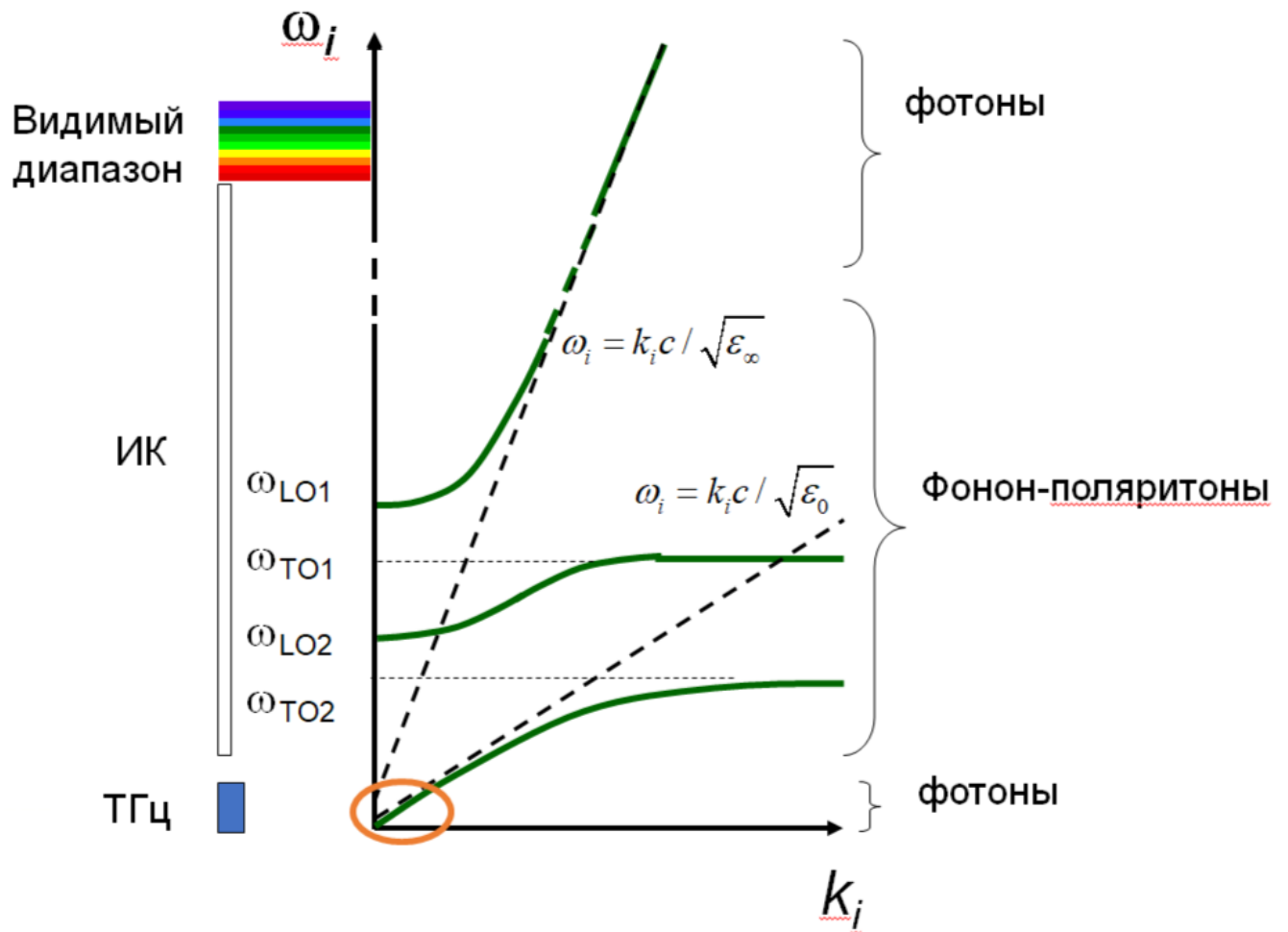


Рис. 9. Дисперсия объемных поляритонов.

В случае распространения электромагнитных волн в анизотропном одноосном кристалле, дисперсия диэлектрической проницаемости описывается формулами, аналогичными выражению (1.47):

$$\frac{k_{\perp}^2 c^2}{\omega^2} = \varepsilon_{\perp}(\omega) \quad (1.48)$$

$$\frac{k_{\parallel}^2 c^2}{\omega^2} = \frac{\varepsilon_{\perp}(\omega) \cdot \varepsilon_{\parallel}(\omega)}{\varepsilon_{\perp}(\omega) \cdot \sin^2 \theta + \varepsilon_{\parallel}(\omega) \cdot \cos^2 \theta} \quad (1.49),$$

где  $\varepsilon_{\perp}(\omega) = \varepsilon_1 = \varepsilon_2$ ,  $\varepsilon_{\parallel} = \varepsilon_3$ , ( $\varepsilon_i$  - главные значения тензора диэлектрической проницаемости),  $\theta$  - угол между волновым вектором поляритона и оптической осью кристалла. Формулы (1.48) и (1.49), соответственно, описывают дисперсию обыкновенного и необыкновенного поляритонов.

## Спектроскопия спонтанного параметрического рассеяния света

Параметрическое рассеяние (ПР) света - процесс неупругого взаимодействия электромагнитного излучения с веществом, в результате которого происходит распад части фотонов падающего излучения («накачки») на пары фотонов с меньшими частотами [5]. При этом в стационарных условиях в точности выполняется закон сохранения энергии:

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i. \quad (1.48)$$

Это условие связывает частоту накачки  $\omega_{pump} \equiv \omega_p$  с суммой частот рождающихся фотонов  $\omega_s$  и  $\omega_i$ . При этом каждая из частот  $\omega_s$  или  $\omega_i$  сама по себе может принимать различные значения в интервале от 0 до частоты накачки. Обычно фотон с большей частотой называют сигнальным ( $\omega_{signal} \equiv \omega_s$ ), а с меньшей – холостым ( $\omega_{idler} \equiv \omega_i$ ), так что  $\omega_s > \omega_p / 2$ , а  $\omega_i < \omega_p / 2$ . При условии  $\omega_s = \omega_i = \omega_p / 2$  имеет место частотное вырождение.

Процесс параметрического рассеяния возможен только в средах с квадратичным по полю нелинейно-оптическим откликом. В идеальном случае неограниченной среды выполняется не только закон сохранения энергии (1.48), но и закон сохранения импульсов фотонов

$$\hbar\vec{k}_p = \hbar\vec{k}_s + \hbar\vec{k}_i \quad (1.49)$$

который следует из обычного условия фазового (пространственного) синхронизма для волновых векторов сигнальных ( $\vec{k}_s$ ), холостых волн ( $\vec{k}_i$ ) и накачки ( $\vec{k}_p$ ), участвующих в процессе трехчастотного нелинейно-оптического взаимодействия. В пространственно-ограниченной среде это условие может выполняться с точностью до небольшой расстройки синхронизма  $\Delta\vec{k} \equiv \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_i$ . В случае, когда поглощения волн в среде нет, расстройка обратно пропорциональна длине области нелинейного взаимодействия  $L$ :  $\Delta k \approx 2\pi / L$ .

Вероятность процессов распада фотонов накачки при параметрическом рассеянии обычно невелика и зависит от величины квадратичной восприимчивости среды, интенсивности накачки, степени выполнения условий пространственного синхронизма. Однако характерной особенностью рассеянного излучения является тот факт, что если распад происходит, то рассеянные фотоны появляются строго парами. Такие состояния поля называют бифотонами. Если эффектами поглощения, рассеяния, отражения родившихся фотонов в среде можно пренебречь, то число сигнальных фотонов на выходе среды будет в точности равно числу холостых.

Теоретическое описание параметрического рассеяния света невозможно в рамках классической нелинейной оптики, без привлечения квантово-оптических представлений. Роль дополнительного к накачке «затравочного» излучения, необходимого для классического описания

трехчастотного процесса, при параметрическом рассеянии играют квантовые флуктуации электромагнитного поля. Этим данный эффект отличается от большинства других нелинейно-оптических трехчастотных волновых процессов. Последовательное квантово-оптическое описание предсказывает не только эффективность процесса, но и необычные корреляционные свойства рассеянного поля. Связанными между собой оказываются не только частоты и волновые вектора, но и статистические флуктуации полей в сигнальном и холостом каналах.

Первым возмущением параметрического рассеяния света предсказал Д.Н. Клышко, используя аппарат теории возмущения. Это описание справедливо в приближении «слабого усиления», когда количество рождающихся сигнальных и холостых фотонов мало и их дальнейшая роль в нелинейно-оптическом процессе распада фотонов накачки не существенна. Такой режим называют режимом спонтанного параметрического рассеяния (СПР). Гамильтониан возмущения, отвечающий за СПР в дипольном приближении, можно представить в виде:

$$\hat{H} = - \int_V d^3r \chi^{(2)} E_p^{(+)}(r,t) \hat{E}_s^{(-)}(r,t) \hat{E}_i^{(-)}(r,t) + \text{э.с.} \quad (1.50)$$

где  $E_p(r,t)$  – классическое поле накачки,  $\hat{E}_s$  и  $\hat{E}_p$  – операторы полей сигнальной и холостой волн,  $\chi^{(2)}$  – эффективная квадратичная восприимчивость среды (рассчитывается как свертка тензора квадратичной восприимчивости с ортами поляризации сигнальных, холостых волн и волны накачки),  $V$  – объем области взаимодействия волн в нелинейной среде. Индексами (+) и (-) обозначены, соответственно, положительно- и отрицательно-частотные части полей. Волновая функция рассеянного поля в первом порядке теории возмущений определяется следующим образом:

$$|\psi\rangle = |0\rangle - \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \hat{H}(t') \right\} |0\rangle \equiv |0\rangle + \sum_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s} F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s) |1\rangle_i |1\rangle_s. \quad (1.51)$$

Здесь учтено, что начальное состояние поля в сигнальных и холостых модах при СПР является вакуумным ( $\sum_{\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i} |N_s, N_i\rangle \equiv |0\rangle$ ). Формально суммирование ведется по всем возможным модам сигнального и холостого каналов. Но  $|1\rangle_i |1\rangle_s$  – двухфотонное энергетическое состояние, появляющееся на выходе среды и характеризующее отдельную бифотонную пару, рождается только в тех каналах, для которых эффективность процесса  $F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)$  отлична от 0. Функцию  $F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)$  часто называют амплитудой бифотона, этот термин широко используется в квантовой оптике. В простейшем приближении, когда нелинейная среда представляется в виде прозрачного слоя с неограниченными поперечными размерами, а накачка является плоской монохроматической волной, амплитуда бифотона зависит от проекции волновой расстройке на нормаль к слою  $\Delta k_x$ :

$$F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s) = -i\beta e^{i\Delta k_x L/2} \text{sinc}(\Delta k_x L/2), \quad (1.52)$$

где  $\beta \equiv \frac{2\pi\omega_s\omega_i}{c^2 \sqrt{k_{sx}k_{ix}}} E_p L \chi^{(2)}$  - коэффициент, определяющий эффективность параметрического взаимодействия при точном пространственном синхронизме. В режиме СПР  $\beta \ll 1$ .

Число фотонов  $N_s$  в моде сигнального поля с частотой  $\omega_s$  и волновым вектором  $\vec{k}_s$  может быть найдено усреднением оператора числа фотонов  $\hat{N}_s = a_s^+ a_s$ :

$$N_s = \langle \psi | a_s^+ a_s | \psi \rangle = \sum_{\mathbf{k}_i', \mathbf{k}_s'} F^*(\mathbf{k}_i', \mathbf{k}_s') \sum_{\mathbf{k}_i'', \mathbf{k}_s''} F(\mathbf{k}_i'', \mathbf{k}_s'') \langle 1 |_{i'} \langle 1 | a_s^+ a_s | 1 \rangle_{i''} | 1 \rangle_{s''} = \sum_{\mathbf{k}_i} |F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2.$$

Аналогичным образом можно рассчитать число холостых фотонов:

$$N_i = \langle \psi | a_i^+ a_i | \psi \rangle = \sum_{\mathbf{k}_s} |F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2,$$

а также величины, характеризующие корреляционные функции сигнальных и холостых полей. Например, корреляционный момент  $\langle \hat{N}_i \hat{N}_s \rangle$  для фотонов отдельных мод сигнального и холостого каналов получается равным квадрату модуля амплитуды бифотона:

$$\langle \hat{N}_i \hat{N}_s \rangle = \langle \psi | a_i^+ a_i a_s^+ a_s | \psi \rangle = |F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2.$$

Условие точного фазового синхронизма однозначно связывает поперечные компоненты волновых векторов в случае, когда объем нелинейного взаимодействия ничем не ограничен в поперечном направлении. При этом одной пространственно-частотной моде сигнального излучения соответствует только одна пространственно-частотная мода холостого излучения и двойное суммирование по модам  $\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s$  в выражении для волновой функции (1.51) можно заменить на простое суммирование по всем однозначно связанным парам мод. Учет ограниченности объема, в котором происходит нелинейный процесс, не только в продольном, но и в поперечном направлении (например, из-за ограниченности сечения накачки), приводит к расширению спектра параметрически связанных пространственных мод. Аналогичным образом, учет нестационарности накачки (например, при работе в импульсном режиме), приводит к формальному нарушению условия (1.48) и необходимости суммирования по различным продольным модам при расчете волновой функции (1.51).

Более общее описание, выходящее за рамки слабого усиления, основано на использовании уравнений для медленно меняющихся операторов Гейзенберга – операторов рождения  $a_s^+(x)$  и уничтожения  $a_s(x)$  фотонов в моде сигнальной частоты и соответствующих операторов в моде холостой частоты  $a_i^+(x)$  и  $a_i(x)$ :

$$\begin{aligned}\frac{da_s(x)}{dx} &= i\gamma a_i^+(x)e^{i\Delta k_x \cdot x}, \\ \frac{da_i^+(x)}{dx} &= -i\gamma^* a_s(x)e^{-i\Delta k_x \cdot x},\end{aligned}\tag{1.53}$$

где  $\gamma \equiv \beta/L$ . Эти уравнения можно получить, например, из широко применяющихся в нелинейной оптике уравнений для медленно меняющихся амплитуд полей. Для этого необходимо произвести замену классических амплитуд на операторы:  $E_{i,s} \rightarrow \hat{E}_{i,s}^{(+)} \rightarrow ic_{k_{i,s}} a_{i,s}$ ,  $E_{i,s}^* \rightarrow \hat{E}_{i,s}^{(-)} \rightarrow -ic_{k_{i,s}}^* a_{i,s}^+$  и учесть выражения для нормировочных коэффициентов  $c_{k_{i,s}}$ . Излучение лазерной накачки как при СПР, так и при параметрическом рассеянии в режиме более высокого усиления, практически не меняется после прохождения среды. Оно рассматривается как классическое поле с постоянной заданной амплитудой ( $E_p$ ). Решая систему уравнений (1.54), получим выражения, связывающие операторы Гейзенберга на входе и выходе из среды для параметрического усилителя

$$\begin{aligned}a_s(L) &= Ua_s(0) + Va_i^+(0), \\ a_i^+(L) &= V^* a_s(0) + U^* a_i^+(0)\end{aligned}\tag{1.55}$$

через коэффициенты усиления и преобразования

$$\begin{aligned}U &= e^{i\Delta k \cdot L/2} \left( ch\Gamma - i \frac{\Delta k \cdot L}{2} \cdot \frac{sh\Gamma}{\Gamma} \right), \\ V &= i\beta e^{i\Delta k \cdot L/2} \frac{sh\Gamma}{\Gamma}.\end{aligned}\tag{1.56}$$

Соотношения типа (1.55) характерны для класса линейных преобразований Боголюбова. Здесь введен параметр  $\Gamma \equiv \sqrt{\beta^2 - (\Delta k_x L/2)^2}$ , который определяет степень усиления волн в среде с учетом возможной волновой расстройки  $\Delta k_x$ . При точном пространственном синхронизме (т.е. когда  $\Delta k_x = 0$ )  $\Gamma = \beta$ , при этом  $U = ch\Gamma$ ,  $V = ish\Gamma$ . В случае СПР  $\beta \ll 1$ . При этом

из (1.56) следует, что  $U \approx 1 + |\beta|^2 \frac{1 + i\Delta k_x L - e^{i\Delta k_x L}}{(\Delta k_x L)^2}$ , а коэффициент

преобразования равен  $V \approx i\beta e^{i\Delta k \cdot L/2} \text{sinc}(\Delta k L/2)$  и с точностью до знака совпадает с выражением (1.52) для амплитуды бифотона  $F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)$ , полученным методом теории возмущения.

Рассчитывать интенсивности рассеянных волн и их корреляционные свойства в общем случае ПР можно на основании соотношений (1.55) для гейзенберговских операторов, действуя ими на начальное состояние поля, которое при параметрическом рассеянии является вакуумным

$(|0\rangle = \sum_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s} |0\rangle_i |0\rangle_s)$ . Например, среднее число сигнальных фотонов при преобразовании, в котором число мод ограничивается 1 модой сигнального и 1 модой холостого канала, рассчитывается как

$$N_s = \langle 0 | a_s^+(L) a_s(L) | 0 \rangle = \langle 0 | \left[ U^* a_s^+(0) + V^* a_i(0) \right] \left[ U a_s(0) + V a_i^+(0) \right] | 0 \rangle = |V|^2.$$

Помимо квантовых флуктуаций также возможны классические тепловые (планковские) флуктуации поля на достаточно низких холостых частотах. В ряде задач необходимо также учитывать фотоны от возможных внешних источников излучения холостых частот. В этих случаях справедливо более общее выражение для числа фотонов в моде сигнального излучения на выходе из рассеивающей среды:

$$N_s = |V|^2 \left[ 1 + N_i^0 + N_T(\omega_i, T) \right]. \quad (1.57)$$

Здесь  $N_i^0$  - среднее число фотонов в моде излучения холостой частоты  $\omega_i$ , падающего на среду вместе с накачкой,  $N_T(\omega, T)$  - число фотонов в моде равновесного планковского излучения, которым описываются тепловые шумы:

$$N_T(\omega, T) = \frac{1}{e^{\hbar\omega/kT} - 1}. \quad (1.58)$$

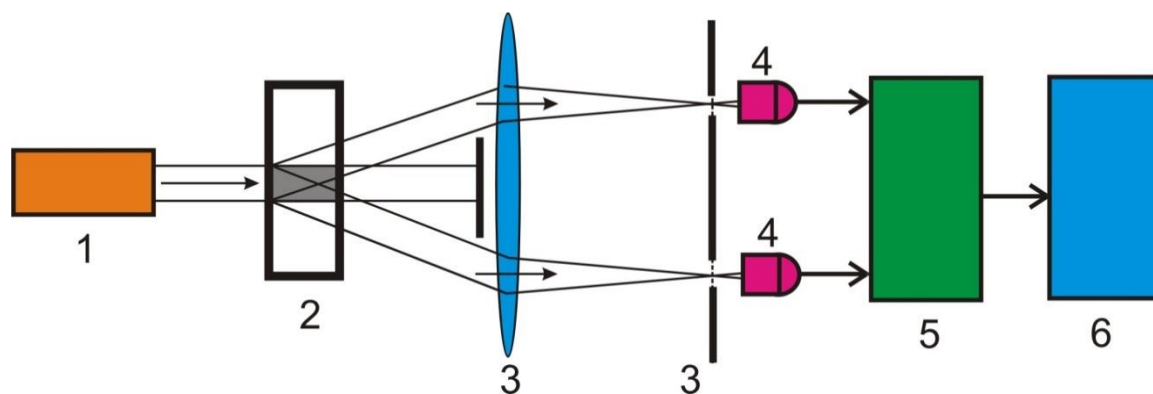
Таким образом, даже при отсутствии "затравочного" излучения от внешних источников на входе в рассеивающую среду ( $N_i^0 = 0$  в (1.10)) на выходе появится рассеянное сигнальное излучение. Его появление на частоте  $\omega_s$  можно трактовать как результат воздействия суммарного шумового поля частоты  $\omega_i$ , имеющего тепловую и квантовой природу. Как видно из (1.57), эффективное число фотонов в холостой моде, создаваемое за счет квантовых флуктуаций, равно 1. Эта величина не зависит от температуры и частоты. Таким образом, эффективная яркость квантовых флуктуаций (нулевых флуктуаций электромагнитного вакуума) в процессе ПР, измеренная в квантовых единицах (числе фотонов на моду), является величиной постоянной и абсолютной.

Отметим, что эффективная яркость квантовых флуктуаций значительно превосходит яркость обычных тепловых источников излучения. Так, на частоте  $10000 \text{ см}^{-1}$  (длина волны 1 мкм) тепловой источник - абсолютно черное тело - имеет яркость в 1 фотон на моду поля при температуре 10000К, а на длине волны 0.5 мкм (середины видимого диапазона) для обеспечения такой яркости его температура должна быть 40000К. Сравниваются яркости квантовых и тепловых флуктуаций при комнатной температуре только на длинах волн в районе 100 мкм, т.е. в далёкой инфракрасной области.



Когда среда прозрачна на всех трех частотах ( $\omega_p$ ,  $\omega_s$  и  $\omega_i$ ), собственное шумовое излучение среды не оказывает влияния на интенсивность рассеянного излучения. Кроме того, можно пренебречь и влиянием тепловых флуктуаций окружающего пространства, так как частота  $\omega_i$ , как правило, при ПР лежит в оптическом диапазоне частот от  $\omega_p/2$  до  $2000 \text{ см}^{-1}$  (т.е. до длин волн порядка 5 мкм). При значительном уменьшении частоты, когда значения  $\omega_i/2\pi$  попадают в терагерцовый диапазон и ниже, тепловые флуктуационные поля учитываются с помощью предложенного Д.Н. Клышко обобщенного закона Кирхгофа.

Отметим, что на основе эффекта СПР была создана новая квантовая технология безэталонной калибровки фотодетекторов. Эта технология дает возможность измерения квантовой эффективности фотодетектора без сравнения его с эталонным фотодетектором и без использования эталонного источника света с известной спектральной яркостью. Принципиальная схема установки для реализации метода безэталонной калибровки приведена на Рис. 10.



**Рис. 10.** Безэталонная калибровка фотодетекторов. Лазер (1), нелинейный кристалл (2), оптические элементы (3), калибруемые фотодетекторы (4), коррелятор и счетчики сигналов (5), компьютер (6).

Пусть  $\eta_1$  - неизвестная квантовая эффективность детектора, помещенного в первом канале. Тогда, измеряя в эксперименте число фотоотсчетов  $m_2$  во втором канале и число совпадений в двух каналах одновременно  $m_c$ , мы легко можем определить неизвестную квантовую эффективность как  $\eta_1 = m_c / m_2$ .

В реальных экспериментах приходится иметь дело не с одной модой поля, а с набором мод, занимающих определенный спектральный и пространственный интервалы. Переход от числа фотонов в моде к мощности излучения частоты  $\omega_s$ , рассеянного в направлении  $\vec{k}_s / |\vec{k}_s|$ , приходящейся на бесконечно малые спектральный  $d\omega_s$  и угловой  $d\theta_s$  интервалы, приводит к следующему выражению для дифференциальной мощности сигнального излучения:

$$P_{\omega\Omega} = \frac{2\hbar\omega_s^4\omega_i |\chi_{eff}^{(2)}|^2 P_p L^2}{c^5 n_i n_s \cos\theta_i} g(\Delta k_x \cdot L, y_i), \quad (1.59)$$

где  $P_p$  – мощность накачки. Форм-фактор  $g(x,y)$  описывает пространственно-частотное распределение интенсивности сигнального излучения. В случае, когда поглощением волн можно пренебречь, форм-фактор  $g(x,y) = g(x,0)$  ( $x \equiv \Delta k_x \cdot L$ ) принимает вид, характерный для параметрических процессов:

$$g(x,0) = \left( \frac{\sin(x/2)}{x/2} \right)^2. \quad (1.60)$$

### Рассеяние света на поляритонах.

В случае, когда среда поглощает излучение на частоте холостой волны (частично или полностью), процедуры квантования полей и определения квантово-механических средних значительно усложняются. Расчет формы линии в этом случае можно проводить с использованием флуктуационно-диссипационной теоремы (ФДТ) [5].

$$P_{\omega\Omega} = \frac{cn}{2\pi} \left\langle \hat{E}^+(\omega_s, R) \hat{E}(\omega_s', R) \right\rangle \quad (1.61)$$

Сигнальное поле в дальней зоне в дипольном приближении:

$$\hat{E}(\omega_s, R) = \frac{\omega^2}{c^2 R} e^{ik_s R} \int_V dr e^{-ik_s r} \hat{P}(\omega_s, R) \quad (1.62)$$

Подставляя это выражение и делая Фурье-преобразование, получаем:

$$P_{\omega\Omega} = \frac{cn}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_s' \left\langle \hat{P}_{k_s}^+ \hat{P}_{k_s'} \right\rangle \left| \int_V dr e^{i(k_s - k_s')r} \right|^2 = \frac{cn}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_s' \left\langle \hat{P}_{k_s}^+ \hat{P}_{k_s'} \right\rangle \delta(k_s - k_s') = \frac{cn}{2\pi} \left\langle \hat{P}_{k_s}^+ \hat{P}_{k_s} \right\rangle \quad (1.63)$$

Запишем оператор поляризации на сигнальной частоте в виде:

$$\hat{P}_{k_s} = \chi^{(2)}(\omega_s = \omega_p - \omega_i) E_p(\omega_p) \hat{E}_i^+(\omega_i) \quad (1.64)$$

Тогда дифференциальная мощность сигнального излучения будет равна:

$$P_{\omega\Omega} = \frac{cn}{2\pi} |\chi^{(2)}(\omega_s)|^2 E_p^2 \langle \hat{E}_i(\omega_i) \hat{E}_i^+(\omega_i) \rangle \quad (1.65)$$

Таким образом, задача нахождения мощности сигнального излучения сводится к расчету коррелятора для холостого поля  $\langle \hat{E}_i(\omega_i) \hat{E}_i^+(\omega_i) \rangle$ . Его можно найти из ФДТ:

$$\langle \hat{E}_i^+(\omega_i) \hat{E}_i(\omega_i) \rangle \propto N_T(\omega_i, T) |G''(\omega_i, k_i)|^2, \quad (1.66)$$

Где  $G''(\omega_i, k_i)$  - мнимая часть функции Грина уравнений Максвелла. С учетом коммутационных соотношений для операторов напряженности поля  $\hat{E}_i(\omega_i)$  и  $\hat{E}_i^+(\omega_i)$ , пропорциональных операторам рождения и уничтожения, соответственно, получаем:

$$\langle \hat{E}_i(\omega_i) \hat{E}_i^+(\omega_i) \rangle \propto (N_T(\omega_i, T) + 1) |G''(\omega_i, k_i)|^2. \quad (1.67)$$

Функцию Грина можно найти, решая волновое уравнение с источником в дельта-функцией в правой части вместо поляризации среды:

$$\Delta G - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 G}{\partial t^2} = -4\pi\delta(t-t'). \quad (1.68)$$

Используя эту функцию, легко найти связь между Фурье-амплитудой поляризации среды и индуцируемой ей Фурье-амплитудой электрического поля:  $E(k, \omega_p) = G(k, \omega_p) P(k, \omega_p)$ . Поляритонная функция Грина равна:

$$G(k, \omega_i) = \frac{\omega_i^2}{c^2} \cdot \frac{4\pi}{k^2 - K_{pol}^2(\omega_i)} \quad (1.69)$$

Где  $K_{pol}(\omega_i) = n_{pol}\omega_i + \frac{i\alpha_{pol}}{2}$ ,  $n_{pol} \approx \sqrt{\text{Re}(\varepsilon(\omega_i))}$  - показатель преломления и  $\alpha_p$  коэффициент поглощения на поляритонной частоте  $\omega_i$ . Таким образом, можно получить следующее выражение для дифференциальной мощности сигнального излучения:

$$P_{\omega\Omega} = |\chi^{(2)}(\omega_s)|^2 I_p (N+1) |G''(\omega_i, k_i)|^2 \quad (1.70)$$

Мнимая часть функции Грина согласно (1.69) равна:

$$G''(\omega_i, k_i) = \frac{\alpha(\omega_i)/2}{(k_i - k'_{pol})^2 + (\alpha(\omega_i)/2)^2}. \quad (1.71)$$

Тогда дифференциальная мощность в зависимости от расстройки синхронизма будет равна:

$$P_{\omega\Omega} = \frac{|\chi^{(2)}(\omega_s)|^2 (N+1) I_p}{\Delta k^2 + (\alpha(\omega_i)/2)^2} \quad (1.72)$$

Где  $\Delta k \equiv k_p - k_s - k'_{pol}$  и  $\alpha(\omega_i) = \frac{\omega \varepsilon''(\omega_i)}{c \sqrt{\varepsilon'(\omega_i)}}$ . Как правило, в эксперименте

регистрируются угловые распределения дифференциальной мощности  $P_{\omega\Omega}(\theta_s)$ , измеренные на различных фиксированных частотах сигнала  $\omega_s$ . Как видно из (1.72), поглощение на холостой частоте приводит к лоренцевой форме линии таких распределений - в отличие от формы, описываемой функцией  $\text{sinc}^2$  в прозрачном кристалле.

В соответствии с (1.72), частотно-угловое распределение интенсивности рассеяния зависит от таких параметров рассеивающей среды, как показатели преломления ( $n$ ), поглощения ( $\alpha$ ), квадратичная восприимчивость ( $\chi_{eff}^{(2)}$ ). Следовательно, исследуя частотно-угловой (частотно-пространственный) спектр СПР, можно определять все перечисленные параметры среды. При переходе от спонтанного параметрического рассеяния к рассеянию света на поляритонах на вид спектра СПР начинают оказывать влияние оптические фононы – через характерное изменение дисперсии мнимой и действительной частей диэлектрической проницаемости. Появляется возможность определять такие важные их параметры как резонансные частоты, константы затухания, резонансный вклад колебаний в линейную (силу осциллятора и дипольный момент), квадратичную и кубичную (рамановскую) восприимчивости.

**Метод спектроскопии СПР** основан на измерении частотно-угловых зависимостей интенсивности сигнальных волн. Спектральная и угловая плотность мощности ( $P_{\omega_s\Omega_s}$ ) сигнального излучения, распространяющегося под углом  $\theta_s$ , непосредственно связана с числом сигнальных фотонов в моде  $N_s$ :  $P_{\omega_s\Omega_s} \sim \omega_s^3 \cos \theta_s N_s$ . В направлениях точного пространственного синхронизма амплитуда бифотона с заданными частотами  $\omega_s$ ,  $\omega_i = \omega_p - \omega_s$  и, соответственно, плотность мощности сигнального излучения максимальны. Линию, связывающую точки максимальной интенсивности сигнала разных частот на плоскости координат  $\omega_s, \theta_s$  называют перестроечной кривой параметрического преобразователя частоты. Необходимость выполнения точных условий временного и пространственного синхронизма для наблюдения максимальной интенсивности сигнала приводит к однозначной связи частотно-углового хода перестроечной кривой со значениями показателя преломления на сигнальных и холостых частотах. Как правило, дисперсионные характеристики кристалла в видимом диапазоне спектра сигнальных волн хорошо известны из других измерений. С учетом этих данных спектроскопия СПР позволяет по ходу перестроечной кривой определить дисперсию показателя преломления для холостых волн. Частоты этих волн могут попадать в области ИК и даже терагерцовых частот, где прямые измерения дисперсионных характеристик достаточно сложны. Анализ

угловой формы линии на фиксированной частоте позволяет также определить коэффициент поглощения холостых волн. Таким образом, метод спектроскопии СПР позволяет восстановить дисперсию как мнимой, так и действительной части диэлектрической проницаемости нелинейной среды без применения соотношений Крамерса-Кронига.

Параметрическое рассеяние света можно трактовать процесс рассеяния света на свете, точнее, рассеяния на квантовых флуктуациях электромагнитного поля. При этом частоты всех трех волн, участвующих в процессе -  $\omega_i$ ,  $\omega_s$ ,  $\omega_p$  - находятся в полосе прозрачности среды. Роль среды состоит в перемешивании (благодаря нелинейной восприимчивости) разночастотных мод электромагнитного поля. Однако при приближении холостой частоты к частотам фононных возбуждений кристалла параметрическое рассеяние приобретает характер рассеяния света на фононных поляритонах. Рассеяние света на поляритонах (РСП) - это процесс рассеяния на собственных состояниях среды - квазичастицах, имеющих смешанную электромеханическую природу.

В принципе, фотон, вошедший в среду, уже перестаёт быть истинно фотоном. Распространяясь в среде, он "тянет" за собой волну поляризации. В результате взаимодействия с дипольно-активными возбуждениями среды скорость фотона уменьшается. Замедление это тем больше, чем сильнее фотон связан со средой, т.е. чем ближе частота холостого излучения к частотам резонансных возбуждений вещества. Величина связи фотона со средой в большой степени определяется соотношением между энергией фотона и соответствующих резонансных возбуждений среды (как электронных, так и колебательных состояний кристаллической решетки). Если частоты накачки, сигнальной и холостой волн попадают в полосу прозрачности, связь их со средой предельно мала. Энергия возбуждений, распространяющихся в среде, носит преимущественно электромагнитный характер и имеет место обычное параметрическое рассеяние света. Однако чем ближе частота сигнального излучения подходит к частоте накачки, а уменьшающаяся при этом частота холостого фотона приближается к частотам колебательных возбуждений кристалла, тем сильнее становятся поляритонные эффекты. Вместо почти свободного холостого фотона образуется новое элементарное возбуждение - поляритон, энергия которого имеет как электромагнитную, так и механическую составляющие. Чем ближе частота поляритона к частоте оптического фонона, тем большую часть его энергии составляет вклад механических колебаний и тем меньше становится скорость распространения (групповая скорость), уменьшающаяся до нуля при точном совпадении частоты поляритона с резонансной частотой оптического фонона.

Формально, интенсивность сигнальных волн при рассеянии света на поляритонах (РП) описывается суммой вкладов от параметрического и комбинационного рассеяния света, которые могут также интерферировать между собой. Однако присутствие комбинационного вклада существенно

лишь в непосредственной близости холостых частот к частотам фононов, когда разница частот не превышает нескольких десятков  $\text{см}^{-1}$ . В остальных, существенно более широких спектральных областях дисперсию поляритонов можно определять пользуясь обычными соотношениями для формы линии СПР. При этом в случае РСП берутся соотношения, учитывающие эффекты поглощения холостых волн.

При изучении спектров СПР обычно реализуется ситуация, когда частоты  $\omega_p$  и  $\omega_s$  попадают в полосу прозрачности исследуемого кристалла в середине оптического диапазона. В этой части спектра показатели преломления  $n_p$  и  $n_s$  могут быть измерены с высокой точностью традиционными методами, и, как правило, заранее известны из литературы. Отсюда следует возможность определения по спектру СПР величины  $n_i$  на частоте холостой волны  $\omega_i$ , которая может попасть в инфракрасную, и даже в терагерцовую области спектра. В том числе и в частотную область, занимаемую оптическими фононами и характеризуемую большим поглощением. Наличие поглощения затрудняет, а часто делает невозможным прямое измерение показателя преломления методами линейной оптики. Не говоря уже о том, что детектирование излучения в ИК диапазоне, в пределах 10-33 мкм, и далее в терагерцовом диапазоне (33 мкм - 1 мм) представляет собой крайне сложную процедуру.

Измерение  $n_i$  по спектрам СПР основано на следующем их свойстве. Максимум интенсивности рассеяния на частоте  $\omega_s$  (частоте сигнальной волны, однозначно связанной условием (1.49) с частотой  $\omega_i$ , на которой проводится измерение показателя преломления) имеет место при равенстве нулю волновой расстройки  $\Delta\vec{k}$ . Отсюда, с учетом (1.49) и теоремы косинусов, следует:

$$n_i = \frac{c}{\omega_i} |\vec{k}_i| = \frac{1}{\omega_i} \sqrt{(n_p \omega_p)^2 + (n_s \omega_s)^2 - 2n_s n_p \omega_s \omega_p \cos \theta_{s0}} \quad (1.73)$$

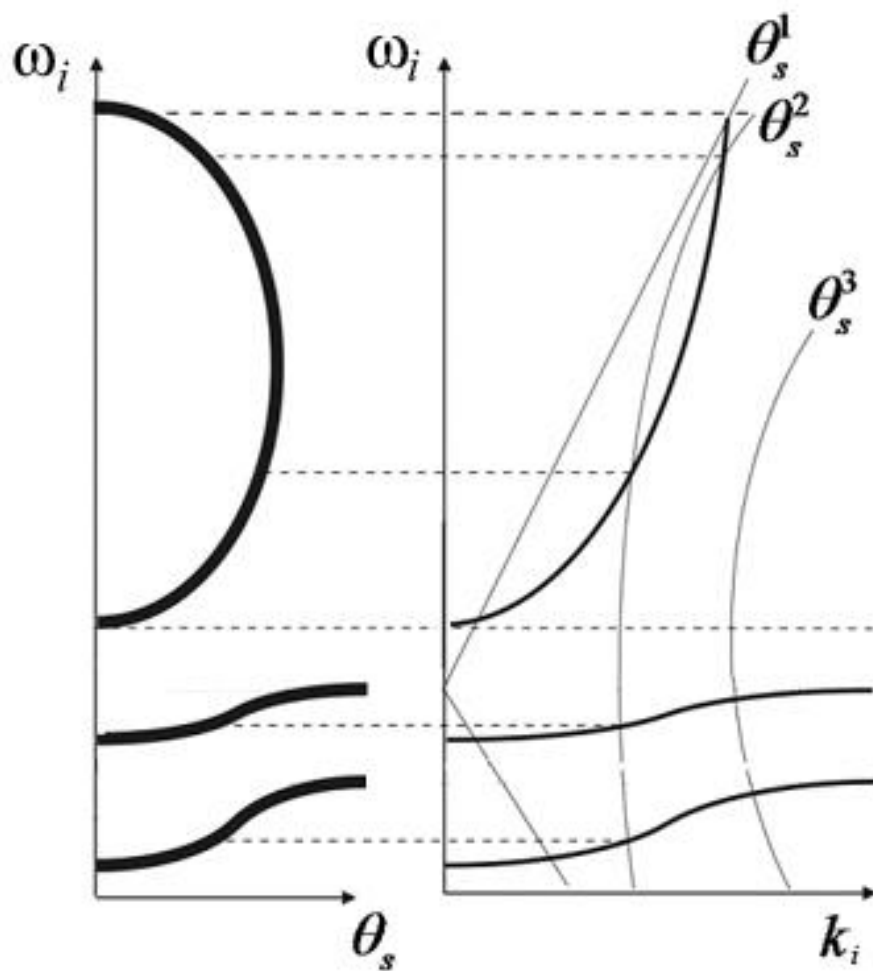
( $\theta_{s0}$  - угол между  $\vec{k}_s$  и  $\vec{k}_i$  внутри кристалла, определяемый по максимуму углового распределения интенсивности СПР на частоте  $\omega_s$ ). Зная показатели преломления  $n_s(\omega_s)$  на всех частотах перестроенной кривой  $\theta_{s0}(\omega_s)$  и пользуясь соотношением (1.73), легко определить дисперсию  $n_i(\omega_i)$ . Измеренный таким образом показатель преломления будет связан с диэлектрической проницаемостью кристалла  $\varepsilon(\omega_i)$  соотношением  $n_i(\omega_i) = \sqrt{\varepsilon'(\omega_i)}$ .  $\varepsilon'(\omega_i)$  - действительная часть диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(\omega_i) = \varepsilon'(\omega_i) + i\varepsilon''(\omega_i)$ , которая в непосредственной близости от частоты фононного резонанса может иметь также существенную мнимую часть  $\varepsilon''(\omega_i)$ .

Определив  $n_i(\omega_i)$  можно также построить так называемую  $\omega - \vec{k}$  диаграмму для поляритонов без затухания. В качестве примера на Рис.11 приведена поляритонная  $\omega - \vec{k}$  диаграмма кристалла с двумя оптическими фононами (имеющими резонансные частоты  $\omega_{01}$  и  $\omega_{02}$ ). Кривые диаграммы («поляритонные ветви») описываются соотношениями

$$\omega_i(k_i) = \frac{ck_i}{\sqrt{\bar{\varepsilon}(\omega_i)}},$$

$$\bar{\varepsilon}(\omega_i) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{S_j}{\omega_{0j}^2 - \omega_i^2}. \quad (1.74)$$

Верхняя поляритонная ветвь по мере увеличения волнового вектора переходит в частотный диапазон оптической прозрачности кристалла. Более низкочастотные ветви стремятся с ростом  $k_i$  к частотам соответствующих оптических фононов. Нижняя поляритонная ветвь расположена ниже частот всех оптических фононов. По мере удаления от области высокого фононного поглощения - как в более высокочастотный диапазон по верхней поляритонной ветви, так и в более низкочастотный (терагерцовый) диапазон по нижней поляритонной ветви - поглощение кристалла падает. На графиках нанесены зависимости  $\omega_i(k_i)$  (Рис.11б) и  $\omega_i(\theta_{s0})$  (Рис.11а), полученные из условий (1.74) и (1.73). На рис. Рис.11б дополнительно нанесены кривые пространственного синхронизма, рассчитанные согласно (1.73) для различных фиксированных значений угла рассеяния  $\theta_{s0} = \theta_s^j$ . В процессе рассеяния в направлении  $\theta_s^j$  участвуют только те холостые волны, частота и волновой вектор которых удовлетворяют одновременно дисперсионной характеристике среды (1.16) и условию синхронизма (1.73) (точки пересечения кривых). В итоге набор возможных перестроечных кривых на спектре СПР в координатах  $\omega_i - \theta_s$  будет иметь вид, представленный на Рис.11а. Таким образом, перестроечные кривые спектра СПР представляют собой прямое отображение дисперсионной кривой рассеивающей среды на плоскость координат  $\omega_i - \theta_s$ . Рассеяние на верхней поляритонной ветви занимает широкий спектральный диапазон и часто формирует замкнутую (с учетом углов рассеяния  $\theta_s$  противоположного знака) перестроечную кривую, напоминающую по форме эллипс. Рассеяние на внутренних поляритонных ветвях формирует изогнутые кривые, расположенные в существенно более узких областях между частотами оптических фононов.



**Рис. 11.** Схема образования перестроечных кривых спектра параметрического рассеяния света при совместном решении уравнений (1.74), описывающих закон дисперсии среды, и уравнения (1.73), описывающего пространственный синхронизм волн при СПР.

Как уже говорилось выше, при исследовании параметрического рассеяния частоты накачки и сигнальной волны находятся в диапазоне прозрачности среды. Частота холостой волны  $\omega_i$  может при этом быть как в полосе прозрачности, так и в области сильного решеточного поглощения. Проанализируем, как поглощение среды на частоте  $\omega_i$  сказывается на спектрах частотно-углового распределения интенсивности СПР.

Коэффициент поглощения  $\alpha_i$  входит в выражение для дифференциальной мощности сигнального излучения (1.72). Таким образом, поглощение меняет ширину линии углового распределения интенсивности, измеренного при фиксированной частоте сигнального излучения. Форма линии углового распределения в случае, когда поглощение мало, так что  $y \approx 0$ , описывается функцией  $\text{sinc}^2(x/2)$ . Расстояние между максимумами функции, а также ширина главного максимума связаны в при этом только с толщиной кристалла-рассеивателя. По мере увеличения поглощения и роста  $\alpha_i$  контраст функции падает и при  $\alpha L > 1$  форм-фактор приобретает вид лоренцевой



кривой. Измерение угловой полуширины  $\Delta\theta_s$  функции  $P_{\omega\Omega}$  в этом случае позволяет определить величину  $\alpha_i$ :

$$\alpha_i = \frac{2k_p \sin \theta_{i0}}{\pi} \Delta\theta_s \quad (1.75)$$

В выражение для дифференциальной мощности сигнального излучения СПР (1.59) входят линейные оптические параметры среды, частоты, интенсивность накачки и квадратичная восприимчивость среды. В частности, интенсивность сигнального излучения зависит от геометрии рассеяния (ориентации кристалла, направлений поляризации и распространения волн) через величину свертки ненулевых компонент тензора третьего ранга  $\hat{\chi}^{(2)}$  с ортами поляризации накачки, сигнальной и холостой волн. Определить величину действующей компоненты  $\chi_{ijk}^{(2)}$  (или свертки нескольких действующих компонент) можно по измерению дифференциальной мощности вдоль перестроечной кривой. Проведение измерений на разных частотах позволяет определить дисперсию  $\chi_{ijk}^{(2)}$ . Определение абсолютной величины квадратичной восприимчивости требует предварительной калибровки детектирующей части установки.

Как следует из материала предыдущей части, информация о рассеивающей среде содержится в характеристиках распределении интенсивности сигнального излучения в координатах  $\omega_i - \theta_s$ , и, в первую очередь – в ходе перестроечных кривых СПР. Вследствие сложной картины распределения интенсивности рассеяния в пространстве решение задачи разработки экспериментального метода регистрации перестроечной кривой вызывает ряд серьезных трудностей.

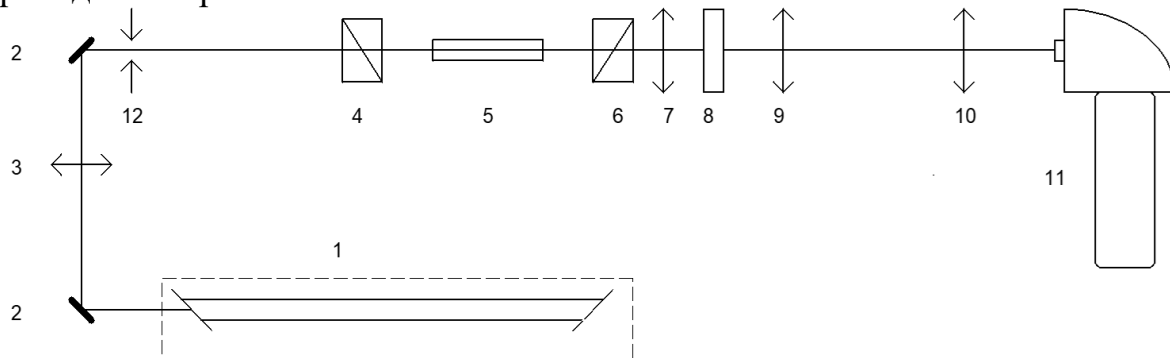
Наиболее простой метод регистрации спектров СПР заключается в том, что в пространстве после кристалла размещается входное отверстие фотоприемника с малой апертурой. Для выделения необходимой частоты на входе приемника располагается, например, интерференционный светофильтр. Однако при этом методе регистрации теряется большой объем информации, особенно в области рассеяния на поляритонах. Поэтому в настоящее время используется другой метод - метод скрещенной частотно-угловой дисперсии.

Осуществляется он следующим образом. После рассеивающего кристалла располагается линза (Рис.12). Таким образом, что ее передний фокус приблизительно находится внутри рассеивающего объема, а оптическая ось совпадает с направлением вектора  $\vec{k}_p$ . Тогда, в случае пространственно-изотропной геометрии рассеяния, в правой фокальной плоскости линзы образуется набор цветных колец (в общем случае они могут иметь более сложный вид замкнутых кривых с меняющейся по ходу интенсивностью). Кольцо каждого цвета имеет диаметр, который соответствует определенному углу рассеяния сигнальной волны данной

длины волны (частоты) в кристалле. Вследствие непрерывного характера спектра СПР кольца переходят друг в друга по диаметру, сливаются и образуют сплошной фон со смешанным цветом. В фокальную плоскость линзы помещается входная щель спектрографа так, чтобы луч накачки проходил через ее центр; при этом щель определяет ориентацию плоскости треугольника волновых векторов, которому соответствует сигнальное излучение, выбранное для последующей регистрации.

Спектрограф строит изображение входной щели в фокальной плоскости камеры, где расположены либо фотопленка, либо фотоприемник. Пространственное положение изображения щели спектрографа (это направление перпендикулярно щели) определяется длиной волны регистрируемого сигнального излучения, которая однозначно, через условие (1.48), связана с частотой холостых волн  $\omega_i$ . Таким образом в выходной плоскости спектрографа сигнальное излучение фокусируется в семейство точек, сливающееся в непрерывную кривую линию с координатами  $\omega_i - r_s$ , где  $r_s$  - отклонение точки кривой на частоте  $\omega_s = \omega_p - \omega_i$  от оси, задаваемой направлением вектора  $\vec{k}_p$  (радиус «кольца», соответствующего холостой частоте  $\omega_i$  и, соответственно, сигнальной частоте  $\omega_s = \omega_p - \omega_i$ ). Величина  $r_s$  однозначно связана с углом  $\theta_s$  через фокусное расстояние линзы  $r_s = f \times \text{tg} \theta_s$  ( $r_s = f \times \theta_s$  при малых  $\theta_s$ ). Частотно-угловой спектр ПР имеет форму несколько размытой линии, ширина которой зависит от длины кристалла и коэффициента поглощения (через форм-фактор  $g$  в (1.59)). В пределах углового сечения линии на каждой частоте можно определить точки максимальной интенсивности. Они соответствуют условию точного пространственного синхронизма и, как правило, находятся в центре линии. При переходе от одной частоты к другой эти точки выстраиваются в перестроечную кривую СПР.

Для согласования углов рассеяния  $\theta_s$  с углами зрения спектрального прибора (спектрографа), как правило, бывает необходимо использовать не одну линзу, а систему из трех линз. Блок-схема спектрографа СПР приведена на рис.12.



**Рис. 12.** Экспериментальная установка для наблюдения и регистрации спектров СПР и РП. 1 - лазер, 2 - поворотные зеркала, 3 - длиннофокусная линза, 4 - поляризатор, 5 - исследуемый кристалл, 6 - анализатор, 7, 9, 10 - оптическая система линз, 8 - светофильтр, 11 - спектрограф, 12 - диафрагма.

Спектрограф СПР включает в себя источник излучения накачки /1/, элементы системы формирования излучения накачки /2-4,12/, элементы формирования сигнального излучения /6-10/, спектральный прибор и приемную систему /11/. В качестве источника излучения накачки в обычно используются газовые лазеры (аргоновый, гелий-кадмиевый) непрерывного действия или полупроводниковые диодные лазеры. Система формирования излучения накачки включает в себя набор поворотных зеркал, диафрагму, длиннофокусную линзу, поляризатор. Основная задача системы - сформировать на исследуемом образце /5/ пучок поляризованного излучения накачки нужного диаметра и расходимости, излучение должно быть отфильтровано от волн с другими частотами и направлениями. Система формирования сигнального излучения имеет своей задачей выделение сигнального излучения нужной поляризации, а также отделение слабого сигнального излучения от интенсивного фона, образующегося в результате упругого рассеяния излучения накачки на элементах оптической схемы. На представленной схеме реализован вариант трехлинзовой оптической системы регистрации СПР. Конфокальное расположение первой и второй линз обеспечивает эквивалентность данной и однолинзовой систем (для приосевых пучков излучения). Частотную селекцию рассеянного излучения обеспечивает спектральный прибор (спектрограф /11/). Приемная система необходима для регистрации спектров и выдачи информации в цифровой или аналоговой форме. При исследовании формы перестроечной кривой наиболее информативной является широкополосная приемная система с параллельным сбором информации, функционирующая на основе высокочувствительной фотографической пленки. При измерении формы линии перестроечной кривой и интенсивности рассеяния более предпочтительной оказывается узкополосная фотоэлектрическая система приема. Фотоэлектрическая система, как правило, включает в себя световод и фотоэлектронный умножитель (ФЭУ), схему электрической обработки, системы сканирования полосы пропускания спектрографа СПР по углу и частоте и двухкоординатный регистрирующий прибор. Наиболее оптимальной и современной является фотоэлектрическая схема с параллельным накоплением информации - так называемые многоканальные оптические анализаторы на базе фотодиодных линеек или ССD-матриц. Однако реализовать с помощью этих элементов параллельный прием в таком же широком спектральном диапазоне и с таким же уровнем спектрального разрешения, как при использовании фотопленки, достаточно сложно.

Пример экспериментального спектра рассеяния света на поляритонах, а также и параметрического рассеяния, в кристалле  $\text{LiIO}_3$  приведен на Рис. 13.

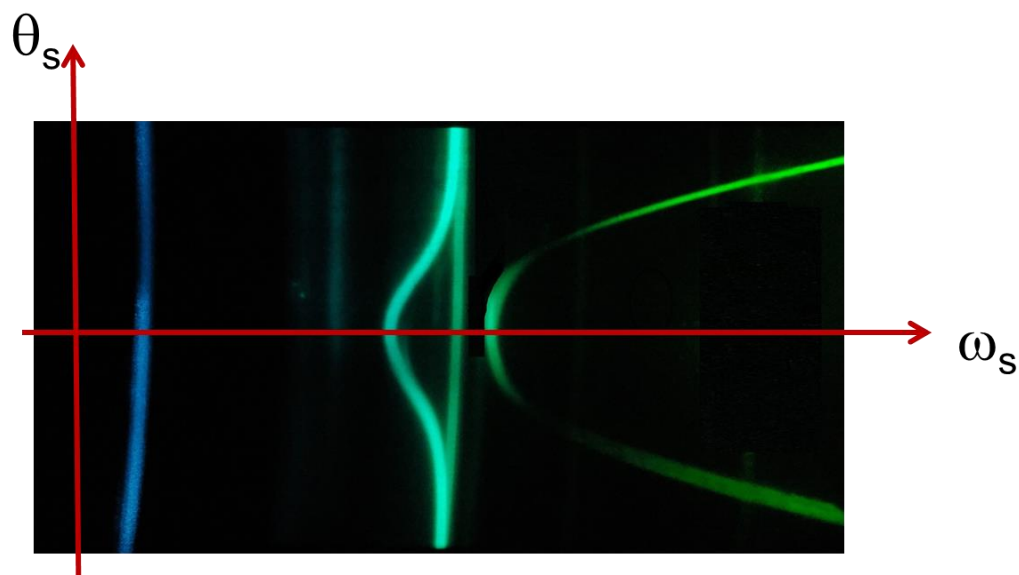


Рис. 13. Экспериментальный спектр СПР и РП в кристалле йодата лития.

**Принципы анализа дисперсионных зависимостей диэлектрической проницаемости.** Основываясь на осцилляторной модели, в области прозрачности дисперсию  $n^2(\lambda)$  (как для  $o$ -поляризованной, так и для  $e$ -поляризованной волны, в дальнейшем, для краткости, соответствующие индексы поляризации на всех коэффициентах мы опускаем) можно представить в следующем виде:

$$\varepsilon(\lambda) = n^2(\lambda) = A_{UV} + \sum_{i_{el}} \frac{A_{i_{el}}}{\lambda_{i_{el}}^{-2} - \lambda^{-2}} + \sum_{i_{ph}} \frac{A_{i_{ph}}}{\lambda_{i_{ph}}^{-2} - \lambda^{-2}} \quad (1.76)$$

где слагаемое  $A_{UV}$  описывает вклад плазмонов далекого УФ диапазона, суммирование во втором слагаемом производится по всем осцилляторам  $i_{el}$ , описывающими вклад от электронных возбуждений, суммирование в третьем слагаемом производится по всем дипольно-активным фоновым модам  $i_{ph}$ . Значения коэффициентов  $A_{i_{ph}}$ ,  $\lambda_{i_{ph}}$  определяются силами осцилляторов и резонансными частотами фононов, значения  $A_{i_{el}}$ ,  $\lambda_{i_{el}}$  - параметрами соответствующих электронных резонансов. Как электронные, так и фоновые резонансы могут быть отнесены к определенным ионам кристаллической решетки: ионам идеальной структуры, дефектам структуры номинально чистого кристалла или ионам легирующих примесей. В простейшем приближении, собственные частоты от концентрации не зависят, тогда как все силы осцилляторов пропорциональны концентрациям соответствующих ионов, следовательно:  $A_{i_{ph,el}} = C_i \cdot a_{i_{ph,el}}$ . Как правило, вклады от ионов примеси и дефектов структуры в выражение для полной диэлектрической проницаемости (1.76) пренебрежимо малы. Однако при вычитании из (1.76) такой же зависимости, взятой для нелегированного кристалла, исчезает вклад от

ионов, концентрация которых не меняется при изменении, например, степени легирования в кристалле близкого химического состава. Поэтому в осцилляционной зависимости  $\delta(\lambda) = n_{o,e}^2(C_{\text{примеси}}, \lambda) - n_{o,e}^2(0, \lambda)$  остаются только члены с силами осцилляторов, зависящими от концентрации примеси. Что может быть ключом к поиску малых изменений фононного, электронного или даже плазмонного спектров возбуждений в кристаллах близких составов, незначительно отличающихся друг от друга.

Отметим, что в приближении  $A_{ph} = \sum_{i_{ph}} A_{i_{ph}}$ ,  $\lambda \ll \lambda_{i_{ph}}$ , когда длины волн

фононов много больше длин волн холостого излучения, выражение преобразуется к виду, хорошо известному как формула Сельмейера:

$$\varepsilon(\lambda) = A_{UV} + \sum_{i_{el}} \frac{A_{i_{el}}}{\lambda_{i_{el}}^{-2} - \lambda^{-2}} - A_{ph} \lambda^2 \quad (1.77)$$

### 1.3 Экситоны, экситонные поляритоны. Бозе-конденсация экситонных поляритонов. Резонансное рассеяние.

Экситон как связанное состояние (квазичастица), возникает благодаря кулоновскому взаимодействию в полупроводниках электронов и дырок. Несмотря на тот факт, что экситон образованы фермионами, сам он подчиняется статистике Бозе-Эйнштейна, поскольку суммарный спин равен целому числу. Концентрации свободных носителей в невырожденных полупроводниках обычно малы и порядка  $n \sim 10^{16} - 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . В случае вырожденных полупроводников происходит экранировка носителей заряда, и экситоны не образуются. В зависимости от радиуса локализации подразделяются на два типа: большого радиуса (Ванье-Мотта) и малого радиуса (Френкеля). По аналогии с поляронами, радиус определяется размерами области локализации экситона. Если расстояние между электроном и дыркой  $R$  больше постоянной решетки  $a$  ( $R > a$ ), то говорят об экситонах большого радиуса, в противном случае – малого. Экситоны – двухчастичные состояния, поэтому их энергетические уровни не могут описываться в одноэлектронном приближении и изображаться на энергетических диаграммах зонной структуры полупроводников. Поэтому естественно их изображать в виде энергетических уровней в координатах  $E_{eh}(K)$ , где  $E_{eh}$  – энергия электрон-дырочного взаимодействия,  $K$  – суммарный квазиимпульс электрона и дырки  $K = k_e + k_h$ .

**Экситоны Френкеля.** Возникают, если энергия внутримолекулярного взаимодействия больше межмолекулярного (органические проводники, ионные кристаллы и т.д.). Образуются при переходах одного из связанных электронов (с внутренних оболочек) на более высокие энергетические уровни. Например, в кристаллах с ковалентным типом связи (Si, Ge) при переходах в пределах одной связи из  $s$  в  $p$  состояния. Т.е. образуется связанное состояние внутри одного атома или молекулы и электроны и дырки не могут перемещаться по отдельности. Транспортные свойства экситонов Френкеля очень похожи на свойства поляронов малого радиуса (см. Гл.2). Поле диполя «электрон-дырка» может поляризовать соседний атом. Если соответствующие матричные элементы перехода между атомами с координатами  $R_i$  и  $R_j$ , например, в дипольном приближении отличны от нуля:  $V_{ij} \propto \langle \psi_{R_i}(r_e, r_h) | \hat{U} | \psi_{R_j}(r_e, r_h) \rangle \neq 0, i \neq j$ , то возбуждение может передвигаться прыжками (англ. - hopping) между узлами решетки (Рис. 14):

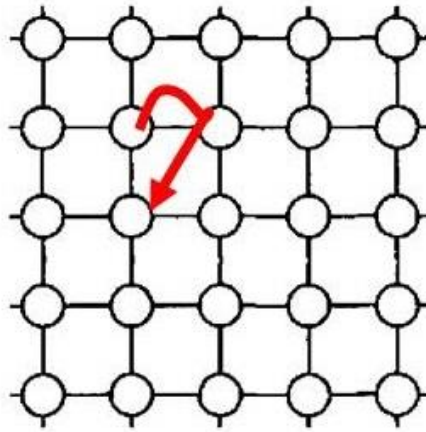


Рис.14. Хоппинг экситонов Френкеля

Можно показать, что с ростом главного квантового числа уровни энергии ведут себя подобно атому водорода как  $1/n^2$ :

$$\varepsilon_n = -\frac{\mu e^4}{2\varepsilon\hbar n^2}, \quad (1.78)$$

где  $\mu$  – приведенная масса пары, а  $\varepsilon$  – диэлектрическая проницаемость, а радиус возбуждения меньше постоянной решетки:

$$a_{ex} = \frac{\varepsilon\hbar^2}{\mu e^2} < a. \quad (1.79)$$

**Экситоны Ванье-Мотта.** Экситоны данного типа образуются вследствие кулоновского взаимодействия между электронами и дырками. Энергетический спектр формируется не только кулоновским полем электронно-дырочного взаимодействия, но и средним кулоновским полем решетки. Экситон большого радиуса перемещается по своей зоне (не хоппинг, как в случае экситонов Френкеля), радиус возбуждения больше постоянной решетки:  $a_{ex} \gg a$ . Возможно образование как прямых, так непрямых экситонов. Их разница – в рекомбинации носителей. Для непрямых экситонов рекомбинация идет с возбуждением фононов. Вероятность таких процессов на 1-3 порядка ниже чисто оптических, поэтому равновесная концентрация непрямых экситонов может на несколько порядков превышать равновесную концентрацию прямых экситонов.

Рассмотрим задачу о нахождении волновых функций и энергетического спектра экситонов большого радиуса [6]. Запишем уравнение Шредингера для электронов (e) и дырок (h):

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_e \Psi - \frac{\hbar^2}{2m_h} \Delta_h \Psi - \frac{e^2}{\varepsilon|r|} \Psi + E_g \Psi = E_n \Psi, \quad (1.80)$$

где  $r = r_e - r_h$ ,  $M = m_e + m_h$ ,  $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$  - приведенная масса,  $R = \frac{r_e m_e + r_h m_h}{m_e + m_h}$  - координаты центра инерции. Перепишем (1.80) в новых координатах:

$$-\frac{\hbar^2}{2M} \Delta_R \Psi - \frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_r \Psi - \frac{e^2}{\varepsilon|r|} \Psi = (E_n - E_g) \Psi. \quad (1.81)$$

Решение (1.81) будем искать в виде волновой функции (ВФ):

$$\Psi(r, R) = \beta(r) \exp \frac{ip_{ex} R}{\hbar} \quad (1.82)$$

Тогда получим:

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_r \beta - \frac{e^2}{\varepsilon|r|} \beta = \varepsilon_n \beta, \quad (1.83)$$

где  $\varepsilon_n = E_n - E_g - \frac{p_{ex}^2}{2M}$ . Часть ВФ  $\beta(r)$  описывает относительное движение электрона и дырки, а часть  $\propto \exp \frac{ip_{ex} R}{\hbar}$  - описывает движение экситона как целого (квазичастицы) с квазиимпульсом  $p_{ex}$ . В результате решения (1.83) получим водородоподобные ВФ вида  $\beta(r) \propto R_{nl}(r) Y_{lm}(\theta)$ , а спектр будет иметь вид:

$$\varepsilon_n = -\frac{\mu e^4}{2\varepsilon^2 \hbar^2 n^2}. \quad (1.84)$$

ВФ основного состояния экситона:  $\beta(r) \propto \frac{\exp(-r/a_{ex})}{\sqrt{\pi a_{ex}^3}}$ . Результирующий энергетический спектр экситонов с учетом пространственной дисперсии (рис.15):

$$E_n = E_g + \frac{p_{ex}^2}{2M} - \frac{\mu e^4}{2\varepsilon^2 \hbar^2 n^2}, \quad n=1,2,\dots \quad (1.85)$$

Оценка энергии связи дает для экситонов большого радиуса энергия порядка тепловой КТ, т.е. для их наблюдения полупроводник необходимо охладить.

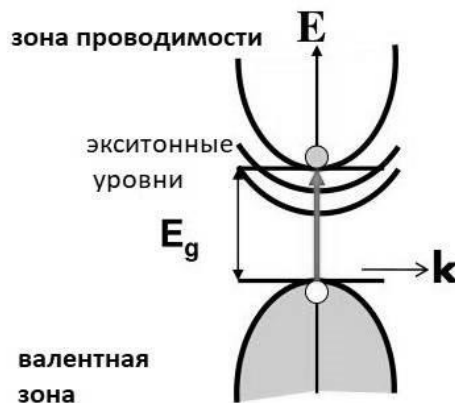


Рис. 15. Экситонный спектр



Как увеличить энергию связи экситона и перейти к комнатным температурам для наблюдения экситонных спектров? Можно перейти к низкоразмерным полупроводниковым структурам. Спектр экситонов в 2D-структурах:

$\varepsilon_n^{2D} \propto \frac{1}{(n-1/2)^2}$ , поэтому выполняется соотношение

$\varepsilon_1^{2D} = 4\varepsilon_2^{3D}$ , что позволяет возбуждать экситоны в низкоразмерных структурах и при комнатных температурах. Типичный экситонный спектр на примере арсенида галлия приведен на рис.16. Помимо уширения запрещенной зоны и сдвига края поглощения в синюю область спектра с понижением температуры отчетливо видно экситонный пик поглощения.

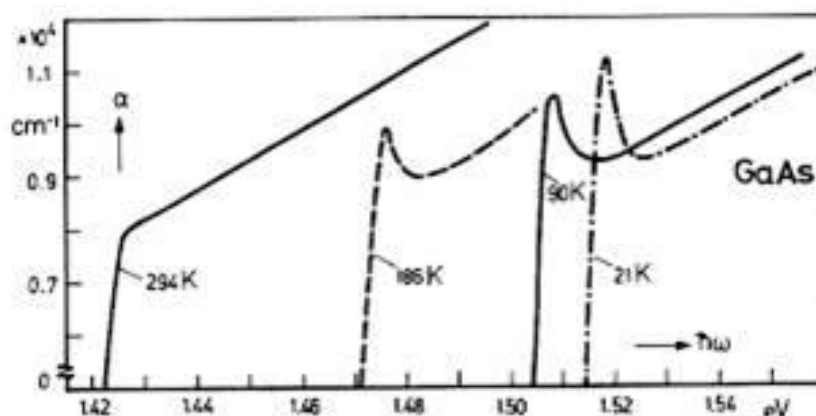


Рис. 16. Экситонное поглощение в арсениде галлия

Как и в случае фоновых поляритонов, при пересечении дисперсионной кривой фотонов экситонных уровней возникает характерный вид дисперсионной кривой типа анти-пересечения («бутылочное горло»), возникает поляритонная запрещенная зона, где диэлектрическая проницаемость отрицательна, и две поляритонных ветви (верхняя и нижняя) (рис.17).

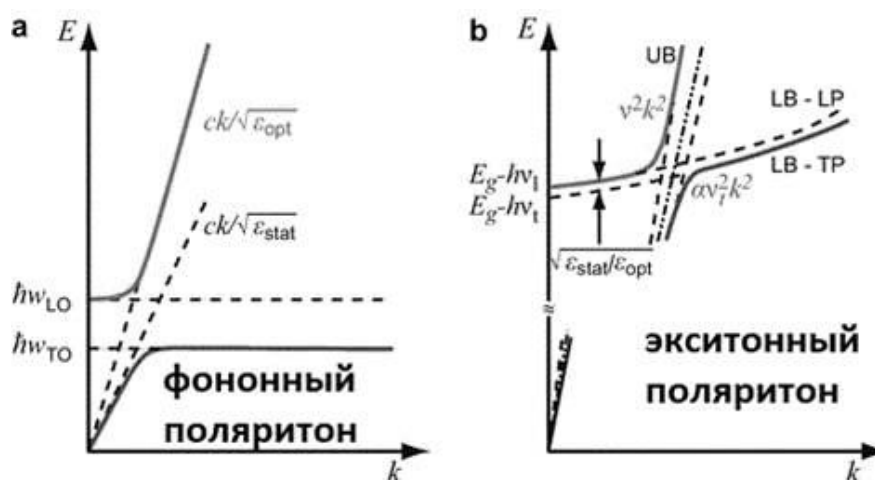


Рис. 17. Экситонные поляритоны

## Бозе-конденсация экситонных поляритонов

Крайне интересным физическим явлением является бозе конденсация экситонов в микрорезонаторах [7]. Бозе-конденсация происходит при температурах ниже критической  $T < T_{кр}$ , длина волны де-Бройля превышает межчастичное расстояние экситонов и происходит заполнение низшего состояния с нулевым импульсом  $p=0$ . Бозе-конденсация происходит в квазидвумерных полупроводниковых гетероструктурах, помещенных в микрорезонатор. Гетероструктуры с квантовыми ямами необходимы для создания режима разреженного экситонного газа:  $na_{ex}^2 \ll 1$ , где  $n$  – поверхностная плотность экситонов. Из условия  $\lambda_{dBr} = \sqrt{h^2 / mkT} \geq 1 / \sqrt{n}$  находим критическую температуру  $T_{кр} = nh^2 / mk$ , оценка дает величины  $T_{кр} = 10 - 100K$ , т.е. при благоприятных условиях возможен эксперимент и при температуре кипения жидкого азота. Эксперименты проводят в микрорезонаторах, в пучности распределения поля помещают полупроводниковую двумерную структуру (квантовую яму). За счет эффекта экситон-поляритонного параметрического рассеяния (не путать с параметрическим рассеянием из разд. 1.2), происходит накопление и конденсация экситонов в нижнем состоянии с  $p=0$  согласно условиям синхронизма (1.86), см. также рис.18:

$$\begin{aligned} 2k_p &= k_s + k_i, & 2\omega_p &= \omega_s + \omega_i \\ 2\omega_{LP}(k_p) &= \omega_{LP}(k_s) + \omega_{LP}(2k_p - k_s) \end{aligned} \quad (1.86)$$

В результате происходит бозе-конденсация экситонов (рис.19), что может применяться в различных задачах квантовой информатики.

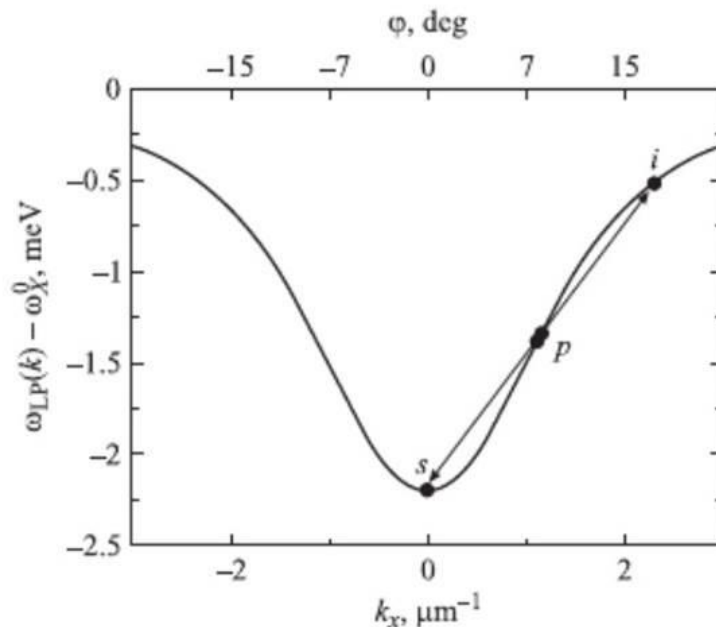
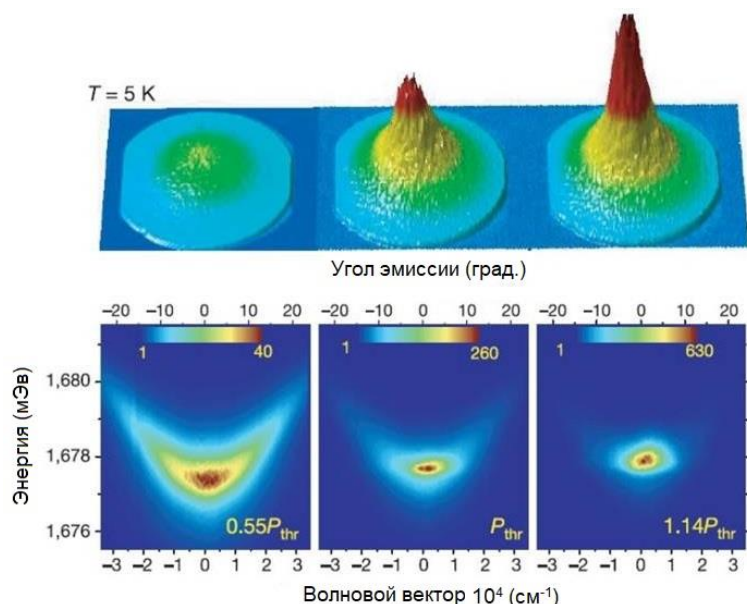


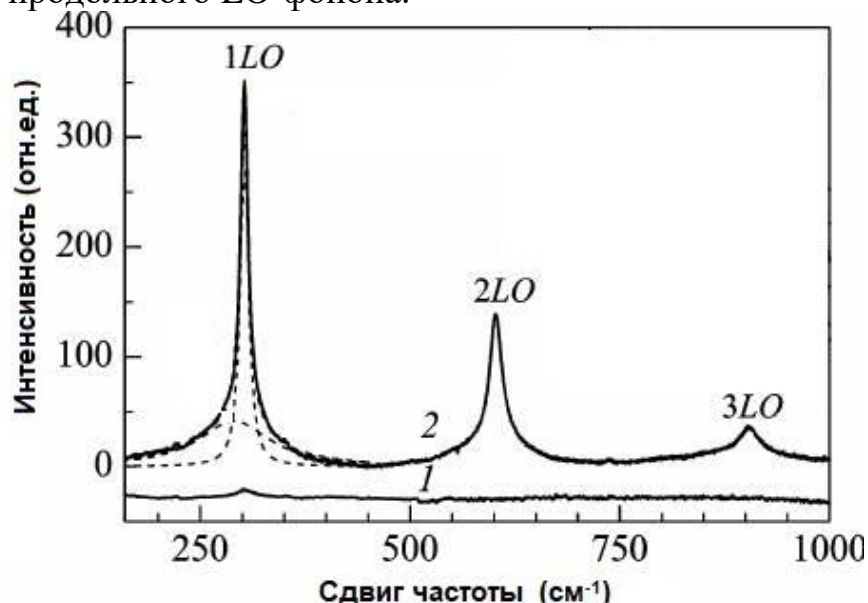
Рис.18. Экситон-поляритонное параметрическое рассеяние



**Рис.19.** Излучение экситонной поляритонной моды в зависимости от плотности излучения. Выше пороговой мощности  $P_{thr}$  наблюдается конденсация экситонов.

### Резонансное рассеяние

Также следует отметить, если частота накачки попадает в резонанс с частотой квазичастицы – экситонного поляритона, то наблюдается усиление эффекта КР или РМБ на порядки. Общий подход к рассмотрению задачи о резонансном КР и РМБ строится на микроскопической теории, использующей технику диаграмм Фейнмана. При этом учитываются процессы, вносящие вклад в однофононное рассеяние с участием экситона. В спектрах рассеяния становятся видны: многофононные рамановские спектры; запрещенные в силу правил отбора переходы; а также и рассеяние в наноструктурах. Пример резонансного экситонного КР в кристалле сульфида кадмия приведен на рис.20, отчетливо видно фонные повторения продольного LO-фонона.



**Рис.20.** Резонансное экситонное КР в CdS.

## 1.4 Активная спектроскопия поляритонов. Метод когерентного антистоксового рассеяния (КАРС). Поляритонная спектроскопия с временным разрешением.

### Активная спектроскопия поляритонов.

В дальнейшем, под активной спектроскопией поляритонов мы будем подразумевать класс методов, основанных на когерентном возбуждении поляритонных возбуждений. В таких процессах заселенность поляритонного состояния - число квантов на моду - достигает гораздо более высоких значений по сравнению с планковским распределением. Это обуславливает очень высокую интенсивность сигнального излучения при рассеянии пробной накачки на «разогретых» поляритонах по сравнению со спонтанным рассеянием света на поляритонах.

Первые работы по четырехволновому рассеянию света на поляритонах в средах без центра инверсии появились в середине 60-х гг., и более поздние работы 70-х гг. были в основном посвящены анализу интерференции прямых и каскадных процессов, а также исследованию дисперсии кубической восприимчивости.

Обратимся к четырехволновым процессам. В среде без инверсионной симметрии одновременно с прямым когерентным четырехволновым рассеянием может возбуждаться каскадное когерентное рассеяние света, которое, по сути, представляет собой два последовательных процесса параметрического преобразования частоты. Интенсивность излучения прямого четырехфотонного рассеяния пропорциональна квадрату кубической нелинейности среды, интенсивность же каскадного рассеяния пропорциональна квадрату произведения двух эффективных значений квадратичной нелинейности. В случае, когда возбуждаемое промежуточное состояние находится в резонансе с поляритоном и дисперсионные характеристики всех остальных взаимодействующих волн известны, явление каскадного рассеяния может использоваться для исследования поляритонного состояния.

### Метод когерентного антистоксового рассеяния (КАРС)

Рассмотрим процессы когерентного каскадного четырехволнового рассеяния света с участием поляритонов. Пусть три волны накачки попадают в исследуемую среду. Их поля запишем в следующем виде:

$$\mathbf{E}_i = \mathbf{E}_{i0}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_i t + i\mathbf{k}_i \mathbf{r}) + \text{к.с.} \quad (1.87)$$

где индексы  $i$  могут принимать значения 1, 2 и L. Нелинейное взаимодействие полей  $\mathbf{E}_1$  и  $\mathbf{E}_2$  порождает поляризацию на разностной частоте:

$$P^{(1)}(\mathbf{r}, \omega_1 - \omega_2) = \chi_1^{(2)}(\mathbf{r}) E_{10}(\mathbf{r}) E_{20}^*(\mathbf{r}) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t + i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{r}} + \text{к.с.} \quad (1.88)$$

где  $\chi_1^{(2)}$  - эффективное значение квадратичной восприимчивости для этого процесса. На первом этапе каскадного рассеяния две волны накачки с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  (“разогревающие” волны) возбуждают поляритонное состояние, если частота поляризации совпадает с частотой поляритона  $\omega_p$ :

$$\omega_p = \omega_1 - \omega_2 \quad (1.89)$$

Фурье-компоненты поляризации и электрического поля -  $\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega_p)$  и  $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega_p)$  - связаны через функцию Грина  $\mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_p)$  уравнений Максвелла:

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega_p) = \mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_p) \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega_p) \quad (1.90)$$

Общее выражение для функции Грина с учетом анизотропии кристалла было получено Клышко [5]. Для случая обыкновенных поляритонов, функция Грина имеет вид (1.69). Следовательно, из (1.87) - (1.90), применяя обратное Фурье-преобразование, можно получить следующее выражение для напряженности электрического поля поляритонной волны:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_p) = \frac{\chi^{(2)} E_{10} E_{20}^* e^{-i\omega_p t}}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{k} \mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_p) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \int_{V'} d\mathbf{r}' e^{i\Delta\mathbf{k}^{(1)}\mathbf{r}} \quad (1.91)$$

где  $\Delta\mathbf{k}^{(1)} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}$  - расстройка синхронизма. Интегрирование по переменной  $\mathbf{k}$  осуществляется по всем возможным направлениям и величинам волновых векторов. Область интегрирования по пространственной координате ограничена объемом, в котором поля «разогревающих» накачек и квадратичная восприимчивость отличны от нуля. Здесь и далее мы будем пренебрегать возможной пространственной неоднородностью распределения квадратичной восприимчивости и взаимодействующих полей в объеме взаимодействия  $V'$ .

На втором этапе третья волна накачки  $\mathbf{E}_L$  (пробная волна) с частотой  $\omega_L$  рассеивается на возбужденной поляритонной волне  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_p)$ . Будем рассматривать стоксово рассеяние света на поляритонах. В результате, выражение для поляризации, осциллирующей на стоксовой частоте  $\omega_s = \omega_L - \omega_p$  будет иметь следующий вид:

$$\mathbf{P}_{casc}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega_L - \omega_p) = \frac{\chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)} \mathbf{E}_{L0} \mathbf{E}_{10}^* \mathbf{E}_{20}}{(2\pi)^3} e^{-i\omega_s t + i\mathbf{k}_s \mathbf{r}} \times \int d\mathbf{k} e^{i\Delta\mathbf{k}^{(2)}\mathbf{r}} \mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_p) \int_{V'} d\mathbf{r}' e^{-i\Delta\mathbf{k}^{(1)}\mathbf{r}} \quad (1.92)$$

где  $\Delta\mathbf{k}^{(2)} = \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s - \mathbf{k}$  - волновая расстройка на втором этапе каскадного рассеяния. Чтобы получить общее выражение для поляризации на сигнальной частоте  $\omega_s$ , следует учесть и прямые четырехволновые процессы, возникающие за счет отличной от нуля кубической восприимчивости  $\chi^{(3)}$ . Окончательное выражение для интенсивности сигнальной волны в зависимости от волновых расстроек имеет следующий вид:

$$I_s \sim \left| \chi^{(3)} f''(\Delta \mathbf{k}) + \frac{\chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)}}{(2\pi)^3} \int G^*(\mathbf{k}, \omega_p) \cdot f'^*(\mathbf{q}_1 - \mathbf{k}) \cdot f''(\mathbf{q}_2 - \mathbf{k}) \cdot d\mathbf{k} \right|^2 \quad (1.93)$$

$$\text{где} \quad \mathbf{q}_1 \equiv \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2, \quad \mathbf{q}_2 \equiv \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_S, \quad \Delta \mathbf{k} \equiv \mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1 \quad (1.94)$$

$f(\mathbf{k})$  – форм-фактор, зависящий от формы и размеров области взаимодействия. Зависимость данной функции от произвольного вектора  $\vec{\zeta}$  имеет следующий вид:

$$f(\vec{\zeta}) \equiv \int_V \exp(i \vec{\zeta} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (1.95)$$

Например, для рассеивающего объема, имеющего форму прямоугольного параллелепипеда со сторонами  $a$ ,  $b$  и  $c$ , форм-фактор имеет следующий вид:

$$f(\Delta \mathbf{k}) = V \cdot \frac{\sin(\Delta k_x a / 2)}{\Delta k_x a / 2} \cdot \frac{\sin(\Delta k_y b / 2)}{\Delta k_y b / 2} \cdot \frac{\sin(\Delta k_z c / 2)}{\Delta k_z c / 2} \quad (1.96)$$

где  $\Delta k_x$ ,  $\Delta k_y$ ,  $\Delta k_z$  - декартовы координаты вектора волновой расстройки  $\Delta \mathbf{k}$ . Чтобы получить точное выражение для интенсивности сигнальной волны, следует в формуле (1.93) проводить интегрирование по разным объемам взаимодействия  $V'$  и  $V''$  (рис.21). Объем  $V''$  является частью объема  $V'$ , в которой поле пробной волны отлично от нуля.

Рассмотрим частный случай, когда объемы взаимодействия  $V'$  и  $V''$  имеют произвольную форму, но их линейные размеры  $l$  достаточно большие и удовлетворяют условию  $\alpha_p l \gg 1$ .

В этом случае поляритонная функция Грина может быть вынесена из под интеграла в выражении (1.93), т.к. она меняется очень медленно по сравнению с функциями  $f'$  и  $f''$ . Интегрирование произведения функций  $f'$  и  $f''$  в случае, когда объемы  $V'$  и  $V''$  имеют форму куба и примерно равны, приводит к следующему результату:

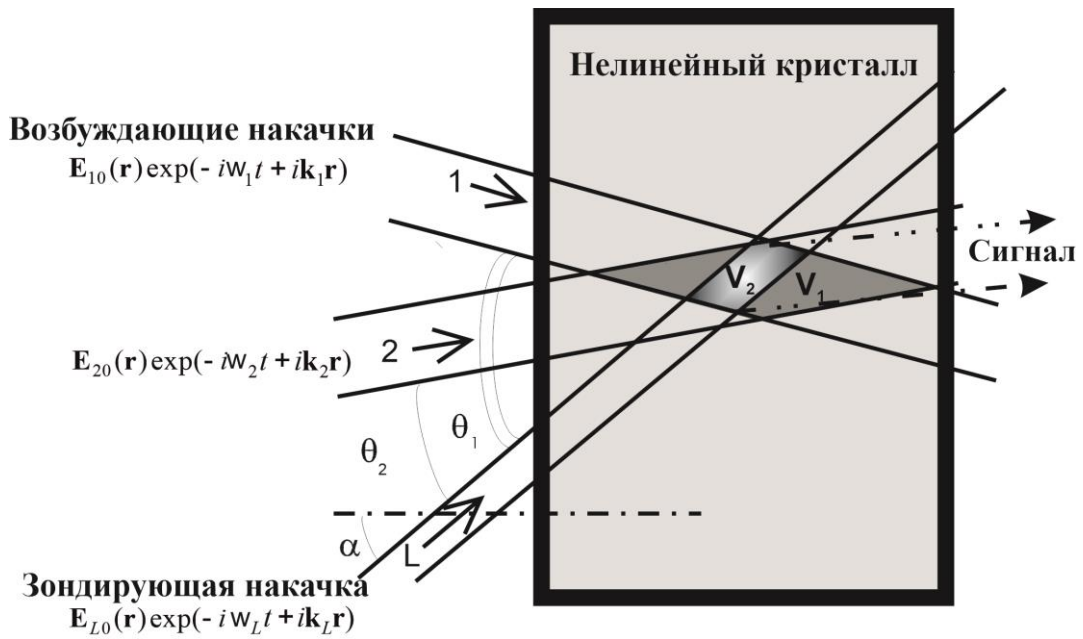
$$\int f'^*(\mathbf{q}_1 - \mathbf{k}) \cdot f''(\mathbf{q}_2 - \mathbf{k}) \cdot d\mathbf{k} = (2\pi)^3 f''(\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1) \quad (1.97)$$

Используя этот результат, получаем следующее выражение:

$$I_s \sim \left| \chi_{eff}^{(3)} \right|^2 \left| f''(\Delta \mathbf{k}) \right|^2, \quad (1.98)$$

$$\chi_{eff}^{(3)} \equiv \chi^{(3)} + \chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)} G^*(\mathbf{q}_1, \omega_p)$$

Аналогичная схема расчета может использоваться и для антистоксового рассеяния  $\omega_s = \omega_L + \omega_p$ , а также для случая, когда промежуточное состояние возбуждается на суммарной частоте  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_p$  (случай экситонных поляритонов).



**Рис. 21.** Схематическое изображение взаимодействия оптических накачек при четырехволновом взаимодействии в нелинейной среде.

Обобщенная кубическая нелинейная восприимчивость  $\chi_{eff}^{(3)}$  в выражении (1.98) содержит “каскадный” член  $\chi_{casc}^{(3)} \equiv G^*(\mathbf{q}_1, \omega_p) \chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)}$ , описывающий поляритонные свойства. Информация о поляритонных характеристиках на частоте  $\omega_p$  включена в зависимость  $\chi_{eff}^{(3)}$  от “поляритонной” волновой расстройки  $\tau = \mathbf{q}_1 - \mathbf{k}_p$ . Чтобы извлечь эту информацию, необходимо измерить зависимость интенсивности сигнальной волны  $I_s(\tau)$  от поляритонной расстройки синхронизма при условии  $\Delta \mathbf{k} = 0$ , т.е. когда выполнены условия синхронизма для прямых четырехволновых процессов. Для обыкновенных поляритонов функция Грина  $G(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2, \omega_p)$  зависит от скалярной поляритонной расстройки  $\tau = |\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2| - k_p$  и коэффициента поглощения поляритонной волны  $\alpha_p$ . При реалистичных условиях:

$$k_p \gg \alpha_p, k_p \gg \tau \quad (1.99)$$

имеем:

$$G(\tau, \omega_p) = \frac{2\pi\omega_p}{n_p c} \cdot \frac{\tau + i\alpha_p/2}{\tau^2 + (\alpha_p/2)^2} \quad (1.100)$$

Подставив (1.100) в (1.98), мы получим зависимость интенсивности сигнала от волновых расстроек  $\tau$  и  $\Delta \mathbf{k}$  для случая:

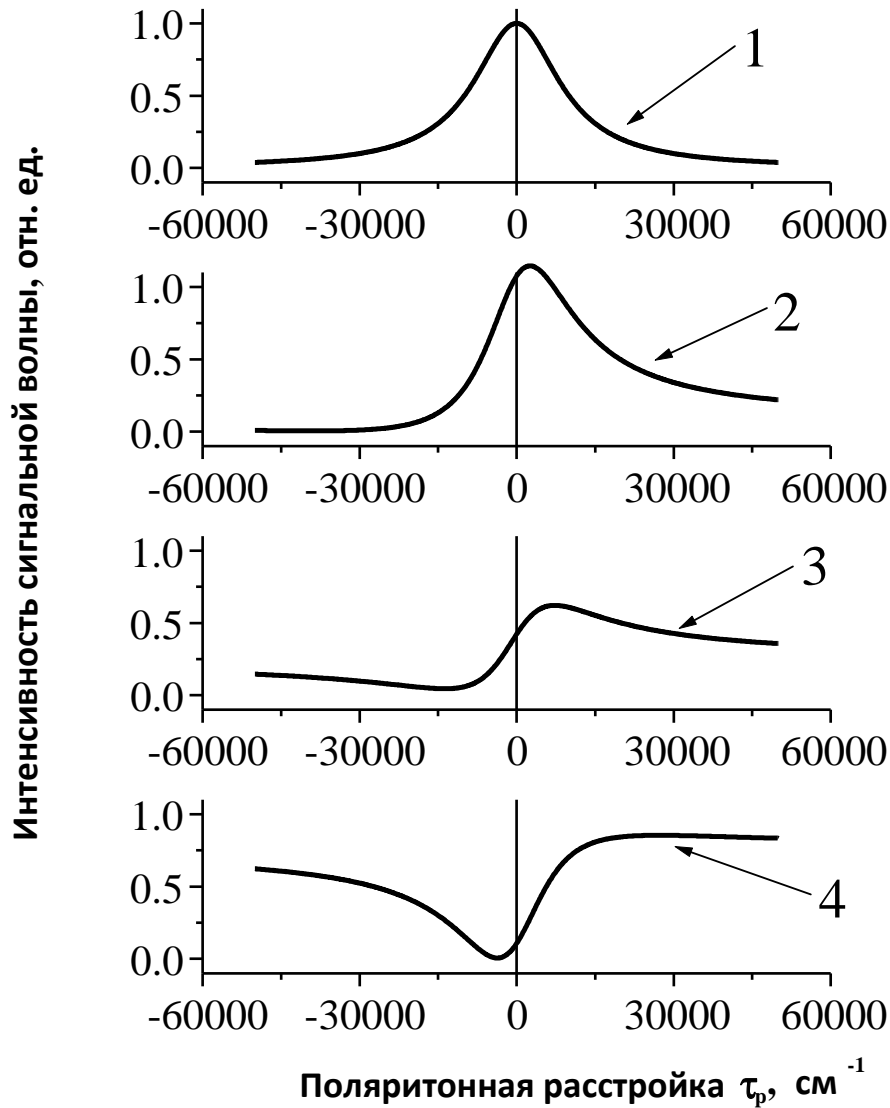
- больших объемов каскадного взаимодействия
- обыкновенных поляритонов
- действительных нелинейных восприимчивостей  $\chi_1^{(2)}, \chi_2^{(2)}, \chi^{(3)}$ :

$$I_s \sim \left\{ (\eta\chi^{(3)})^2 + \frac{2\eta\chi_1^{(2)}\chi_2^{(2)}\chi^{(3)}\tau_p}{(\alpha_p/2)^2 + \tau_p^2} + \frac{(\chi_1^{(2)}\chi_2^{(2)})^2}{(\alpha_p/2)^2 + \tau_p^2} \right\} |f''(\Delta\mathbf{k})|^2 \quad (1.101)$$

где  $\eta = n_p c / 2\pi\omega_p$ . В формуле (1.101) первый член в квадратных скобках описывает прямое четырехволновое взаимодействие, последний член - чисто каскадный процесс рассеяния и средний - интерференцию между прямыми и каскадным процессами. В случае, когда вклад от прямых процессов гораздо меньше, чем от каскадных процессов,  $I_s(\tau)$  имеет вид функции Лоренца. Измеряя положение пика в координатной плоскости волновых расстройек  $(\tau, \Delta k)$ , мы можем оценить волновой вектор поляритона  $k_p$  и действительную часть диэлектрической проницаемости  $\epsilon_p$  на поляритонной частоте  $\omega_p$ . Коэффициент поглощения поляритонной волны  $\alpha_p$  и мнимая часть диэлектрической проницаемости  $\epsilon_p''$  могут быть определены из полуширины лоренцевого пика. Отметим, что получаемый из экспериментов по четырехволновому рассеянию характер дисперсии поляритонов (нормальная или аномальная дисперсия) зависят от процедуры измерений ( $\omega$ - и  $k$ - спектроскопия), а также от активности фонона в комбинационном рассеянии света.

В случае, когда вклады от прямых и каскадных процессов сравнимы, форма линии имеет сильно асимметричный вид типа резонанса Фано (рис.22). Анализируя экспериментальные распределения  $I_s(\tau)$ , можно измерить отношение  $\chi^{(3)} / \chi_1^{(2)}\chi_2^{(2)}$  и знак  $\chi^{(3)}$ . В целом, наличие вклада от прямых процессов приводит к усложнению процедуры определения поляритонных характеристик. По-видимому, эта проблема имеет общий характер для стационарной КАРС-спектроскопии возбуждений в кристаллах.





**Рис. 22.** Влияние на форму линии поляритонного  $\mathbf{k}$ -спектра интерференции прямых и каскадных процессов при учете мнимой части кубической восприимчивости. При расчете выбирались следующие параметры:

$$n_p = 10, \quad \alpha_p = 2 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad \omega_p = 580 \text{ см}^{-1}, \quad \chi_{1,2}^{(2)'} = 10^{-7} \text{ СГС}, \quad \chi_{1,2}^{(2)''} = 0$$

- 1 -  $\chi^{(3)'} = 0, \chi^{(3)''} = 0$
- 2 -  $\chi^{(3)'} = 10^{-16} \text{ СГС}, \chi^{(3)''} = 0$
- 3 -  $\chi^{(3)'} = 10^{-16} \text{ СГС}, \chi^{(3)''} = 10^{-16} \text{ СГС}$
- 4 -  $\chi^{(3)'} = 10^{-16} \text{ СГС}, \chi^{(3)''} = 3 \cdot 10^{-16} \text{ СГС}$

## Поляритонная спектроскопия с временным разрешением

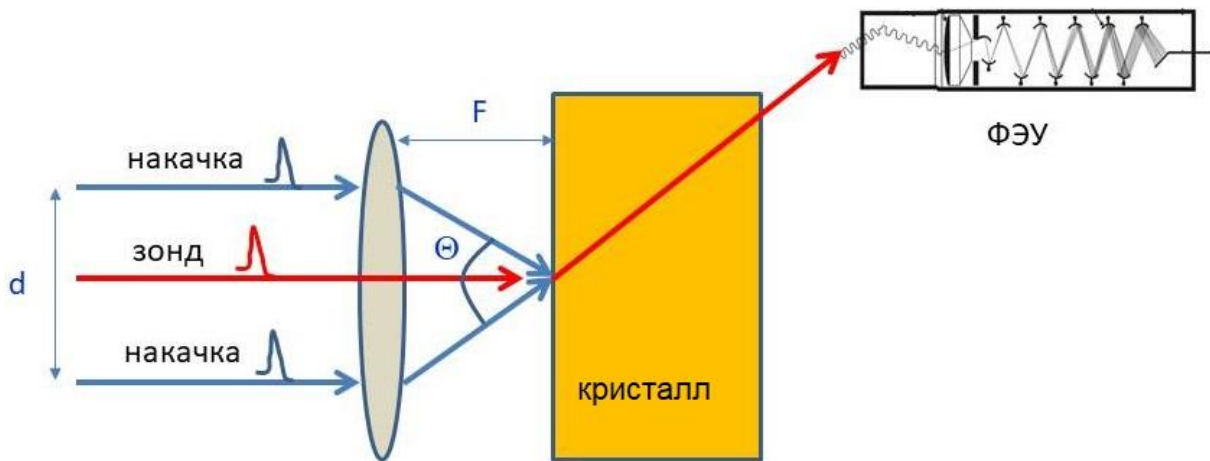
В настоящее время эффект каскадного четырехволнового рассеяния света успешно применяется для исследования поляритонных состояний методами спектроскопии с временным и пространственным разрешением. Кроме того, из методов нестационарной спектроскопии следует упомянуть импульсное вынужденное комбинационное рассеяние света на поляритонах (ИБКР, англ. ISRS). В таких процессах поляритоны возбуждаются одним или двумя сверхкороткими импульсами с одинаковыми частотами за счет нелинейного взаимодействия разных частотных компонент импульсов накачки в нецентросимметричном кристалле с отличной от нуля квадратичной восприимчивостью по полю (рис. 23):

$$P^{NL}(\omega_p) = \chi^{(2)}(\omega_p) E_{\omega_1} E_{\omega_2}^* \quad (1.102)$$

В этом процессе возбуждается стоячая поляритонная волна как результат распространения двух бегущих в противоположных направлениях волн с волновыми векторами, равными разности проекций волновых векторов накачек на входную поверхность нелинейного кристалла:

$$\Delta k_p = |k_{1x} - k_{2x}| \approx \frac{2\pi}{\lambda_{pump}} \frac{d}{F} = \frac{4\pi \sin(\theta/2)}{\lambda_{pump}}, \quad (1.103)$$

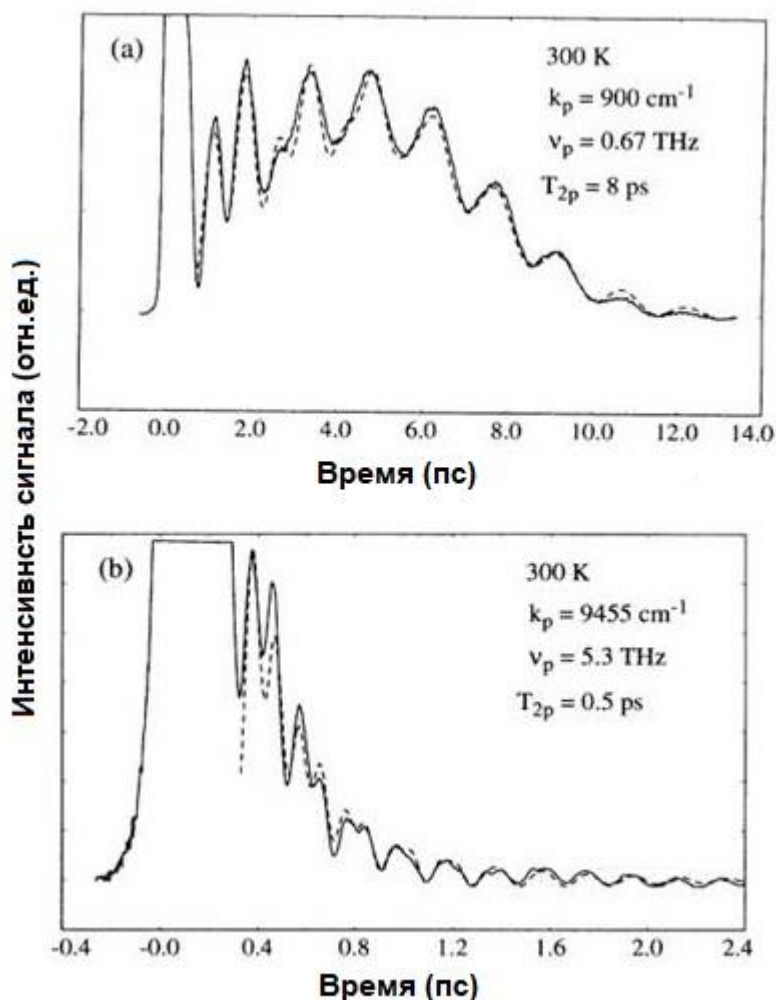
Где  $d$  – расстояние между пучками накачек,  $F$  – фокусное расстояние собирающей линзы, в фокальной плоскости которой расположен кристалл.



**Рис. 23.** Нестационарное возбуждение поляритонов и рассеяние света на них

Затем на кристалл падает с некоторой временной задержкой импульс пробной волны (зонд), который дифрагирует на решетке показателя преломления, образованной за счет электрооптического эффекта возбужденной стоячей поляритонной волной. Этот метод имеет ряд ограничений, в частности, он дает большую ошибку в определении дисперсии с поляритонов с малым временем жизни [7].

Экспериментальный пример реализации этого метода приведен на рис.24. Видно, что с ростом частоты поляритона существенно меняется не только частота модуляции дифрагированного сигнала, но и его затухание, что обусловлено уменьшением времени жизни возбуждаемого поляритона при приближении его частоты к частоте А-фонона.



**Рис. 24.** Нестационарное возбуждение поляритонов в кристалле  $\text{LiTaO}_3$ . На графиках изображена интенсивность дифрагированного сигнала с временным разрешением в зависимости от задержки между пробным импульсом (зондом) и двумя импульсами накачки.

## 1.5 Магноны. Сверхбыстрый оптомагнетизм.

Магноны – это элементарные возбуждения в системе упорядоченных магнитных моментов. Подобно тому, как фотон – квант электромагнитного поля (электромагнитных волн), магнон – это квант спиновых волн, распространяющихся в ферро- и анти-ферромагнетиках. Магнитные моменты взаимодействуют друг с другом через обменное и дипольно-дипольное взаимодействие. Любые флуктуации распространяются как

волны намагниченности  $\mu = \sum_{i=1}^N P_i / V$  (магнитного момента единицы объема

материала). Спиновые волны - волны намагниченности в ферро-, антиферро- и ферримагнитных материалах с большими волновыми числами. Их можно рассматривать классически, а это значит, что частиц много и они подчиняются статистике Бозе-Эйнштейна.

Магнитные свойства вещества определяются суммой всех магнитных моментов ядер, спиновых электронных моментов и орбитальных моментов электронов. Первым членом можно пренебречь в силу его малости, а электронные члены обусловлены вкладом электронов внутренних незаполненных оболочек 3d, 4d, 5d, 4f.

Рассмотрим механические моменты электронов. Орбитальный и спиновый моменты квантуются следующим образом:

$$\begin{aligned} |p_l| &= \hbar \sqrt{l(l+1)}, \quad l = 0, 1, 2, \dots \\ |p_s| &= \hbar \sqrt{s(s+1)}, \quad s = \frac{1}{2} \end{aligned} \quad , \quad (1.104)$$

а правила квантования магнитных моментов:

$$\begin{aligned} |m_l| &= \mu_B \sqrt{l(l+1)} \\ |m_s| &= 2\mu_B \sqrt{s(s+1)} \end{aligned} \quad , \quad (1.105)$$

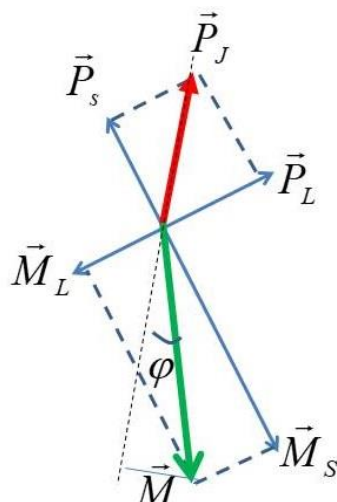
где  $\mu_B = \frac{e\hbar}{2mc}$  - магнетон Бора. Наличие множителя  $2\mu_B$  в ф-ле (1.105)

приводит к тому, что векторная сумма магнитных моментов расположена под углом к полному механическому моменту атома. Посчитаем суммарные механический и магнитный моменты:

$$\begin{aligned} \vec{P}_J &= \sum_n \vec{P}_{ln} + \sum_n \vec{P}_{sn} = \vec{P}_L + \vec{P}_s \\ \vec{M}_J &= \sum_n \vec{M}_{ln} + \sum_n \vec{M}_{sn} = \vec{M}_L + \vec{M}_s \end{aligned} \quad (1.105)$$

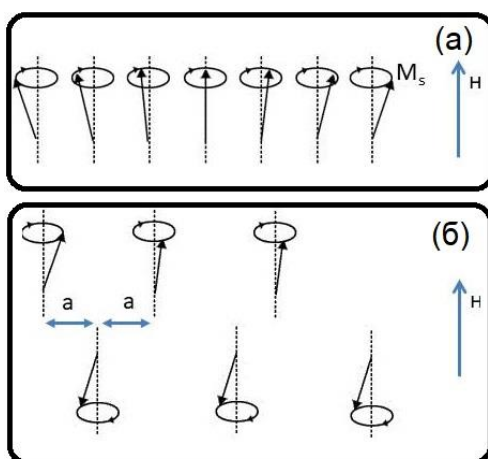
при этом:  $|P_J| = \hbar \sqrt{J(J+1)}$ ;  $J = L + S, \dots, |L - S|$ ,  $\vec{P}_L \uparrow \downarrow \vec{M}_L$ ,  $\vec{P}_s \uparrow \downarrow \vec{M}_s$ .

Суммарный магнитный момент атома  $\vec{M}$  находится под углом  $\varphi$  к его механическому моменту  $\vec{P}_J$  (рис.25). Таким образом, магнитный момент подобно гироскопу прецессирует вокруг механического момента.



**Рис. 25.** Направления векторов механического и магнитного моментов атома.

Магнитные моменты взаимодействуют друг другом посредством двух механизмов. Один из них – магнитное диполь-дипольное взаимодействие  $\propto 1/r^3$ , его энергия порядка 1 мэВ, и пренебрежимо мала по сравнению с электростатическим обменным взаимодействием соседних ионов и их внешних электронов  $\propto 1/r^2$ , энергия которого порядка 10 эВ. Под действием обменных сил упорядочиваются суммарные спиновые магнитные моменты, а орбитальные моменты, определяемые неспаренными электронами, могут быть ориентированы произвольно. Спиновые волны – распространяющиеся колебания относительной ориентации спиновых магнитных моментов атомов в решетке. При приложении внешних сил (например, во внешнем магнитном поле) магнитные моменты  $M_s$  начинают прецессировать. Примеры ферромагнитного и антиферромагнитного упорядочивания приведены на рис.26.



**Рис. 26.** Ферромагнетик (а) и антиферромагнетик (б) во внешнем магнитном поле

Следуя [6], рассмотрим модель Гейзенберга - линейную цепочку упорядоченных магнитных моментов. В этой модели магнитные моменты заменяются непрецессирующими векторами  $M_{SH}=2N\mu_b$ , где  $N$ -число неспаренных электронов в атоме. Обменная энергия 2х электронов равна -  $2AS_iS_j$ , где  $A$ -обменный интеграл, энергия всех электронов :  $U = -2A \sum_{i,j}^N s_i s_j$ .

Подобно модели фононов в линейной цепочке, ограничимся взаимодействием только ближайших соседей:

$$U = -2As_{p-1}s_p - 2As_p s_{p+1} = -2As_p (s_{p-1} + s_{p+1}) = -M_p \left( -\frac{A}{\mu_B} \right) (s_{p-1} + s_{p+1}) \equiv -M_p H_{eff} \quad (1.106)$$

где по своему физическому смыслу  $H_{eff}$  - это эффективное магнитное поле, действующее на магнитные моменты. Далее запишем уравнения движения, описывающие динамику моментов импульсов во времени:

$$\begin{aligned} \frac{d\vec{P}_s}{dt} &= \vec{M}_{внеш} \\ \frac{d\vec{P}_s}{dt} &= \hbar \frac{d\vec{s}_p}{dt} = [\vec{M}_p, \vec{H}_{eff}] = -2\mu_b [\vec{s}_p, \vec{H}_{eff}] . \quad (1.107) \\ \frac{d\vec{s}_p}{dt} &= \frac{2A}{\hbar} ([\vec{s}_p, \vec{s}_{p-1}] + [\vec{s}_p, \vec{s}_{p+1}]) \end{aligned}$$

Используем приближение  $s_p^x, s_p^y \ll |s|$ ,  $s_p^z \approx |s|$ , т.е. полагая, что амплитуда возбуждений очень мала, а также пренебрегая членами  $s_p^x s_p^y$ , получим:

$$\begin{aligned} \frac{ds_p^x}{dt} &= -\frac{2A|s|}{\hbar} (2s_p^y - s_{p-1}^y - s_{p+1}^y) \\ \frac{ds_p^y}{dt} &= -\frac{2A|s|}{\hbar} (2s_p^x - s_{p-1}^x - s_{p+1}^x) . \quad (1.108) \\ \frac{ds_p^z}{dt} &= 0 \end{aligned}$$

Ищем решения в виде бегущих волн:

$$\begin{aligned} s_p^x &= Ue^{-i(\omega t - nka)} \\ s_p^y &= Ve^{-i(\omega t - nka)} \end{aligned} \quad (1.109)$$

$n$  – целое число,  $a$  – период решетки. Подставляя (1.109) в (1.108), получим систему уравнений, решение которой:

$$\begin{vmatrix} i\omega & \frac{4A|S|}{\hbar}(1 - \cos ka) \\ -\frac{4A|S|}{\hbar}(1 - \cos ka) & i\omega \end{vmatrix} = 0. \quad (1.110)$$

Отсюда находим закон дисперсии для спиновых волн в ферромагнетике (рис.27):

$$\hbar\omega_s = E_0 + 4A|S|(1 - \cos ka). \quad (1.111)$$

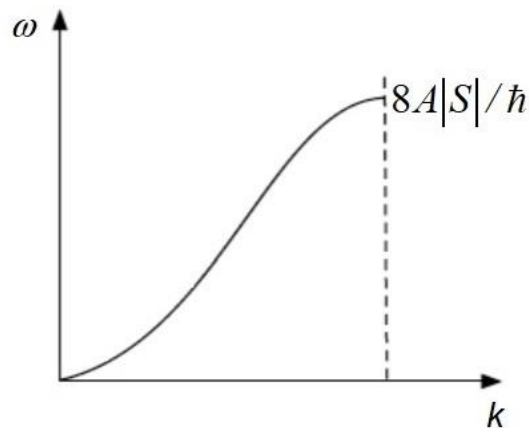


Рис. 27. Дисперсия магнонов в ферромагнетике

Аналогичным способом можно найти закон дисперсии спиновых волн в антиферромагнетике. Полагая энергию взаимодействия соседних спинов положительной  $U = +2A \sum_{i,j}^N s_i s_j$ , получим:

$$\hbar\omega_s = 4A|S||\sin ka|. \quad (1.112)$$

Энергия спиновых волн квантуется, кванты называют магнонами:

$$E_k = m_k \hbar\omega_k. \quad (1.113)$$

$m_k$  естественно считать числом магнонов на моду, оно равно  $m_k = N \frac{u_k^2}{2|S|}$ ,

где  $N$  – полное число атомов в цепочке,  $u_k$  – амплитуда спиновой волны (компонента спина, перпендикулярная оси  $Z$ ). Также подобно другим элементарным возбуждениям в твердом теле можно ввести эффективную массу магнонов:

$$M^* = \left( \frac{\partial^2 E}{\partial p^2} \right)^{-1}. \quad (1.114)$$

### Сверхбыстрый оптомагнетизм

Тип магнитного упорядочивания играет решающую роль во взаимодействии с электромагнитным излучением. Введем намагниченности подрешеток  $M_1$  и  $M_2$ . Ферромагнитный вектор  $\vec{M} = \vec{M}_1 + \vec{M}_2$  и антиферромагнитный  $\vec{L} = \vec{L}_1 + \vec{L}_2$ . Полная энергия взаимодействия магнитного материала с внешним полем при разложении по степеням поля  $E_i$  и параметров порядка  $M_j$  и  $L_k$  запишется в виде:

$$E_{int} = \varepsilon_{ij} E_i E_j^* + \alpha_{ijk} E_i E_j^* M_k + \alpha'_{ijk} E_i E_j^* L_k + \\ + \beta_{ijkl} E_i E_j^* M_k M_l^* + \beta'_{ijkl} E_i E_j^* L_k L_l^* + \beta''_{ijkl} E_i E_j^* M_k L_l^* + \dots \quad (1.115)$$

где  $\varepsilon_{ij}$  - тензор диэлектрической проницаемости,  $\alpha_{ijk}$  и  $\beta_{ijkl}$  - тензоры магнитооптической восприимчивости третьего и четвертого рангов. Первый член описывает электродипольное взаимодействие и является немагнитным. Второй и третий члены в разложении описывают ферро- и антиферромагнитный эффекты Фарадея, который связан с поворотом электрической поляризации электромагнитного излучения. Члены типа четвертого связаны с эффектом Коттона-Муттона, и проявляются в наведенном двулучепреломлении и, как следствие, в наведенной эллиптичности поляризации электромагнитной волны. Эти методы могут быть положены в основу зондирования магнитного состояния среды. Также наблюдаются и обратные эффекты (типа обратного эффекта Фарадея и Коттона-Муттона), проявляющиеся в наведенной намагниченности в присутствии циркулярно поляризованного излучения. Эти эффекты связаны со сверхбыстрой записью информации за счет сверхбыстрой переполаризации образцов с возникновением устойчивых доменов. Для сравнения - характерные времена записи информации за счет переполаризации в магнитном поле порядка наносекунд, поскольку динамика доменов определяется уравнением Ландау-Лифшица:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma [\vec{H}_{eff}, \vec{M}], \quad (1.116)$$

где  $H_{eff}$  - эффективное поле,  $\gamma$  - гиромагнитное отношение. Напротив, в случае оптической переполаризации доменов динамика определяется обменным взаимодействием, поэтому может достигать времен порядка фемтосекунд. Пример эксперимента по лазерному возбуждению прецессии намагниченности за счет обратного эффекта Фарадея, т.е. возбуждению магнонов, приведен на рис.28 [10]. В зависимости от направления поляризации лазерных импульсов (право- или левоциркулярная поляризация) меняется фаза спиновых волн, т.е. возможно управление в том числе фазой волн намагниченности.

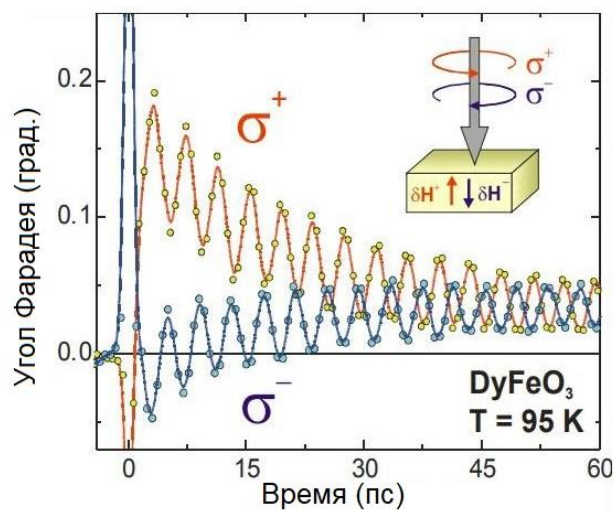


Рис. 28. Временная динамика поворота плоскости поляризации пробных импульсов



## Задачи и вопросы к главе 1

1. Для исследования комбинационного рассеяния в кристалле ниобата лития выбрана геометрия  $y(z,z)x$ . Изобразите схему эксперимента с указанием ориентаций волновых векторов и поляризаций накачки и сигнала относительно кристаллографических осей кристалла.

2. В чем состоит принципиальная разница между методом смещения и ударным методом возбуждения когерентных фононов?

3. Во сколько раз изменится спектральная яркость сигнального излучения в процессе рассеяния света на равновесных фононных поляритонах с частотой 1 ТГц при охлаждении кристалла от комнатной температуры до 10 К?

4. Дисперсия диэлектрической проницаемости ионных кристаллов в видимом и среднем диапазоне может быть описана ф-лой Сельмейера:

$$\varepsilon'(\lambda) = A_{UV} + \frac{A_{iel}}{\lambda_{iel}^{-2} - \lambda^{-2}} - A_{ph}\lambda^2. \quad \text{Качественно изобразите спектры}$$

рассеяния  $\omega_s(\theta_s)$  света на поляритонах и спектры СПР в двух кристаллах с близким химическим составом, но отличающимися коэффициентами: а)  $A_{ph}$  в 2 раза; б)  $A_{iel}$  в 2 раза.

5. Опишите принципиальную схему по наблюдению КАРС на поляритонах.

6. Найдите эффективную массу магнонов  $m^*(p)$  в одномерной ферромагнитной цепочке атомов. Постройте график зависимости  $m^*(p)$  в пределах зоны Бриллюэна.

7. Опишите принципиальную схему по наблюдению прецессии намагниченности в ферромагнетике при облучении фемтосекундными лазерными импульсами.

8. Дисперсия диэлектрической проницаемости для экситонных поляритонов может быть описана функцией:  $\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{8\pi N e^2}{m(\omega_{ex}^2(k) - \omega^2)}$ , где

$$\omega_{ex}(k) = \frac{\hbar k^2}{2m} + \omega_{ex}, \quad m \text{ и } e - \text{ масса и заряд электрона, } N - \text{ число ионов одного}$$

знака в двухатомной решетке,  $\omega_{ex}$  - частота экситона. Вычислите частоту **продольного экситона**  $\omega_L$  при  $k=0$ . Как изменится ширина запрещенной экситон-поляритонной зоны, если  $N$  увеличить в два раза?

## Глава 2. Спектроскопия фермионных возбуждений

### 2.1 Диэлектрическая функция полупроводника, сингулярности Ван Хофа

Для вычисления диэлектрической проницаемости полупроводника воспользуемся теорией возмущений. Невозмущенный одноэлектронный гамильтониан можно записать в виде:

$$H_0 = \frac{p^2}{2m} + V(r), \quad (2.1)$$

где  $V(r)$  некоторое среднее внутрикристаллическое поле, в котором находится электрон. При приложении внешнего электромагнитного поля с векторным потенциалом  $A$  и выборе кулоновской калибровки  $\nabla \cdot \vec{A} = 0$ ,  $\Phi = 0$ , гамильтониан преобразуется к виду:

$$H_0 = \frac{1}{2m} \left( \vec{p} + \frac{e\vec{A}}{c} \right)^2 + V(r). \quad (2.2)$$

Перепишем эту формулу в виде:

$$H_0 = \frac{1}{2m} \left( \vec{p} + \frac{e\vec{A}}{c} \right)^2 = \frac{p^2}{2m} + \frac{e}{2mc} \vec{A} \vec{p} + \frac{e}{2mc} \vec{p} \vec{A} + \frac{e^2}{4m^2 c^2}. \quad (2.3)$$

Отбрасывая последний член в силу его малости получаем, что электрон-излучательное взаимодействие в дипольном приближении выглядит следующим образом:

$$H_{eR} = \frac{e}{mc} \vec{A} \vec{p}. \quad (2.4)$$

В другой записи  $H_{eR} = -e\vec{r}\vec{E}$ . Далее, считая вектор-потенциал малым, мы можем применить теорию возмущений и найти волновые функции, соответствующие состояниям электрона в зоне проводимости  $|c\rangle$  и в валентной зоне  $|v\rangle$ . А затем с использованием золотого правила Ферми

$\Pi = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle c | H_{eR} | v \rangle|^2 \rho(c)$  рассчитать вероятность перехода между зонами и потери мощности при таких процессах. Потери мощности согласно закону Бугера-Ламберта-Бера связаны с мнимой частью диэлектрической проницаемости  $\varepsilon''(\omega)$ , что позволит нам ее найти. И на заключительном шаге, применив известное преобразование Крамерса-Кронига, мы найдем действительную часть диэлектрической проницаемости  $\varepsilon'(\omega)$ .

Представим падающее поле в виде:  $E(r, t) = E \cdot e^{i(qr - \omega t)} + \text{к.с.}$

Следовательно, вектор-потенциал будет равен:  $A(r, t) = -\frac{E}{2q} \cdot e^{i(qr - \omega t)} + \text{к.с.}$

Блоховские волновые функции электрона в зоне проводимости и в

валентной, соответственно, равны:  $|c\rangle \propto u_c e^{ik_c r} e^{i\frac{E_c t}{\hbar}}$ ,  $|v\rangle \propto u_v e^{ik_v r} e^{i\frac{E_v t}{\hbar}}$ . Вычисляя  $\langle c|H_{eR}|v\rangle$  находим, что интегрирование по времени дает:

$$\int H_{eR} e^{i\frac{E_c t}{\hbar}} e^{-i\omega t} e^{-i\frac{E_v t}{\hbar}} dt \propto \delta(E_c(k_c) - E_v(k_v) - \hbar\omega). \quad \text{Таким образом,}$$

$$|\langle c|H_{eR}|v\rangle|^2 = \frac{E^2}{4q^2} \left| \int u_{c,k_c}^* e^{i(\vec{q}-\vec{k}_c)\vec{r}} (\vec{e}\vec{p}) u_{v,k_v} e^{i\vec{k}_v\vec{r}} dr \right|^2 \delta(E_c(k_c) - E_v(k_v) - \hbar\omega).$$

Поскольку в процессе поглощения света электронами выполняется закон сохранения импульса  $k_v + q = k_c$ , и волновые функции можно разложить в ряд Тейлора по малым  $q$ :  $u_{c,k_v+q} = u_{c,k_v} + q\nabla_k u_{c,k_v}$ . Функции Блоха периодические, интегрирование по всему объёму кристалла можно заменить интегрированием по элементарной ячейке. Отбрасывая квадрупольный член пропорциональный  $q$ , для полной вероятности переходов получаем:

$$\Pi = \frac{2\pi}{\hbar} \left( \frac{e}{m\omega} \right)^2 \left| \frac{E(\omega)}{2} \right|^2 \sum_k |P_{cv}|^2 \delta(E_c(k) - E_v(k) - \hbar\omega) \quad (2.5)$$

где матричный элемент перехода  $|P_{cv}|^2 = |\langle c|\vec{e}\vec{p}|v\rangle|^2 = \left| \int u_{c,k_c}^* (\vec{e}\vec{p}) u_{v,k_v} dr \right|^2$ .

Дифференциал потерь интенсивности связан с полной вероятностью перехода как  $dI = \Pi \cdot \hbar\omega$ . Вычисляя производную по времени, находим:

$$-\frac{dI}{dt} = -\left( \frac{dI}{dx} \right) \left( \frac{dx}{dt} \right) = (\alpha I) \cdot (cn) = \left| \alpha = \frac{\omega \varepsilon''}{c\sqrt{\varepsilon'}} \right| = \frac{\omega I}{n^2} \varepsilon'' = \left| I = \frac{n^2}{8\pi} |E(\omega)|^2 \right|.$$

Следовательно,

$$-\frac{dI}{dt} = \frac{\omega n^2 \varepsilon''}{8\pi n^2} |E(\omega)|^2 = \frac{2\pi}{\hbar} \left( \frac{e^2}{m\omega} \right)^2 \left| \frac{E(\omega)}{2} \right|^2 \sum_k |P_{cv}|^2 \delta(E_c(k) - E_v(k) - \hbar\omega) \hbar\omega.$$

Таким образом, мнимая часть диэлектрической проницаемости равна:

$$\varepsilon''(\omega) = \left( \frac{2\pi e}{m\omega} \right)^2 \sum_k |P_{cv}|^2 \delta(E_c(k) - E_v(k) - \hbar\omega). \quad (2.6)$$

Действительная часть легко находится через преобразование Крамерса-

Кронига  $\varepsilon'(\omega) = 1 + \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\varepsilon''(x)}{x - \omega} dx$ :

$$\varepsilon'(\omega) = 1 + \frac{4\pi e^2}{m} \sum_k \frac{2|P_{cv}|^2}{m\hbar\omega_{cv}} \frac{1}{\omega_{cv}^2 - \omega^2}. \quad (2.7)$$

Если ввести обозначение  $f_{cv} \equiv \frac{2|P_{cv}|^2}{m\hbar\omega_{cv}}$  - по смыслу, силу осциллятора

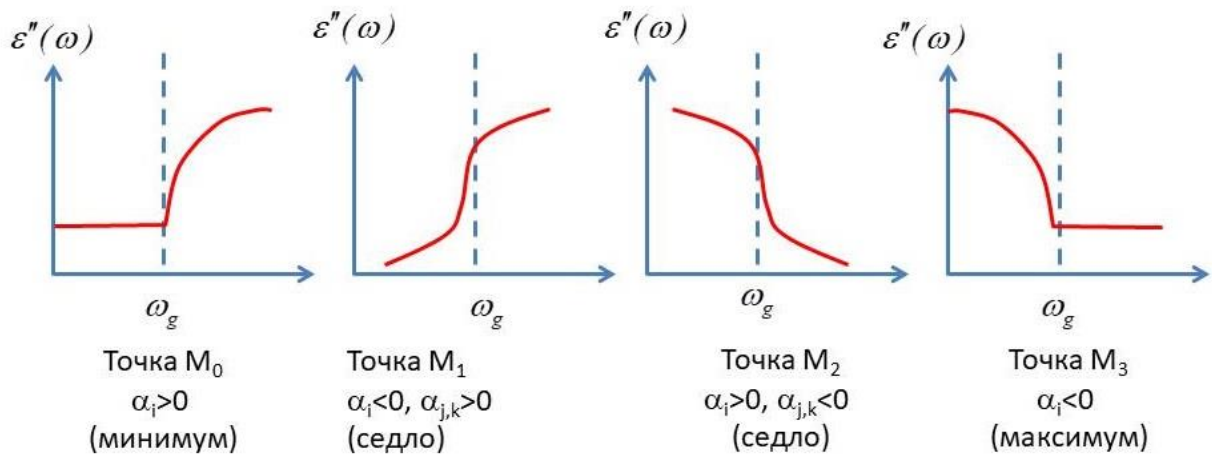
перехода, то выражение для действительной части диэлектрической проницаемости принимает хорошо известный вид, совпадающий с другими осцилляторными моделями (например, для поляритонов):

$$\varepsilon'(\omega) = 1 + \frac{4\pi e^2}{m} \sum_k \frac{f_{cv}(k)}{\omega_{cv}^2 - \omega^2}. \quad (2.8)$$

Итак, мы получили выражение для диэлектрической функции полупроводника, связывающей напряженность падающего поля и наведенную линейную поляризацию. Введем комбинированную плотность состояний для валентной зоны и зоны проводимости как  $D(E_{cv}) = \frac{1}{4\pi^3} \int \frac{dS_k}{|\nabla_k E_{cv}|}$ . Тогда мы можем перейти от суммирования к интегрированию  $\sum_k \rightarrow \int D(E_{cv}) dE_{cv}$ , и для диэлектрической функции получим:

$$\varepsilon'(\omega) \propto \int \frac{f_{cv}(k)}{E_{cv}^2(k) - \hbar^2 \omega^2} D(E_{cv}) dE_{cv}. \quad (2.9)$$

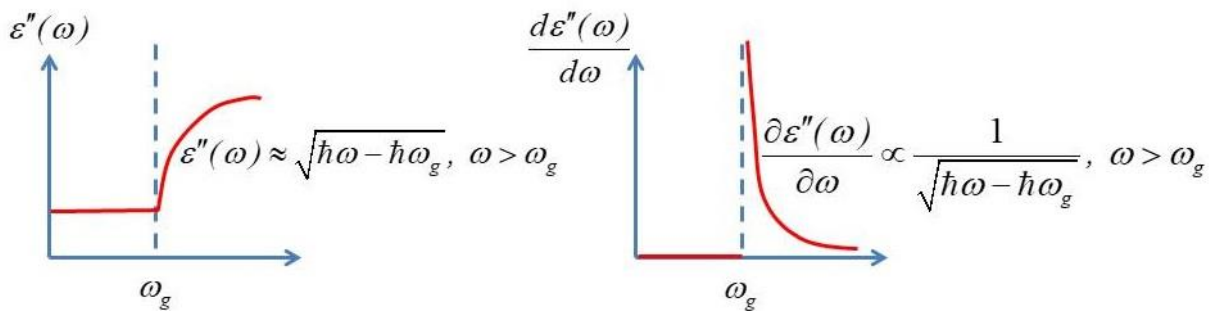
Функция  $D(E_{cv})$  - источник сингулярностей, т.к. возможно  $|\nabla_k E_{cv}| = 0$ . Это приводит к появлению в спектре поглощения электронов особых точек, называемых сингулярностями ван Хофа. Разложим энергию вблизи особой точки:  $E(k) = E(0) + \alpha_1 k_1^2 + \alpha_2 k_2^2 + \alpha_3 k_3^2 + \dots$ . Отсюда видно, что существует четыре типа сингулярностей в зависимости от типа экстремума (минимум, максимум, и две седловые точки). Схематически эти сингулярности изображены на рис.29.



**Рис. 29.** Типы сингулярностей Ван Хофа.

## 2.2 Модуляционная спектроскопия. Электроотражение, эффект Франца-Келдыша

Эти сингулярности отражаются в спектрах отражения и поглощения, поскольку они связаны с изменениями мнимой части диэлектрической проницаемости. Однако в реальных экспериментах они малы по амплитуде, поэтому особые точки видно слабо. Рассмотрим поведение мнимой части диэлектрической проницаемости вблизи особой точки типа 1. Сама зависимость хорошо описывается корневой законом вблизи края поглощения (Рис.30). Но производная  $\frac{d\varepsilon''(\omega)}{d\omega} \propto \frac{1}{\sqrt{\hbar\omega - \hbar\omega_g}}$ , поэтому вблизи частоты края поглощения наблюдается разрыв. Таким образом, метод наблюдения сингулярностей Ван Хофа должен строиться на измерении производной диэлектрической проницаемости при варьировании какой-нибудь переменной (температура, длина волны и т.д.)



**Рис. 30.** Поведение мнимой части диэлектрической проницаемости и ее производной вблизи сингулярности Ван Хофа типа 1.

Основная идея методов, объединяемых в класс *модуляционной спектроскопии*, состоит в измерении производной коэффициента отражения по некоторому модулируемому параметру. Пусть коэффициент отражения можно представить в виде суммы некоторого постоянного фона  $R_0$ , слабо зависящего от частоты, и небольшой добавки  $\rho(\omega, \xi)$ , сильно меняющейся с частотой  $\omega$  и зависящей также от параметра  $\xi$ .

$$R(\omega, \xi) = R_0 + \rho(\omega, \xi), \quad \rho(\omega, \xi) \ll R_0 \quad (2.10)$$

Тогда производную коэффициента отражения можно записать в виде:

$$\frac{dR(\omega, \xi)}{d\xi} = \frac{d(R_0 + \rho(\omega, \xi))}{d\xi} = \frac{\partial \rho(\omega, \xi)}{\partial \omega} \frac{\partial \omega}{\partial \xi} \quad (2.11)$$

При этом следует учитывать, падающее поле с интенсивностью  $I_0$  также может быть источником ложных максимумов. Действительно, отраженное от полупроводника поле имеет интенсивность  $I = I_0 R$ . Если мы возьмем

производную по частоте, то получим:  $\frac{dI}{d\omega} = I_0 \frac{dR}{d\omega} + R \frac{dI_0}{d\omega}$ . Второй член не связан с особенностями отклика полупроводника, а только с частотным спектром источника, поэтому должен быть исключен из рассмотрения.

Возможны разные способы модуляции коэффициента отражения. К ним относятся  $\lambda$ -модуляция (частотная модуляция), электромодуляция (напряженности поля), термомодуляция (температуры),  $\varphi$ -модуляция (поляризации излучения) и т.п. Пусть, например, модулируется длина волны излучения по гармоническому закону :

$$\lambda = \lambda_0 + \Delta\lambda \cdot \cos(\Omega t). \quad (2.12)$$

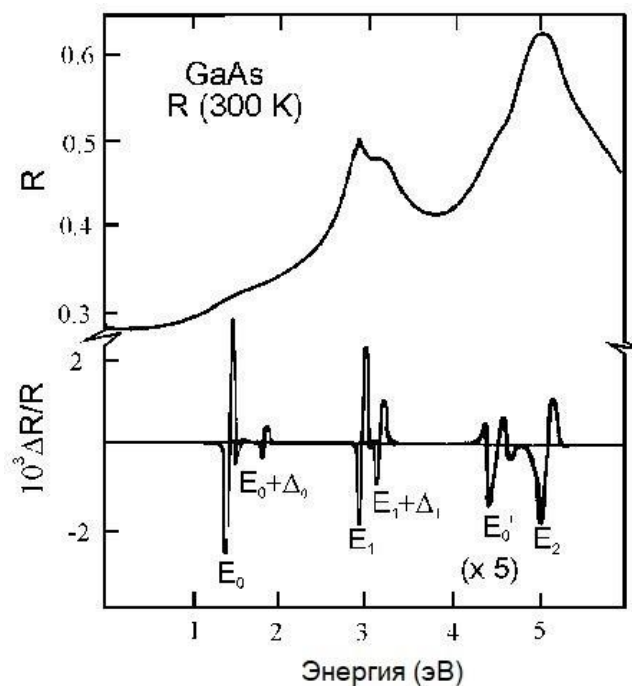
Тогда интенсивность излучения будет равна:

$$I(\lambda) = I_0 R(\lambda) = I_0 \left\{ R(\lambda_0) + \frac{dR}{d\lambda} \Delta\lambda \cdot \cos(\Omega t) + \frac{1}{2} \frac{d^2R}{d\lambda^2} (\Delta\lambda)^2 \cdot \cos^2(\Omega t) + \dots \right\}. \quad (2.13)$$

В результате после преобразований получим:

$$I(\lambda) = I_0 \left\{ R(\lambda_0) + \frac{1}{4} \frac{d^2R}{d\lambda^2} (\Delta\lambda)^2 + \frac{dR}{d\lambda} \Delta\lambda \cdot \cos(\Omega t) + \frac{1}{4} \frac{d^2R}{d\lambda^2} (\Delta\lambda)^2 \cdot \cos(2\Omega t) + \dots \right\} \quad (2.14)$$

Видно, что появляются два осциллирующих вклада на основной частоте модуляции  $\Omega$  и ее второй гармонике  $2\Omega$ . Регистрируя эти осциллирующие вклады на фотодетектор с последующим использованием синхронного детектора (Lock-In Amplifier) для обработки сигнала, можно легко выделить и зарегистрировать слабые вклады типа сингулярностей Ван Хофа (рис. 31).



**Рис. 31.** Пример спектра отражения арсенида галлия вблизи края поглощения и сингулярности Ван Хофа, измеренные методом модуляционной спектроскопии

Перейдем к рассмотрению Эффекта Франца-Келдыша. Он описывает поведение полупроводника в постоянном электрическом поле, проявляется в сдвиге полосы поглощения, а также осцилляциях диэлектрической проницаемости вблизи края поглощения. Рассмотрим диэлектрическую проницаемость полупроводника вблизи критической точки первого типа. Часть гамильтониана, описывающее взаимодействие с внешним полем, запишем, используя дипольное приближение  $H_E = -e\tilde{E}z$ . Пусть напряженность поля направлена вдоль оси  $z$ , тогда уравнение Шредингера примет вид:

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_r - e\tilde{E}z - E_r \right) \varphi(r) = 0, \quad (2.15)$$

где  $\mu$  приведенная масса. Волновую функцию можно факторизовать:  $\varphi(r) = \varphi(x, y)\varphi(z)$ , часть зависящая от поперечных координат имеет вид

$$\varphi(x, y) = \frac{1}{\sqrt{N}} e^{ik_x x + ik_y y}, \text{ а энергетический спектр } - E = E_0 + \frac{\hbar^2(k_x^2 + k_y^2)}{2\mu} + E_z.$$

Таким образом, задача сводится к решению уравнения:

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{d^2}{dz^2} - e\tilde{E}z - E_z \right) \varphi(z) = 0. \quad (2.16)$$

Введем безразмерную переменную  $\xi \equiv \frac{E_z + e\tilde{E}z}{\Theta}$ , где  $\Theta = \sqrt[3]{\frac{e^2 \tilde{E}^2 \hbar^2}{2\mu}}$  - характерный масштаб энергии, также называемой электрооптической энергией. Поделим уравнение на  $\Theta$ :

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2\mu \Theta} \frac{d^2}{dz^2} - \frac{e\tilde{E}z}{\Theta} - \frac{E_z}{\Theta} \right) \varphi(z) = 0, \quad (2.17)$$

и с учетом замены переменных, получим:

$$\frac{d^2 \varphi(\xi)}{d\xi^2} = -2\xi \varphi(\xi). \quad (2.18)$$

Уравнение (2.18) называется уравнением Эйри, его решения – функции Эйри  $\varphi(\xi) = \frac{\sqrt{e\tilde{E}}}{\Theta} Ai(\xi)$  (Рис.32).

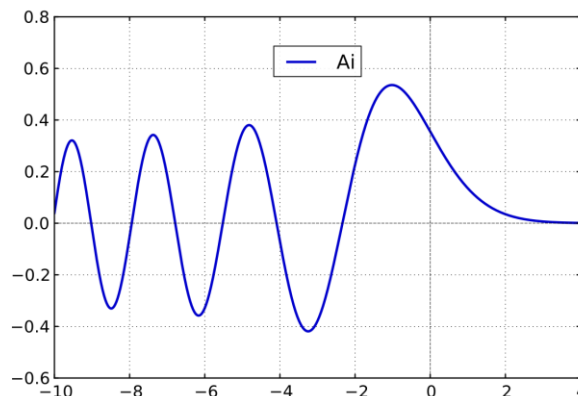


Рис. 32. Функция Эйри.

Поскольку известна ВФ, то можно вычислить дипольный матричный элемент  $|P_{vc}|^2$ , а также рассчитать плотность состояний вблизи критической точки  $M_0$ . И с помощью (2.6) рассчитать приращение мнимой части диэлектрической проницаемости:

$$\Delta\varepsilon''(\omega, \tilde{E}) = \frac{2e^2(2\mu)^{3/2}P_{cv}\sqrt{\Theta}}{m^2\hbar E^2} F\left(\frac{E_0 - E}{\Theta}\right)$$

$$F(\xi) = \pi[Ai'^2(\xi) - \xi Ai^2(\xi)] - \sqrt{-\xi}H(-\xi), \quad (2.19)$$

$$\xi = \frac{E_0 - E}{\Theta}$$

где  $F(\xi)$  - так называемая электрооптическая функция, состоящая из функций Эйри и Хэвисайда.

В результате в эксперименте помимо незначительного сдвига по частоте края поглощения, определяемого величиной электрооптической энергии (Рис.33а), также видны осцилляции поглощения, наиболее заметные при измерении методом модуляционной спектроскопии (Рис.33б).

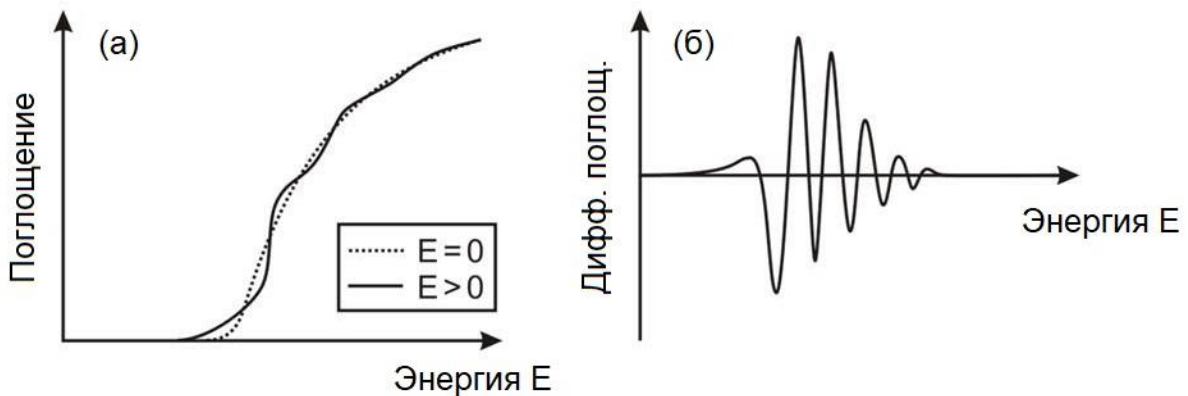


Рис. 33. Эффект Франца-Келдыша.



## 2.3 Терагерцовые фотопроводящие антенны

В настоящее время терагерцовое волновое излучение широко используется в различных областях, связанных с фармакологией, медициной, системами безопасности и передачей данных. Поэтому ведется поиск наиболее эффективных методов генерации и детектирования терагерцового излучения. В этом отношении фотопроводящие полупроводниковые антенны (ФПА) зарекомендовали себя как гибкие и эффективные ТГц-устройства для использования в терагерцовой спектроскопии с временным разрешением (ТСВР). Благодаря доступности экономичных и надежных компонентов в телекоммуникационной отрасли, современные терагерцовые системы часто используют оптическое возбуждение на длине волны 1550 нм фемтосекундными импульсами волоконного лазера  $\text{Er}^{3+}$ . В последнее время существенное улучшение характеристик этих устройств было достигнуто, главным образом, с помощью инструментов нанотехнологий, таких как плазмонные концентраторы света, плазмонные контактные электроды, оптические матрицы наноантенн или оптические нанорезонаторы, а также полупроводниковые наногетероструктуры. Быстрый захват фотогенерированных электронов и рекомбинация с дырками через антисайт-центры приводят к субпикосекундному времени жизни носителей в фотопроводящих полупроводниковых материалах.

Рассмотрим процесс генерации терагерцового излучения ФПА на основе полупроводниковой пленки [11]. Источником ТГц излучения является быстрый импульс тока, возникающий в результате подачи на систему смещающего постоянного напряжения  $U_b$ . В результате электронный фототок можно записать в виде:

$$j(t) = n(t)ev_d(t) \quad (2.20)$$

где  $v_d(t)$  – дрейфовая скорость электронов (скорость приобретаемая электронами под действием внешнего электрического поля). Выражение для временной динамики концентрации носителей заряда имеет вид:

$$\frac{dn(t)}{dt} = -\frac{n(t)}{\tau_c} + G(t) \quad (2.21)$$

Время захвата носителей ловушками определяется следующей формулой Шокли:

$$\tau_c = (N_{As^+}v_{th}\sigma_{As^+})^{-1} \quad (2.22)$$

где  $\sigma_{As^+}$  – сечение захвата электронов ловушками (например, дефектными атомами мышьяка),  $N_{As^+}$  – концентрация ловушек в кристалле,  $v_{th}$  – тепловая скорость электронов. Далее запишем уравнение динамики для дрейфовой скорости электрона:

$$\frac{dv_d(t)}{dt} = -\frac{v_d(t)}{\tau_s} + \frac{e}{m_e^*} (E_b - \frac{P_{sc}}{\eta\varepsilon}) \quad (2.23)$$

где  $\tau_s$  – время релаксации импульса носителей заряда. Время релаксации импульса характеризует время потери направленной составляющей

импульса и по порядку величины равно времени свободного пробега электрона между столкновениями. Данную характеристику можно оценить в следующем виде:

$$\tau_s = \frac{\mu m_e^*}{e} \quad (2.24)$$

$m_e^*$  – эффективная масса фотовозбужденных электронов,  $P_{sc}$  – экранирующая поляризация, возникающая в результате разделения электронов и дырок, во внешнем поле, и возникновения за счет разделения дипольного момента направленного против внешнего поля и тормозящего фотовозбужденные электроны. Величина поляризации увеличивается при протекании тока и уменьшается за счет рекомбинации электронно-дырочных пар. Запишем уравнение для изменения экранирующей поляризации:

$$\frac{dP_{sc}(t)}{dt} = -\frac{P_{sc}(t)}{\tau_r} + j(t) \quad (2.25)$$

где  $\tau_r$  – характерное время рекомбинации электронно-дырочной пары. Выражения (2.21), (2.23), (2.25) образуют систему нелинейных дифференциальных уравнений, решением которой является плотность тока носителей. Таким образом, зная фототок, можно численно рассчитать значение ТГц поля в приближении дальней зоны:

$$E_{THz}(\mathbf{R}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial A(\mathbf{R}, t)}{\partial t} = \frac{1}{c} \iiint \frac{j(\mathbf{r}, t)}{R} dV = \frac{Se}{4\pi c^2 R} \frac{\partial j(t)}{\partial t} \quad (2.26)$$

где  $R$  – расстояние от генератора до точки наблюдения.

Принципиальная схема ФПА приведена на рис. 34. На выходе антенна излучает пикосекундный импульс. Временная зависимость поля и его спектр изображены на рис. 35. Поскольку спектры подобных антенн лежат в терагерцовом диапазоне, в котором находится очень много резонансов твердого тела (фононы, магноны, поляритоны, топологические электронные состояния), ФПА – как излучающие, так и приемные – являются очень мощными инструментами современной спектроскопии твердого тела.

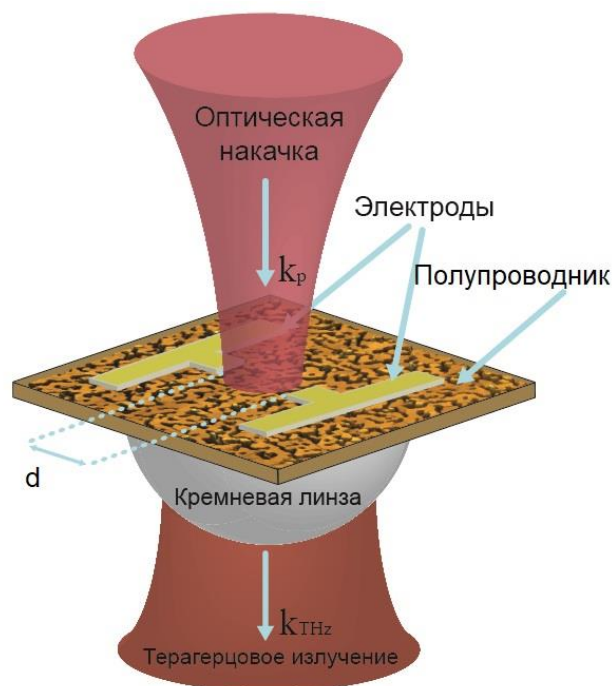


Рис. 34. Принципиальная схема терагерцовой ФПА.

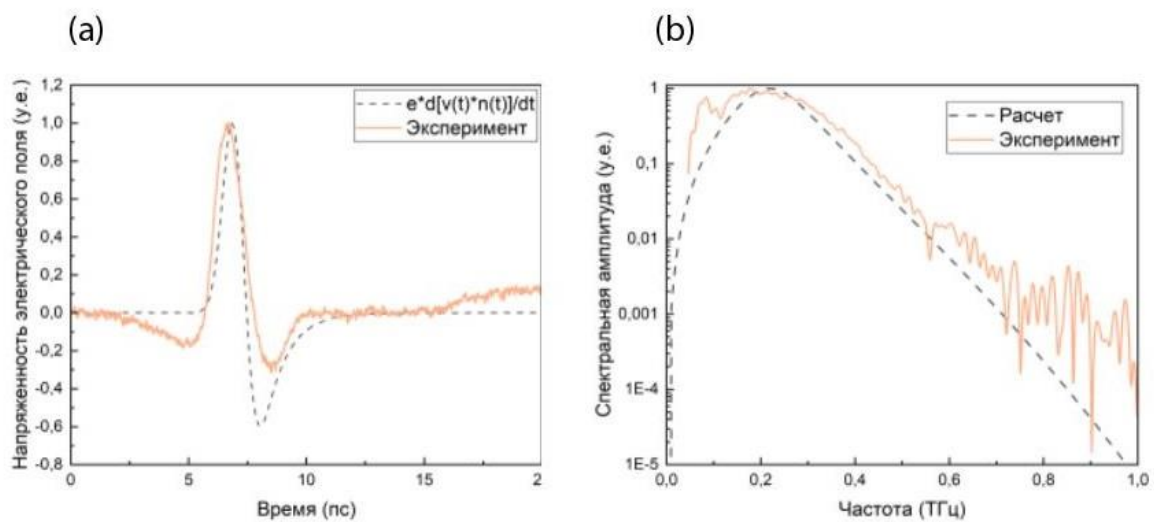


Рис. 35. Терагерцовый импульс электромагнитного поля ФПА и его спектр.

## 2.4 Электрон-фононное взаимодействие. Поляроны большого и малого радиуса. Спектры поглощения. Кинетика внутризонного поглощения света поляронами малого радиуса.

### Краткие сведения о механизме образования поляронов

Задача о поляронах связана с задачей о поведении электрона проводимости (или дырки) в полярном кристалле. Электрон поляризует ионную решетку в месте своего нахождения и, тем самым, искажает ее. Наведенная поляризация, в свою очередь, действует на электрон и понижает его энергию. Электрон вместе с самосогласованным полем поляризации кристаллической решетки называют **поляроном**. Его эффективная масса  $m_{eff}^{pol}$  больше эффективной массы блоховского электрона  $m_{eff}^{el}$ . Возникновение поляронов обусловлено электрон-фононным взаимодействием.

Впервые гипотеза о существовании автолокализованных электронных состояний была выдвинута Ландау в 1933 году. Концепция полярона была введена Пекаром (полярон большого радиуса). Прыжковая проводимость поляронов малого радиуса (хоппинг) впервые была рассмотрена в работах Холстейна в 1959 г., а также Ямашиты и Куросавы в 1958 г. В настоящее время существует несколько теорий поляронов, соответствующих различной силе электрон-фононного взаимодействия.

Поляронные возбуждения принято классифицировать на поляроны большого и малого радиуса. Размер полярона определяется протяженностью искаженной области решетки, созданной избыточным электроном (рис.36). В случае поляронов большого радиуса, этот размер гораздо больше постоянной решетки. В этом случае среду удобно рассматривать как непрерывный колеблющийся диэлектрик.

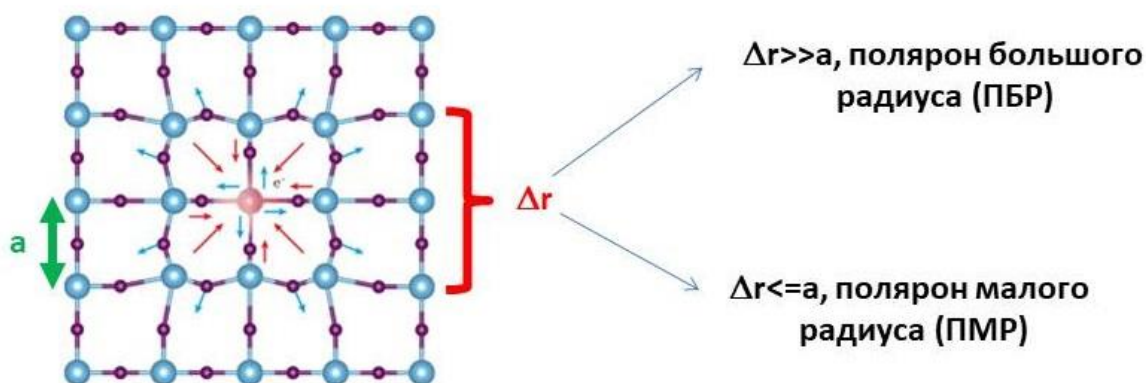


Рис. 36. Схематическое образование полярона

Во втором случае, когда размер области деформации мал (случай поляронов малого радиуса), в теоретическом рассмотрении учитывают

дискретность решетки. В этом случае, корректнее говорить о локализации электрона на отдельном ионе решетки.

В обоих случаях – поляронов большого и малого радиуса – математическое рассмотрение основывается на двух разных формах полного гамильтониана:

$$H = H_{el} + H_{lat} + H_{el+lat} \quad (2.27)$$

где  $H_{el}$  – электронная часть гамильтониана,  $H_{lat}$  – сумма кинетической и потенциальной энергий ионов решетки,  $H_{el+lat}$  – электрон-фононное взаимодействие, зависящее от координат электрона, смещений решетки и деформации ионов. Также отметим, что в гамильтониан (2.27) неявно входит электрон-электронное взаимодействие, приводящее к притяжению электронов за счет обмена виртуальными фононами. Это взаимодействие, в частности, ответственно за образование биполяронов – пар электронов, локализованных на соседних узлах решетки (биполяроны Гайтлер-Лондона).

Для того, чтобы оценить размер полярона, рассмотрим процесс рассеяния электрона с образованием оптического продольного фонона (рис.37).

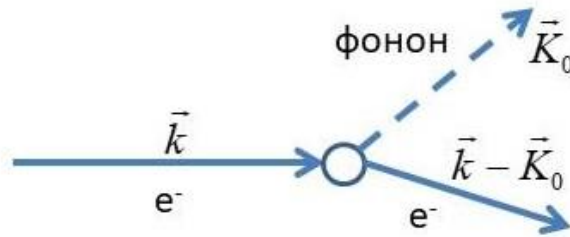


Рис. 37. К оценке радиуса полярона

Пусть  $\omega_0$  частота фонона. Тогда за характерное время  $\Delta t = \frac{2\pi}{\omega_0}$  электрон

проходит расстояние  $s \approx \Delta t \cdot v = \frac{2\pi}{\omega_0} \cdot \frac{\hbar k_0}{m^*}$ . Длина волны фононов  $\lambda_0$ ,

эффективно взаимодействующих с электроном, очевидно, должна быть

больше этого расстояния, таким образом:  $\lambda_0 \geq \frac{2\pi}{\omega_0} \cdot \frac{\hbar k_0}{m^*}$  или  $k_0 \leq \sqrt{\frac{m^* \omega_0}{\hbar}}$ .

Тогда из соотношения неопределенностей  $\Delta r \Delta k \approx \Delta r K_0 \approx 1$  получаем оценку для радиуса полярона:

$$\Delta r \approx \sqrt{\frac{\hbar}{m^* \omega_0}}. \quad (2.28)$$

Также очень важным параметром для поляронных теорий является константа электрон-фононного взаимодействия, введенная Фрелихом.

Чтобы найти ее, оценим энергию поляризацию решетки за счет ее искажения избыточным электроном. Для этого представим полную поляризацию в виде суммы двух слагаемых: электронного и ионного вкладов  $P = \vec{P}_e + \vec{P}_{ion}$ . Поскольку индукция равна:

$$\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P} = \varepsilon_0\vec{E}, \quad (2.29)$$

то поляризацию среды можно записать в виде:

$$\vec{P} = \frac{1}{4\pi}(\vec{D} - \vec{E}) = \frac{1}{4\pi}\left(\vec{D} - \frac{1}{\varepsilon_0}\vec{D}\right) = \frac{\varepsilon_0 - 1}{4\pi\varepsilon_0}\vec{D}, \quad (2.30)$$

где  $\varepsilon_0$ - статическая диэлектрическая проницаемость. Электронную часть поляризации можно представить в аналогичном виде, но через диэлектрическую проницаемость на бесконечно удаленных частотах вдали от фоновых резонансов среды:  $\vec{P}_e = \frac{\varepsilon_\infty - 1}{4\pi\varepsilon_\infty}\vec{D}$ . Тогда для ионной части

получаем:

$$\vec{P}_{ion} = \frac{\varepsilon_0 - 1}{4\pi\varepsilon_0}\vec{D} - \frac{\varepsilon_\infty - 1}{4\pi\varepsilon_\infty}\vec{D} = \frac{\vec{D}}{4\pi}\left(\frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_0}\right) = \frac{\vec{D}}{4\pi\varepsilon^*}, \quad (2.31)$$

где  $\frac{1}{\varepsilon^*} = \frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_0}$ . Посчитаем энергию поляризации решетки избыточным электроном:

$$E_b = -\int \frac{\vec{P}_{ion}\vec{D}}{2} dV = \frac{1}{4\pi\varepsilon^*} \int D^2 dV = -\frac{e^2}{4\pi\varepsilon^*} \int_{r_p}^{\infty} \frac{dV}{r^4} = -\frac{e^2}{4\pi\varepsilon^*} \int_{r_p}^{\infty} \frac{4\pi r^2 dr}{r^4} = -\frac{e^2}{\varepsilon^* r_p} \quad (2.32)$$

Тогда константу электрон-фононного взаимодействия можно ввести как число квантов (фононов), укладывающихся в поляронный сдвиг:

$$\lambda_{eph} = \frac{E_p}{\hbar\omega_0} = \frac{1}{\hbar\omega_0} \frac{e^2}{\varepsilon^* r_p} \quad (2.33)$$

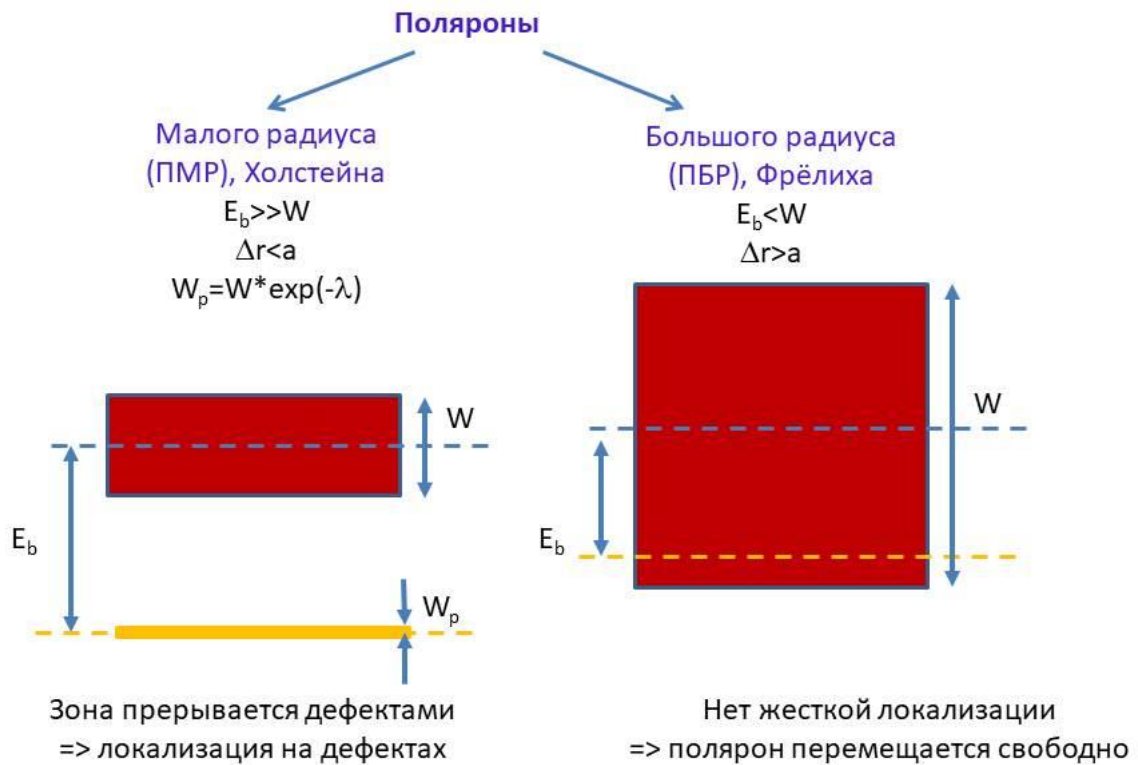
или  $\lambda_{eph} = \frac{e^2}{\hbar\varepsilon^*} \sqrt{\frac{m^*}{\hbar\omega_0}}$ . Чем меньше радиус полярона, тем больше константа

электрон-фононного взаимодействия, и наоборот.

Основная трудность поляронных теорий состоит в том, что электрон-решеточное взаимодействие слишком сильное, поэтому должно учитываться уже в нулевом порядке теории возмущений. Для многих ионных кристаллов  $\lambda_{eph} > 1$ . В этом случае появляются поляроны. Вопрос о том, какой случай (поляроны большого или малого радиуса) реализуется в той или иной конкретной физической ситуации, решается исходя из энергетических соображений. Например, для кубических кристаллов ширина зоны проводимости порядка  $2zJ$ , где  $J$  - двухцентровый интеграл перекрытия,  $z$ -число ближайших соседних ионов. Критерий образования полярона малого радиуса (ПМР) в этом случае есть следующее условие [12]:

$$E_p > J\sqrt{6} \quad (2.34)$$

где  $E_p$  -поляронный сдвиг (сдвиг поляронной зоны относительно середины неперенормированной электронной зоны). Таким образом, ПМР могут существовать лишь в достаточно узкозонных кристаллах (*изначально узкие зоны*), но с сильным электрон-фононным взаимодействием. Для типичных полупроводников, к которым применима теория ПМР,  $E_p$  порядка 1 эВ. Схематически разные сценарии образования поляронов приведены на рис.38, исходя из ширины зоны проводимости и величины поляронного сдвига. Если в случае поляронов малого радиуса за счет понижения энергии на величину поляронного сдвига  $E_b$ , превышающего полуширину электронной зоны, можно говорить об отдельной поляронной подзоне (экспоненциально узкой, поэтому прерываемой дефектами). То в случае поляронов большого радиуса поляронная зона не выделяется из изначальной зоны проводимости и полярон свободно перемещается по всему кристаллу, не локализуясь на отдельных дефектах. В случае ПБР полярон перемещается вместе с областью деформации решетки, в то время как ПМР, фактически, осуществляет отдельные перескоки между узлами кристаллической решетки. Кинетические свойства поляронов малого радиуса очень нетривиальны. Вследствие того, что эффективная масса ПМР  $m_{eff}$  очень большая, поляронная подвижность крайне невелика ( $\mu \approx e\tau / m_{eff}$ ,  $\mu$  -подвижность,  $\tau$  – время релаксации). Из-за очень сильного взаимодействия с фононами характерные “длины свободного пробега” ПМР порядка постоянной решетки, поэтому обычная “зонная” модель переноса нарушается. В этом случае реализуется прыжковый механизм переноса (хоппинг). Прыжки ПМР могут активироваться фононами или фотонами.



**Рис.38.** Классификация поляронов

Вследствие электрон-фононного взаимодействия происходит перенормировка электронной зоны; поляронная зона сдвигается в сторону меньших энергий и очень сильно сужается по сравнению с *изначальной* электронной зоной  $\Delta E$ :

$$W_p = \Delta E \cdot \exp\left(-\frac{E_p}{\hbar\omega_0} \operatorname{cth}(\hbar\omega_0/2kT)\right) \quad (2.35)$$

$W_p$  - ширина поляронной зоны,  $\omega_0$  - характерная фононная частота. Вследствие трансляционной симметрии локализованное поляронное состояние квазистационарно. Время жизни этого состояния – время расплывания волнового пакета - порядка  $\hbar/\Delta E_p$ . Время между

последовательными прыжками  $\tau_{hop} \approx W^{-1} \approx \frac{1}{\omega_0 \cdot \exp(-E_a/kT)}$  [13] ( $W$  –

вероятность перескока; характерная величина  $\tau_{hop}$  порядка  $10^{-12}$  сек,  $E_a$  – энергия активации хоппинга - высота потенциального барьера для электрона). Следовательно, условие реализации хоппинга можно записать как:

$$\hbar/\Delta E_{pol} \approx W^{-1} \quad (2.36)$$



При не очень низких температурах обычно это условие выполняется.

Также следует отметить, что электрон-фононное взаимодействие, приводящее к перенормировке электронных спектров, должно приводить и к изменению фононных характеристик. Даже влияние *свободных* носителей на фононный спектр может быть довольно значительным. Например, при больших концентрациях  $n$  свободных электронов может проявляться динамическая экранировка, приводящая к сдвигу частот продольных фононов. При условии  $\omega_p = (4\pi n e^2 / m^* \epsilon_\infty)^{1/2} \gg \omega_0$  ( $\omega_p$  - плазменная частота) может иметь место радикальная перестройка колебательного спектра [14]. Однако в случае поляронов даже при малых их концентрациях возможно сильное изменение фононного спектра, поскольку за счет образования поляронов меняются не только равновесные положения ионов, но и силы связи между ними. Это может приводить к возникновению локальных решеточных колебаний [13].

## Взаимодействие поляронов с электромагнитным излучением и методы их оптической диагностики

### Поляроны малого радиуса

Вторично квантованный гамильтониан электронов и фононов в узельном представлении (для электронов) в отсутствии внешних полей можно записать в следующем виде:

$$H = \sum_{m,g} J(g) a_{m+g}^+ a_m + \sum_q \hbar \omega_q \left( b_q^+ b_q + \frac{1}{2} \right) - \sum_m a_{m+g}^+ a_m \sum_q \hbar \omega_q [U_m^*(q) b_q + U_m(q) b_q^+] \quad (2.37)$$

где  $m$ -векторный номер узла решетки,  $J(g)$  - обменный интеграл между узлами  $m$  и  $m+g$ , операторы  $a_i^+$  и  $a_i$ , соответственно, операторы рождения и уничтожения электрона на  $i$ -ом узле,  $b_q^+$  и  $b_q$  - фононные операторы,  $\omega_q$  - частота оптического фонона. Безразмерные величины  $U_m(q)$  - пропорциональны фрелиховской константе электрон-фононного взаимодействия и характеризуют смещение  $m$ -го узла, возникающее вследствие поляризации решетки электроном, находящемся на этом узле.

В простейшем случае, задачу о взаимодействии электронов с решеткой, приводящем к образованию ПМР, можно рассматривать, используя модельный двухузельный гамильтониан [15]:

$$H = \frac{p_m^2}{2M} + \frac{p_{m+g}^2}{2M} + \frac{M\omega_0^2 q_m^2}{2} + \frac{M\omega_0^2 q_{m+g}^2}{2} + \lambda_{eph} (q_m a_m^+ a_m + q_{m+g} a_{m+g}^+ a_{m+g}) \quad (2.38)$$

где  $M$  - масса ядра,  $\omega_0$  - частота фонона,  $p_i$  и  $q_i$  - импульс и смещение соответствующего узла решетки,  $\lambda_{eph}$  - константа электрон-фононного взаимодействия. Операторы  $a_i^+$  и  $a_i$ , соответственно, операторы рождения и уничтожения электрона на  $i$ -ом узле. Введем новые переменные:

$$\begin{aligned} q &= q_m - q_{m+g} \\ Q &= q_m + q_{m+g} \end{aligned} \quad (2.39)$$

Тогда часть гамильтониана, связанную с состояниями электрона, можно представить в следующем виде (член  $\propto Q(a_m^+ a_m + a_{m+g}^+ a_{m+g})$  опускаем, поскольку полное число электронов не меняется):

$$H = \frac{p^2}{2} + \frac{M\omega_0^2 q^2}{2} + \frac{\lambda_{eph} q}{2} (a_m^+ a_m - a_{m+g}^+ a_{m+g}) \quad (2.40)$$

где  $p$  и  $P$  - импульсы, канонически сопряженные с  $q$  и  $Q$ . Кривые эффективной потенциальной энергии ядер (конфигурационные кривые) представляются следующим образом:

$$U_m = \frac{M\omega_0^2}{4} (q + Q_0)^2 - E_a, \quad U_{m+g} = \frac{M\omega_0^2}{4} (q - Q_0)^2 - E_a \quad (2.41)$$

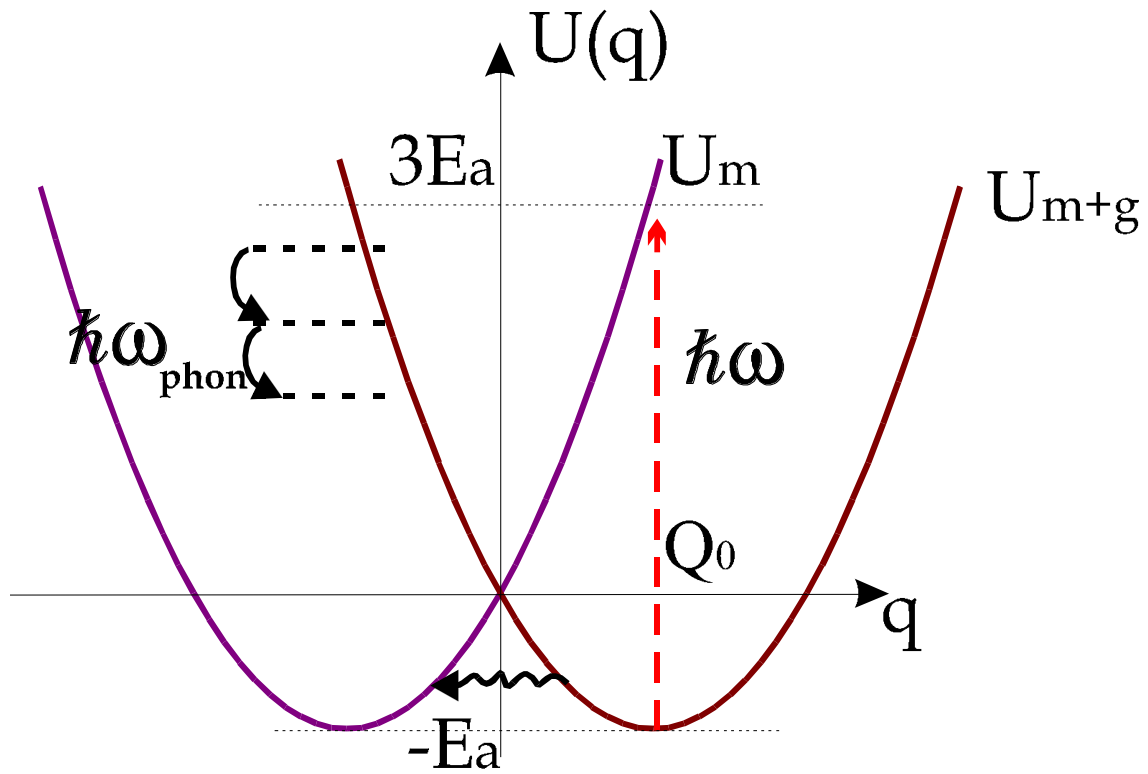
$$Q_0 = \frac{\lambda_{eph}}{M\omega_0^2}, \quad E_a = \frac{\lambda_{eph}^2}{4M\omega_0^2} \quad (2.42)$$

За счет смещения ядра, вблизи которого локализован электрон, получается выигрыш в энергии  $2E_a$  по отношению к энергии несмещенных ядер, т.к. суммарная потенциальная энергия в этом случае равна:

$$U = \frac{M\omega_0^2}{2} (q_m + \lambda_{eph}/m\omega_0^2)^2 - \lambda_{eph}^2/2m\omega_0^2 + \frac{M\omega_0^2 q_{m+g}}{2}. \text{ Величина } E_p=2E_a \text{ имеет}$$

смысл поляронного сдвига, возникающего вследствие поляризации решетки электроном,  $E_a$  - энергия термо-активации перескоков электрона.

Между адиабатическими электронными термами  $m$  и  $m+g$  под действием света возможны электронные переходы (рис.39). Согласно принципу Франка-Кондона, переходы осуществляются без изменения ядерной конфигурации. Фактически, происходят перескоки электрона с одного узла решетки на другой узел. Наиболее вероятны переходы при энергии фотонов  $2E_p$ . Энергия  $E_p$  требуется для того, чтобы "достать" электрон из изначальной поляронной ямы, и другая часть  $E_p$  необходима, чтобы поместить электрон на другой атом, где поляронная яма до этого отсутствовала. Также электрон может туннелировать сквозь барьер, образованный этими колебательными термами.



**Рис. 39.** Конфигурационные кривые для двухузельной модели образования ПМР

Все эти процессы дают вклад в поляронную проводимость кристалла. Релаксация возбужденного электрона осуществляется испусканием фононов.

В общем случае, из рассмотрения гамильтониана общего вида (2.37) следует, что на высоте  $2E_p$  находится континуум уровней, ширина которого определяется интегралом перекрытия  $J$  волновых функций электронов, находящихся на соседних узлах. При этом каждый вертикальный переход может происходить в любую точку континуума, что приводит к уширению спектра поглощения.

Рассмотрим оптические свойства поляронов малого радиуса. Величина коэффициента поглощения связана с действительной частью поляронной проводимости следующим соотношением:

$$\alpha(\omega) = \frac{4\pi}{nc} \operatorname{Re} \sigma(\omega) \quad (2.43)$$

где  $n$ -показатель преломления,  $\sigma(\omega)$  - проводимость кристалла. Таким образом, задача об определении оптических характеристик поляронов сводится к вычислению поляронной проводимости кристалла.

Фирсов с соавторами решили эту проблему исходя из формулы Кубо для вещественной части проводимости:

$$\operatorname{Re} \sigma(\omega) = \frac{1}{2V_0 \hbar \omega} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega t} [\langle j_x(t) j_x(0) \rangle - \langle j_x(0) j_x(t) \rangle] \quad (2.44)$$

где  $V_0$  – объем кристалла,  $\omega$  - внешняя частота,  $j_x(t)$  - оператор тока в представлении Гейзенберга. Прямой расчет вещественной части проводимости по этой формуле представляет большие математические трудности. Ланг и Фирсов предложили специальное каноническое преобразование, “одевающее электроны в «поляронную шубу». При этом, в теории появляются малые параметры, по которым по которым удобно разлагать формулу Кубо. Основными параметрами теории ПМР, развитой Фирсовым, являются следующие комбинации, зависящие от интеграла перекрытия  $J$ , энергии активации поляронного хоппинга  $E_a$  и температуры  $T$ :

$$\eta_1 = \frac{J}{E_a} \quad \eta_2 = \frac{J^2}{\hbar\omega_0\sqrt{kT \cdot E_a}} \quad \eta_3 = \frac{J^2}{kT \cdot E_a} \quad (2.45)$$

Условия, накладываемые на эти величины, имеют определенный физический смысл. Размер полярона имеет величину порядка  $aJ/E_p$  [15], где  $a$  – постоянная кристаллической решетки. Условие  $\eta_1 < 1$  является критерием существования поляронов малого радиуса. В случае  $\eta_1 > 1$  формируются поляроны большого радиуса.

Параметр  $\eta_2$  есть параметр адиабатичности. Перескок полярона из поляризационной ямы осуществляется в два этапа. На первом этапе на соседнем узле флуктуационным образом возникает “пустая” поляронная яма. На втором этапе электрон туннелирует в “пустую” яму при условии симметричного резонанса, когда электронные уровни в обеих ямах одинаковы. Время туннелирования  $t_1$  порядка  $t_1 = \hbar/2J$ , время же, в течение которого сохраняются условия, благоприятные для туннелирования  $t_2 \approx \hbar(\hbar\omega_0)^{-1/2}(E_a kT)^{-1/4}$  [16]. Время  $t_1$  характеризует инерционность электронной подсистемы, а  $t_2$  – фононной. Параметр  $\eta_2$  есть отношение квадратов двух этих времен:  $\eta_2 = (t_2/t_1)^2$ . Таким образом, при условии  $\eta_2 < 1$  электрон не успевает протуннелировать, а при  $\eta_2 > 1$  условия для этих переходов благоприятны. Если обратиться к рис.39, то в действительности в точке  $q=0$  колебательные термы не пересекаются, а “расталкиваются”. При  $\eta_2 > 1$  электрон адиабатически следует за ядрами, и справедливо адиабатическое приближение. При этом расстояние между термами в точке  $q=0$  достаточно велико и переходы между термами отсутствуют (предполагается, что кристалл не облучается светом). Электрон может только туннелировать через потенциальный барьер. Если выполняется условие  $\eta_2 < 1$ , то расстояние между термами мало и возможны неадиабатические переходы между термами.

В зависимости от параметра  $\eta_3$  реализуются различные механизмы движения ПМР по узлам кристаллической решетки. Этот параметр равен квадрату отношения времени перескока  $t_0 \approx \hbar(E_a kT)^{-1/2}$  и времени расплывания волнового пакета “голового” электрона  $t_1$ :  $\eta_3 = (t_0/t_1)^2$ . При

условии  $\eta_3 < 1$  происходят перескоки электрона между соседними узлами. В случае  $\eta_3 > 1$  реализуется так называемый “эстафетный” механизм, при котором электрон может пройти большие расстояния (волновой пакет успевает “расплыться” на несколько элементарных ячеек), прежде чем снова будет локализован.

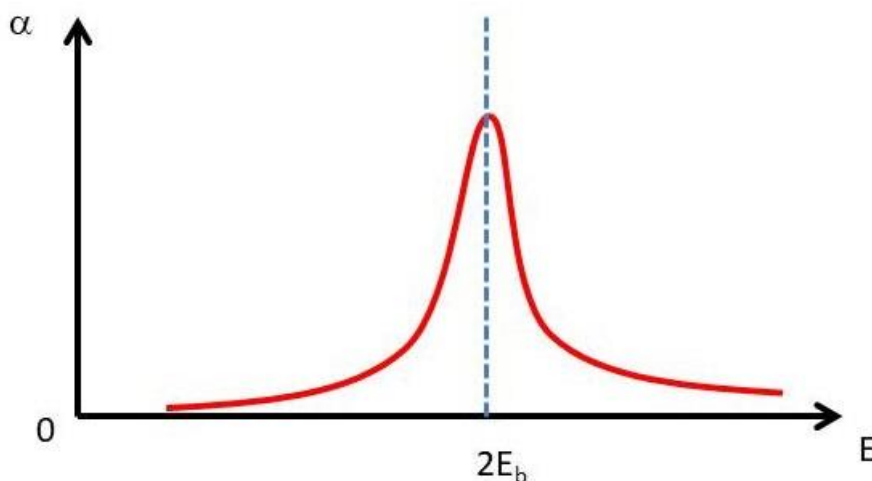
Обсудим вопросы, связанные с диагностикой поляронных возбуждений и определением механизма движения поляронов. В работе [15] было получено выражение для высокочастотной проводимости ПМР в пределе  $\eta_3 < 1$ :

$$\operatorname{Re} \sigma(\omega) = z n_0 e^2 a_0^2 \left( \frac{J}{\hbar} \right)^2 \frac{1}{\hbar \omega} \sqrt{\frac{\pi \hbar^2}{16 E_a T}} \cdot \exp \left[ -\frac{(\hbar \omega - 4 E_a)^2}{16 E_a T} \right] \quad (2.46)$$

где  $n_0$  – концентрация поляронов,  $E_a$  – энергия активации. Условие применимости (2.46) является условие малости тепловых и квантовых смещений от положения равновесия по сравнению со смещениями ионов  $Q_0$ , вызванными электрон-фононным взаимодействием. Это условие можно записать в виде:

$$\sqrt{\frac{kT}{E_a}} \ll 1 \text{ при } kT > \hbar \omega_0 \quad \text{или} \quad \sqrt{\frac{\hbar \omega_0}{2 E_a}} \ll 1 \text{ при } kT < \hbar \omega_0 \quad (2.47)$$

где  $T$  – температура. Типичный вид спектра поглощения света ПМР представлен на рис.40. Наблюдается максимум на частоте  $\omega = 4 E_a / \hbar = 2 E_b / \hbar$ , определяемой величиной двойного поляронного сдвига. Ширина спектра зависит как от энергии активации, так и от температуры.



**Рис. 40.** Дисперсия коэффициента поглощения при внутризонных переходах ПМР

Случай  $\eta_3 > 1$  (“эстафетный” механизм) рассматривался Фирсовым; выражение для проводимости ПМР в кристаллах кубической сингонии имеет следующий вид:

$$\operatorname{Re} \sigma(\omega) = n_0 e u_0 \frac{\omega_1}{2\omega_2} \int_0^\pi \frac{dk_y}{\pi} \int_0^\pi \frac{dk_z}{\pi} \left\{ 1 - \left[ \frac{\omega - \omega_2}{\omega_1} + \cos k_y + \cos k_z \right]^2 \right\}^{1/2} \quad (2.48)$$

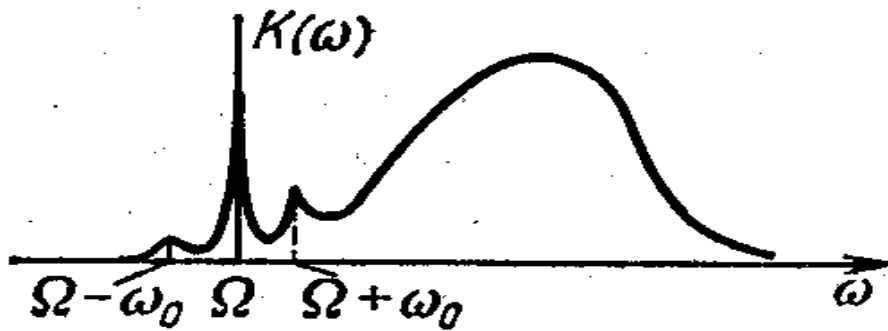
где величина  $\omega_1 = 2J/\hbar$  определяет спектральную ширину максимума,

$\hbar\omega_1 = 2E_p$  - положение пика функции  $\operatorname{Re} \sigma(\omega)$ ,  $u_0 = \frac{ea^2}{\hbar}$ . Поглощение имеет

место в частотном интервале  $4E_a - \frac{\Delta E}{2} < \hbar\omega < 4E_a + \frac{\Delta E}{2}$ , где  $\Delta E$  - ширина неперенормированной зоны проводимости (в жесткой решетке). Вне этого частотного интервала поглощение практически равно нулю, и формула (2.48) неприменима.

Спектры поглощения ПМР сильно отличаются от спектров поляронов большого радиуса (ПБР). У ПБР спектр поглощения представляет собой плавно спадающую с ростом частоты кривую, на которую могут накладываться пики внутренней структуры полярона, обусловленные появлением дополнительных уровней в поляронной яме [53]. Такое поведение (спад поглощения) обусловлено тем, что континуум уровней соприкасается с основным состоянием. У поляронов малого радиуса есть энергетический зазор, поэтому спектр поглощения ПМР представляет собой колоколообразную кривую с максимумом поглощения, как правило, в видимом или ближнем ИК диапазоне. Аппроксимируя экспериментальные результаты с помощью (2.46) или (2.48), можно определить интеграл перекрытия и энергию активации, которые входят во все основные параметры теории. Таким образом, экспериментальное исследование формы полос поглощения может служить для идентификации ПМР и определения различных механизмов их движения. Кроме того, в неадиабатическом случае ( $\eta_2 < 1$ ), можно оценить статическую проводимость, не прибегая к прямым электрическим измерениям.

Рассмотренные выше процессы поглощения электромагнитного излучения поляронами принято называть **внутризонным поглощением**, поскольку начальное и конечное состояния электрона принадлежат исходной поляронной зоне. Кроме того, могут происходить процессы **междузонного поглощения**. Междузонное поглощение имеет ряд особенностей, отличающих его от внутризонного. Основное отличие – это наличие узкого бесфононного пика на частоте перехода. С двух сторон этого пика должны наблюдаться фононные повторения. Со стороны больших энергий расположена широкая колоколообразная полоса поглощения, обусловленная переходами с участием фононов. Качественная зависимость дисперсии коэффициента поглощения приведена на рис. 41. Отметим, что эффекты междузонного поглощения между электронными зонами, одна из которых поляронная, экспериментально, по-видимому, малоисследованны.



**Рис. 41.** Дисперсия коэффициента поглощения при переходах из глубокого атомного уровня в узкую поляронную зону. Узкий пик слева – бесфононный пик.

### Полярны большого радиуса

Рассмотрим фотоионизацию полярона большого радиуса [17]. Пороговая энергия фотонов для ионизации ПБР — это электронная энергия связи самозахваченного носителя. Энергия полярона в основном состоянии:  $E = E_p$  есть результат суммирования нескольких вкладов, схематически изображенных на рис.42.

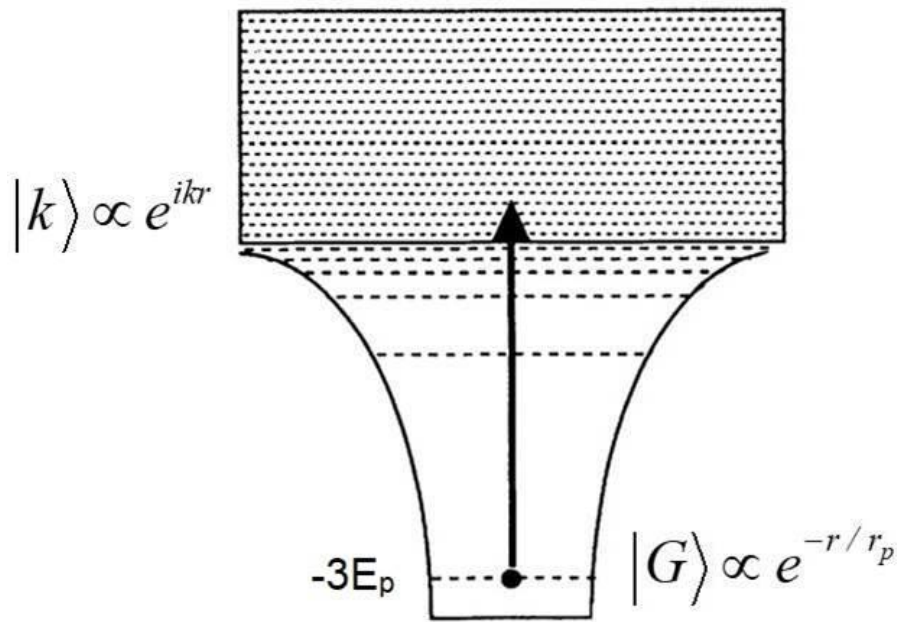
$$E_{ground} = E_p - 4E_p + 2E_p = -E_p$$

Энергия основного состояния полярона      Кинетическая энергия "конфайнмента" электрона (из соотношения неопределенностей)      Понижение энергии электрона      Энергия деформации решетки

$$E_{electron} = (E_p - 4E_p) = -3E_p$$

**Рис. 42.** Энергия полярона большого радиуса

Таким образом, можно ожидать рост поглощения, начиная с частоты  $\omega = 3E_p/\hbar$ . Рассчитаем спектр поглощения, возникающего при фотовозбуждении носителя из водородоподобного его основного состояния в самозахватывающей потенциальной яме в состоянии свободного электрона с волновым вектором  $k$  (рис.43).



**Рис. 43.** Фотоионизация ПБР при возбуждении автолокализованного носителя из основного состояния потенциальной ямы в континуум несвязанных состояний. На этой схематической иллюстрации горизонтальные пунктирные линии представляют уровни энергии связанных и континуальных состояний.

В этой трактовке волновая функция конечного состояния аппроксимируется как ВФ состояния свободного носителя, на которое не влияет потенциальная яма, связывающая автолокализованный электрон. Тогда скорость фотоионизации для переходов из основного состояния  $G$  в состояния со свободными носителями определяется золотым правилом Ферми:

$$w = \frac{2\pi}{\hbar} |V(G \rightarrow k)|^2 \rho(k) \quad (2.49)$$

Матричный элемент перехода в дипольном приближении равен:

$$V(G \rightarrow k) = \frac{eA_0 \hbar k_a}{mc} \langle G|k \rangle, \quad \text{где } k_a \text{ — компонента волнового вектора}$$

свободных носителей вдоль направления векторного потенциала. Интенсивность падающего излучения связана с вектор-потенциалом  $A_0$  как:

$$I = \frac{\omega}{2\pi \hbar c} |A_0|^2. \quad \text{Тогда для удельного поглощения получаем:}$$

$$\frac{\alpha_p}{n_p} = \frac{(eA_0 \hbar k_a)^2}{\omega m^2 c} |\langle G|k \rangle|^2 \rho(k), \quad (2.50)$$

где  $n_p$  концентрация поляронов. Зная волновые функции основного и

возбужденного состояний  $|G\rangle = \frac{1}{\sqrt{\pi r_p^{3/2}}} e^{-r/r_p}$ ,  $|k\rangle = L^{-3/2} e^{-ikr}$ , можно

раассчитать скалярное произведение  $\langle G|k \rangle$ :



$$\langle G|k \rangle = \frac{8\sqrt{\pi} \left( \frac{r_p}{L} \right)^{3/2}}{\left( 1 + (kr_p)^2 \right)^2} \quad (2.51)$$

и, согласно ф-ле (2.50), используя соотношение  $\rho(k) = \frac{mL^3 k}{(2\pi)^3 \hbar^2} \sin\theta d\theta d\varphi$  рассчитать коэффициент поглощения, интегрируя по всем углам:

$$\alpha_p = n_p \frac{128\pi e^2}{3\omega c} \frac{(kr_p)^3}{\left( 1 + (kr_p)^2 \right)^4} \quad (2.52)$$

где  $k \equiv \sqrt{2m(\hbar\omega - 3E_p)}/\hbar$ .

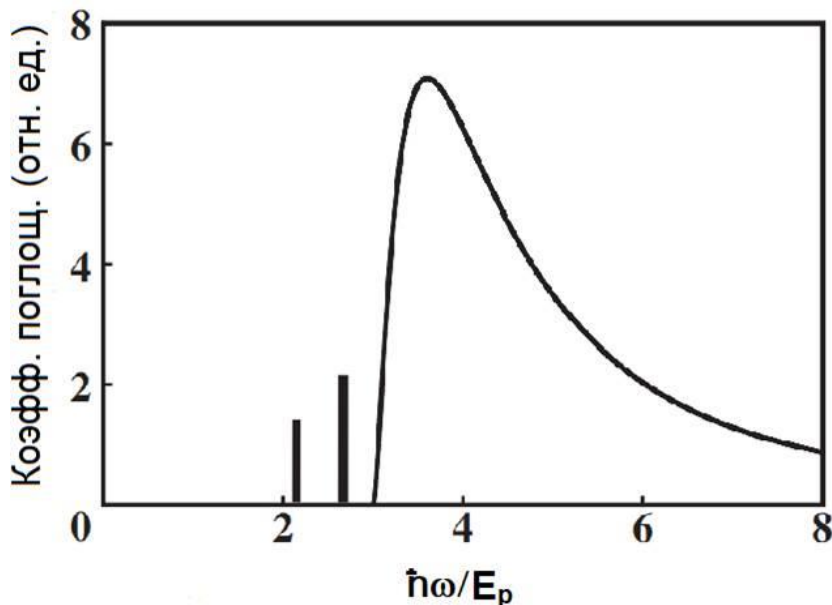
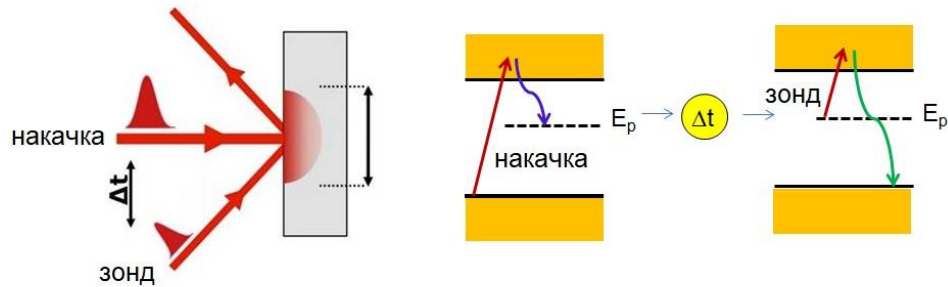


Рис. 44. Спектр поглощения ПБР

Энергия фотона  $\hbar\omega$  выше этого порога  $3E_p$  сообщает свободному электрону кинетическую энергию  $\hbar\omega - 3E_p$ . Более того, вероятность возбуждения самозахваченного электрона в зоне проводимости (1) возрастает с ростом его плотности состояний и (2) быстро уменьшается, когда волновой вектор освобожденного электрона превышает значение, обратное радиусу полярона. Таким образом, как показано на рис.44, коэффициент поглощения, возникающего в результате фотовозбуждения полярона, представляет собой асимметричную пиковую функцию энергии фотонов, ширина которой обычно намного меньше ширины зоны проводимости. Отдельные узкие пики с энергиями ниже  $3E_p$  могут соответствовать переходам в возбужденные состояния полярона, лежащими выше основного состояния.

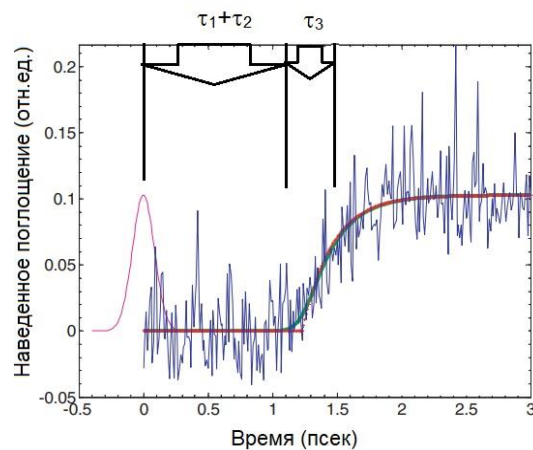
## Кинетика внутризонного поляронного поглощения света

Для исследования кинетики поглощения поляронами малого радиуса обычно используется традиционная схема «накачка-зондирование», но с невырожденными по частоте лазерными пучками. За счет однофотонного поглощения мощной фотонов накачки УФ диапазона (или двухфотонного поглощения в случае накачки видимого диапазона) электроны переходят из валентной зоны в зону проводимости (рис.45).



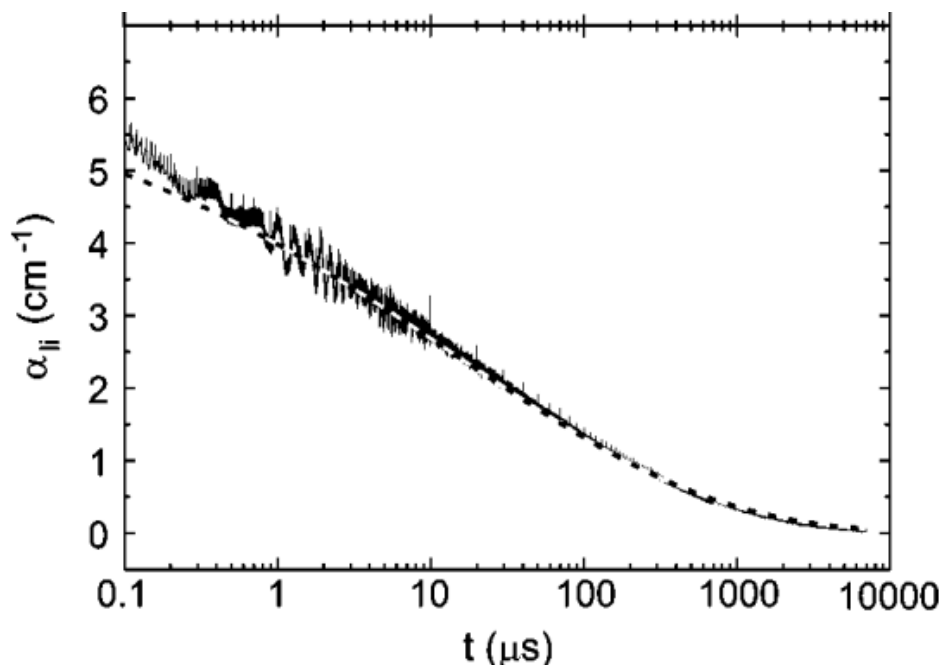
**Рис. 45.** Принципиальная схема типа «накачка-зондирование» с поляронными возбуждениями

Далее происходит их термализация в зоне проводимости за характерное время  $\tau_1$  порядка 100 фс с установлением квазиравновесного распределения Ферми-Дирака. Затем в течение времени  $\tau_2$  порядка 1 пс флуктуационно возникает подходящая по глубине потенциальная яма за счет смещения ионов, в которой и локализуется электрон. За характерное время  $\tau_3$  также порядка 1 пс электрон опускается на дно этой потенциальной ямы с излучением ЛО-фононов. При этом наблюдается рост поглощения на частоте пробного лазерного пучка (зонда) за счет появления вклада во внутризонное поглощение поляронами малого радиуса, когда начальное и конечное состояние принадлежат одной поляронной зоне. Процесс образования поляронов, сопровождающийся ростом коэффициента поглощения, наблюдается в эксперименте, результат которого приведен на рис. 45 [18].



**Рис.45.** Наведенное поляронное поглощение. Динамика на малых временах

Из графика временной зависимости наведенного поглощения отчетливо виден рост после времени  $t = \tau_1 + \tau_2$ . В течении времени  $\tau_3$  поглощение выходит на максимум. И далее наблюдается спад. В зависимости от кристалла время спада варьируется от микросекунд до секунд, и даже минут. На рис.46 приведена типичная временная зависимость наведенного поглощения в кристалле  $\text{Mg:LiNbO}_3$  [19].



**Рис.46.** Наведенное полярное поглощение. Динамика на больших временах.

Следует отметить, что в последние десятилетия наблюдается большой интерес в связи с использованием ПМР для реализации двухчастотной невозмущающей голографической записи информации (англ. «two-color nonvolatile holography»). При обычной одночастотной голографии в фоторефрактивных средах считывание записанной информации приводит к ее стиранию. При использовании же двухчастотной схемы, запись осуществляется двумя лазерными источниками с разными частотами. Например, в кристаллах ниобата лития могут быть как биполярны  $Nb_{Li}^{4+} - Nb_{Nb}^{4+}$ , так и глубокие ловушки  $Fe^{2+}$ . Тогда при облучении двумя накачками с частотами  $\omega_1$  (энергия  $\hbar\omega_1$  необходима для распада биполярона и образования  $Nb_{Li}^{4+}$ -полярона) и  $\omega_2$  (частота перехода с метастабильного поляронного уровня в зону проводимости) электроны мигрируют из освещенных областей и локализуются на глубоких ловушках (например, на уровнях  $Fe^{2+}$ ). Считывание записанной голограммы осуществляется регистрацией дифрагированной на записанной решетке волны с частотой, меньшей, нежели резонансная частота перехода электрона из глубокой ловушки в зону проводимости. Стирание голограммы происходит естественным путем (если время жизни глубоких ловушек мало) или путем специального освещения кристалла

коротковолновым излучением. На настоящее время выполнены экспериментальные работы по двухчастотной голографии не только в номинально чистых нередуцированных кристаллах ниобата лития (неконтролируемые примеси Fe в которых малы), но и легированных различными ионами (например, In, Mg, Pr, Er), а также и химически редуцированных. Легирование может существенно влиять на время жизни промежуточного поляронного состояния и на фоторефрактивную чувствительность  $S$ . В неотожжённых кристаллах ниобата лития время распада ПМР в зависимости от химического состава, особенностей отжига и температуры может варьироваться от нескольких микросекунд (в номинально чистых) до сотен секунд (в легированных Mg). Максимумы поглощения ПМР обычно лежат в видимом и ближнем ИК диапазонах спектра, что благоприятно для технической реализации записи и считывания информации. Недостатком же использования поляронов (или биполяронов) в качестве промежуточных уровней (или глубоких уровней) для двухчастотной записи является большая ширина пиков поглощения. Это может приводить к частичному стиранию голограмм при считывании. Также отметим, что активно обсуждается применение поляронов для задач квантовой информации (поляронные и биполярные кубиты, декогеренция, энтропия Шеннона, квантовое запутывание и т.д.).

## Задачи и вопросы к главе 2

1. На полупроводник с высокой концентрацией акцепторных дефектов-ловушек падает излучение лазера с временной зависимостью скорости накачки  $G(t) = \begin{cases} 0, & t < 0 \\ G, & t > 0 \end{cases}$  с энергией фотонов  $\hbar\omega > E_{gap}$ ,  $E_{gap}$  - ширина запрещенной зоны. К пленке приложено внешнее электростатическое поле напряженностью  $10^3$  В/см. Время релаксации электронов за счет захвата дефектами  $\tau = 1$  псек. Какой функцией  $S(\omega)$  описывается спектр генерируемого излучения? Изобразите ее график. Чему равна эффективная ширина спектра генерации?
2. В чем преимущества методов модуляционной спектроскопии полупроводников перед традиционными методами спектроскопии пропускания/ отражения?
3. К полупроводнику приложено электростатическое поле с напряженностью  $E$ . Опишите качественно наблюдаемые при этом изменения вблизи края электронного межзонного поглощения с энергией  $\Delta E_g$ . Нарисуйте графики частотной дисперсии коэффициента поглощения при  $E=0$  и  $E \neq 0$ .
4. Ширина *зоны проводимости* ионного кристалла равна  $W=2$  эВ, а статическая и высокочастотные диэлектрические проницаемости равны, соответственно:  $\epsilon_0 = 25$ ,  $\epsilon_\infty = 4$ . Оцените сверху радиус поляронов *малого радиуса* в таком кристалле.
5. Приведите качественный график спектра поглощения электромагнитного излучения поляронами малого радиуса, нанеся в качестве масштаба величину поляронного сдвига энергии  $E_p$ . Поясните, чем обусловлено положение максимума по частоте.

## Глава 3. Поверхностные возбуждения в твердом теле

### 3.1 Поверхностные возбуждения: фононные поляритоны

Как уже отмечалось, в области частот запрещенной зоны  $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$ , где диэлектрическая проницаемость отрицательна, объемные поляритоны существовать не могут (если пренебрегать затуханием). Однако вследствие нарушения трансляционной инвариантности, на поверхности кристалла возможно появление других квазичастиц – поверхностных поляритонов.

Рассмотрим простейший случай полубесконечного кристалла кубической сингонии с одним дипольно-активным колебанием. Пусть кристалл заполняет полупространство  $z < 0$  (рис.47). Плоскость  $z=0$  есть плоскость раздела между кристаллом и другой средой (например, изотропной) с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_2$ . Из уравнений Максвелла для монохроматической волны в немагнитной среде легко получить следующее уравнение:

$$\Delta \mathbf{E} + \frac{\epsilon \omega^2}{c^2} \mathbf{E} - \text{grad div} \mathbf{E} = 0 \quad (3.1)$$

Запишем уравнение для x-компоненты электрического поля:

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} + \frac{\epsilon \omega^2}{c^2} E_x - \frac{\partial^2 E_z}{\partial x \partial z} = 0 \quad (3.2)$$

Решения этого уравнения существуют в виде так называемых ТМ-волн, являющихся поверхностными электромагнитными волнами (ПЭВ). Если обратиться к рис.47, то магнитное поле ТМ-волны направлено перпендикулярно плоскости, содержащей нормаль к поверхности ( $\mathbf{H} \parallel y$ ), вектор электрического поля  $\mathbf{E}$  лежит в плоскости xz (у поверхностных поляритонов вращается в этой плоскости). Запишем решение для поля  $\mathbf{E}$  в виде:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^{(2)} &= \mathbf{E}_0^{(2)} \exp(iq_x x - \xi_2 z), \quad z > 0 \\ \mathbf{E}^{(1)} &= \mathbf{E}_0^{(1)} \exp(iq_x x + \xi_1 z), \quad z < 0 \end{aligned} \quad (3.3)$$

где  $\xi_i = \sqrt{q_x^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_i}$  - действительные положительные числа,  $i=1,2..$

Подставляя выражения (3.3) в уравнение (3.2) и используя граничные условия для нормальных составляющих электрической индукции и тангенциальных компонент электрического поля, можно получить дисперсионное соотношение для поверхностных поляритонов:

$$q_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_2 \epsilon_1(\omega)}{\epsilon_2 + \epsilon_1(\omega)}} \quad (3.4)$$

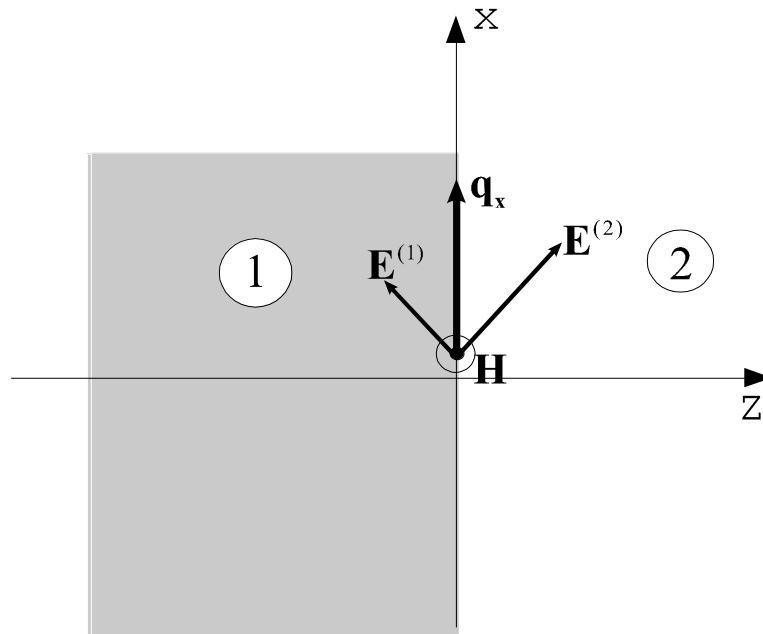
С учетом того, что величины  $\epsilon_2$  и  $\xi_i$  - положительны, из граничных условий следует, что поверхностные волны существуют лишь в области, где диэлектрическая проницаемость кристалла отрицательна:  $\epsilon_1(\omega) < 0$ . Закон дисперсии поверхностных поляритонов изображен на Рис.48.

В анизотропных кристаллах поверхностные поляритоны могут существовать не при любых ориентациях кристалла. Первые теоретические работы по исследованию поверхностных поляритонов в анизотропных кристаллах были выполнены В.М. Аграновичем с соавт. Рассмотрим случай одноосного кристалла, граничащего с вакуумом. Пусть ось  $z$  по-прежнему направлена по нормали к поверхности кристалла, ось  $x$  совместим с направлением распространения поверхностных волн. Введем следующие обозначения для компонент тензора диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{ij}$ :  $\varepsilon_{\perp}$  и  $\varepsilon_{\parallel}$  - соответствуют направлениям, перпендикулярным и параллельным оптической оси кристалла. Тогда из уравнений Максвелла можно получить дисперсионные соотношения поверхностных ТМ-волн. Приведем окончательные выражения для следующих частных случаев:

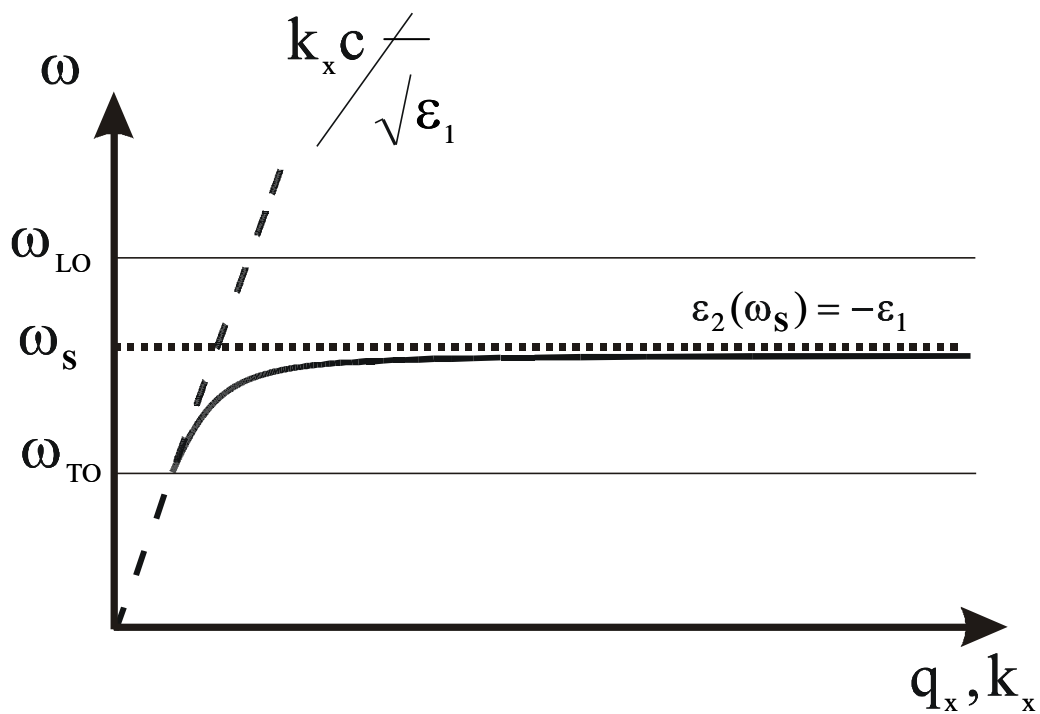
$$A1. \text{ Оптическая ось } C||y: \quad q_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_{\perp}(\omega)}{1 + \varepsilon_{\perp}(\omega)}} \quad (3.5)$$

$$A2. \text{ Оптическая ось } C||z: \quad q_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{\parallel}(\omega) \frac{1 - \varepsilon_{\perp}(\omega)}{1 - \varepsilon_{\perp}(\omega)\varepsilon_{\parallel}(\omega)}} \quad (3.6)$$

$$A3. \text{ Оптическая ось } C||x: \quad q_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{\perp}(\omega) \frac{1 - \varepsilon_{\parallel}(\omega)}{1 - \varepsilon_{\perp}(\omega)\varepsilon_{\parallel}(\omega)}} \quad (3.7)$$



**Рис. 47.** Геометрия полубесконечного кристалла и используемая система координат



**Рис. 48.** Дисперсионная зависимость поверхностных оптических колебаний для полубесконечного кристалла (1), граничащего со средой (2) с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_2$ ,  $\omega_S$  – частота поверхностного фона.



### 3.2 Нелинейнооптическая активная спектроскопия поверхностных возбуждений

В этом разделе приводится краткий обзор теоретических и экспериментальных работ по активной спектроскопии поверхностных поляритонов. Первые эксперименты в этой области проводились группой ДеМартини с фононными и экситонными поверхностными поляритонами в 70е годы. В первых теоретических работах, посвященных нелинейно-оптическим методам исследования поверхностных поляритонов (ПП), основное внимание уделялось спонтанному рассеянию на ПП. Основным недостатком этого метода в экспериментальном отношении – крайне низкая интенсивность рассеянного излучения на равновесных ПП. Позднее появился ряд теоретических работ посвященных активной спектроскопии ПП. Рассмотрим основные результаты, следующие из [20]. Пусть граница раздела совпадает с плоскостью  $z=0$ , граничащие среды будем полагать изотропными. Предположим, что на границах этих сред могут существовать ПП. Пусть оптической нелинейностью обладает лишь среда в области  $z>0$  (среда 1). Диэлектрические проницаемости сред 1 и 2 обозначим через  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$ . Предполагается, что бигармоническая заданная накачка, содержащая излучение с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , возбуждает на поверхности раздела за счет нелинейного взаимодействия волну ПП с частотой  $\omega = \omega_1 - \omega_2$ . Далее пробная волна с частотой  $\omega_\pi$  рассеивается на когерентных ПП. В результате возникают антистоксовая и стоксовая волны с частотами  $\omega_{a,s} = \omega_\pi \pm \omega$ . Поля на частотах  $\omega_\nu$  ( $\nu = 1, 2, \pi, a$ ) представим в следующем виде:

$$\mathbf{E}_\nu = \mathbf{e}_\nu A_\nu \exp(i\mathbf{k}_\nu \mathbf{r} - i\omega_\nu t) + \text{к. с.} \quad (3.8)$$

Вследствие оптической нелинейности в среде 1 возникает волна поляризации на частоте ПП:

$$\mathbf{P}_i^{NL} = \chi_{ijk}^{(2)} (\omega_1 - \omega_2) A_1 A_2^* \mathbf{e}_1^j \mathbf{e}_2^k \exp(i\mathbf{w} \mathbf{r} - i\omega t) + \text{к. с.} \quad (3.9)$$

$\mathbf{w} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ . Будем в дальнейшем для определенности полагать, что в обоих процессах каскадного рассеяния активна лишь  $z$ -компонента поля ПП. Для амплитуды ПП в этом случае в [20] было получено следующее выражение:

$$\mathbf{E}_z(\mathbf{r}, t) = F A_1 A_2^* \exp(i\mathbf{w}_\tau \mathbf{r} - p_1 z - i\omega t) + \text{к. с.} \quad (3.10)$$

где

$$F = \frac{2\pi\chi^{(2)}}{\varepsilon_1 p_1} \frac{w_\tau^2}{p_1 - iw_\tau} \frac{\varepsilon_2 p_1 - \varepsilon_1 p_2}{\varepsilon_2 p_1 + \varepsilon_1 p_2},$$

$$p_{1,2}^2 = w_\tau^2 - \omega^2 \varepsilon_{1,2} / c^2 \quad (\text{Re } p_{1,2} > 0), \quad w_\tau = \{w_x, w_y, 0\},$$

$\chi^{(2)}$  - свертка тензора квадратичной восприимчивости с ортами линейной поляризации волн 1 и 2. Волна ПП является бегущей вдоль плоскости  $z=0$  и

экспоненциально затухающей в обе стороны от границы раздела. Наличие экспоненциально убывающего множителя указывает на несохранение импульса вследствие неоднородности среды по координате  $z$ .

Далее на втором этапе пробная волна смешивается с когерентной волной ПП. Для интенсивности сигнала на антистоксовой частоте было получено следующее выражение:

$$I_a = \frac{16\pi^4 \omega_a^2 \chi_a^{(2)2}}{c^4 n_1 n_2 n_\pi n_a} \cdot \frac{|F|^2}{|\tau|^2 \cos^2 \theta} \cdot I_1 I_2 I_\pi \quad (3.11)$$

где  $\tau = k_{\pi z} - k_{az} + ip_1$  - поперечная волновая расстройка,  $\chi_a^{(2)}$  - эффективная квадратичная восприимчивость на втором этапе рассеяния,  $I_\nu$  - интенсивности взаимодействующих волн,  $\theta = \arcsin\left(\frac{|k_{\pi\tau} + w_\tau|}{k_a}\right)$  - угол

распространения сигнальной волны. Из численных оценок, проведенных в [20], следует, что активная спектроскопия ПП при типовых значениях нелинейности и интенсивностей накачек ( $1 \text{ МВт/см}^2$ ) дает выигрыш примерно в два порядка в интенсивности сигнала по сравнению со спонтанным рассеянием на ПП

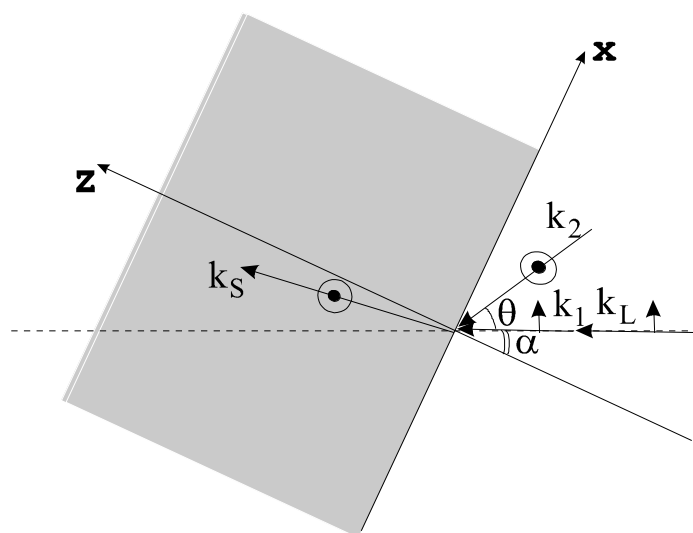
Из (3.11) следует, что форма линии четырехволнового рассеяния света на ПП, в основном, определяется тангенциальной расстройкой синхронизма и приближенно может быть описана следующим выражением:

$$I_s \propto \left| \frac{1}{\varepsilon_2 p_1 + \varepsilon_1 p_2} \right|^2 \propto \frac{1}{\Delta k_x^2 + [\text{Im}(K_x)]^2} \quad (3.12)$$

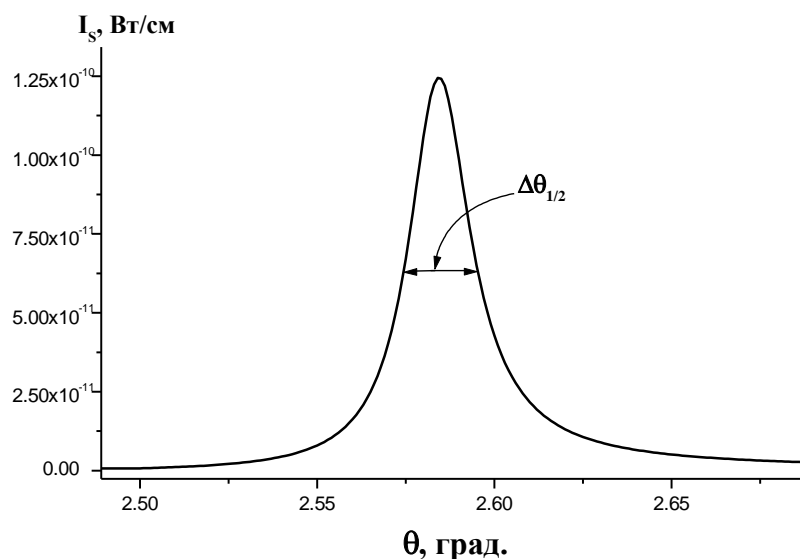
где  $\Delta k_x \equiv k_{1x} - k_{2x} - \text{Re}(K_x)$  - тангенциальная поляритонная расстройка синхронизма,  $K_x$  - волновой вектор ПП. Кардинальным отличием этого выражения от соответствующей формулы для формы линии рассеяния на объемных поляритонах является отсутствие в знаменателе поперечных волновых расстроек, что связано с невыполнением закона сохранения импульса в поперечном направлении вследствие неоднородности задачи по поперечной координате. Таким образом, для наблюдения 4-х волнового рассеяния на ПП достаточно выполнение условий синхронизма только для тангенциальных компонент волновых векторов.

Обсудим методику возможных экспериментов по четырехволновому рассеянию света на ПП. Будем рассматривать геометрию, изображенную на рис.49. Перестройку волнового вектора вынужденной поверхностной волны можно осуществлять двумя способами: изменением угла между волновыми векторами двух “разогревающих” волн и поворотом кристалла вокруг оси, перпендикулярной плоскости рисунка. Рассмотрим первый вариант. Рассчитанная зависимость сигнальной интенсивности от угла между волновыми векторами возбуждающих накачек приведена на рис.50. Из

графика видно, что угловая ширина этого пика сравнительно невелика по сравнению с типовыми расходимостями сфокусированных лазерных пучков (при использовании короткофокусных линз с  $f < 50$  см с целью увеличения интенсивностей накачек). При использовании этой методики угловое разрешение может быть недостаточным для получения информации о дисперсии ПП. Это обстоятельство желательно учитывать при экспериментах по четырехволновому рассеянию света на поверхностных поляритонах.



**Рис. 49.** Геометрия рассеяния на поверхностных поляритонах,  $k_{1,2}$  – волновые вектора накачек, возбуждающих ПП,  $k_L$  и  $k_S$  – волновые вектора зондирующей и сигнальной волн,  $k_L$  и  $k_S$  – волновые вектора зондирующей и сигнальной волн.



**Рис. 50.** Рассчитанная зависимость сигнальной волны при рассеянии в кристалле GaP на ПП с волновым числом  $385 \text{ см}^{-1}$ . Интенсивности возбуждающих и пробной накачек полагались равными  $1 \text{ МВт/см}^2$ . Угол поворота кристалла  $\alpha$  полагался равным нулю.

### 3.3 Топологические изоляторы. Фотоэлектронная спектроскопия с угловым разрешением (ARPES)

Топологические изоляторы (ТИ) являются принципиально новым классом материалов, характеризующихся наличием топологически-защищенных, проводящих поверхностных состояний электронов (краевых электронных состояний). В некоторых твердых телах из-за сильного спин-орбитального взаимодействия наблюдается инверсия энергетических зон. В результате на поверхности появляются электронные дираковские состояния с нулевой эффективной массой, а их энергия расположена в запрещенной зоне для электронов в объеме. В конце 20-го века было обнаружено, что электроны в двумерном (2D) пространстве и сильном магнитном поле, демонстрируют топологический тип порядка. Топологический порядок лежит в основе квантового эффекта Холла. Топологический порядок в материале определяется топологическим инвариантом. Таким инвариантом, например, может, являться число Черна, которое связано с топологической фазой Берри.

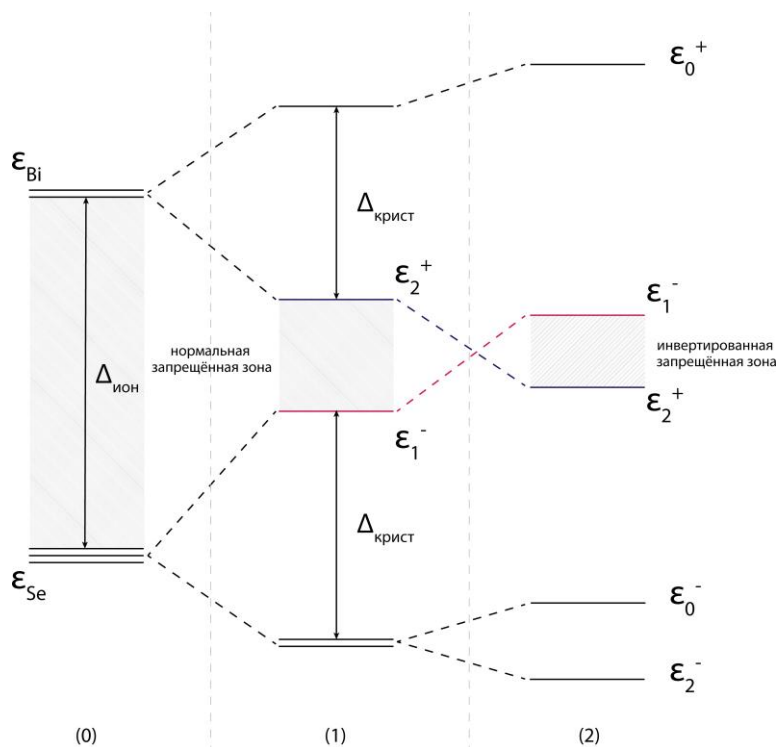
Топологические изоляторы – это материалы с сильным спин-орбитальным взаимодействием  $\hat{H}_{spin-orbit} = \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r^3} \hat{\sigma} \cdot \hat{L}$ . В таких материалах роль магнитного поля играет механизм спин-орбитальной связи. Квантовый эффект Холла, возникающий в 2D системах с магнитным полем, может также иметь место для электронов, движущихся вдоль решетки, при условии, что отсутствует макроскопическое магнитное поле. Именно эта идея явилась катализатором исследований, посвященных поиску топологических изоляторов. Спин-орбитальная связь не нарушает симметрию гамильтониана с отрицательным временем, подобно приложенному магнитному полю. Однако такая связь может привести к квантовому спиновому эффекту Холла, при котором электроны с противоположным угловым моментом вращения движутся в противоположных направлениях в отсутствие внешнего магнитного поля. В реальных материалах электроны смешиваются со спином вниз и вверх, поэтому спиновый ток отсутствует.

В середине 2000-х было продемонстрировано, что существуют реальные 2D материалы, которые в отсутствие магнитного поля имели бы устойчивые краевые состояния. Такие немагнитные изоляторы имеют края, которые ведут себя как идеально проводящие одномерные электронные «провода» при низких температурах, подобно тем, что присутствуют в квантовом эффекте Холла. Чуть позже оказалось, что квантовый эффект Холла не обобщен до 3D ТИ, но он может состоять из множества слоев 2D-версий по аналогии с многослойными квантовыми холловскими состояниями, однако результирующее состояние не будет устойчивым к беспорядку, и его физика похожа на 2D состояние.

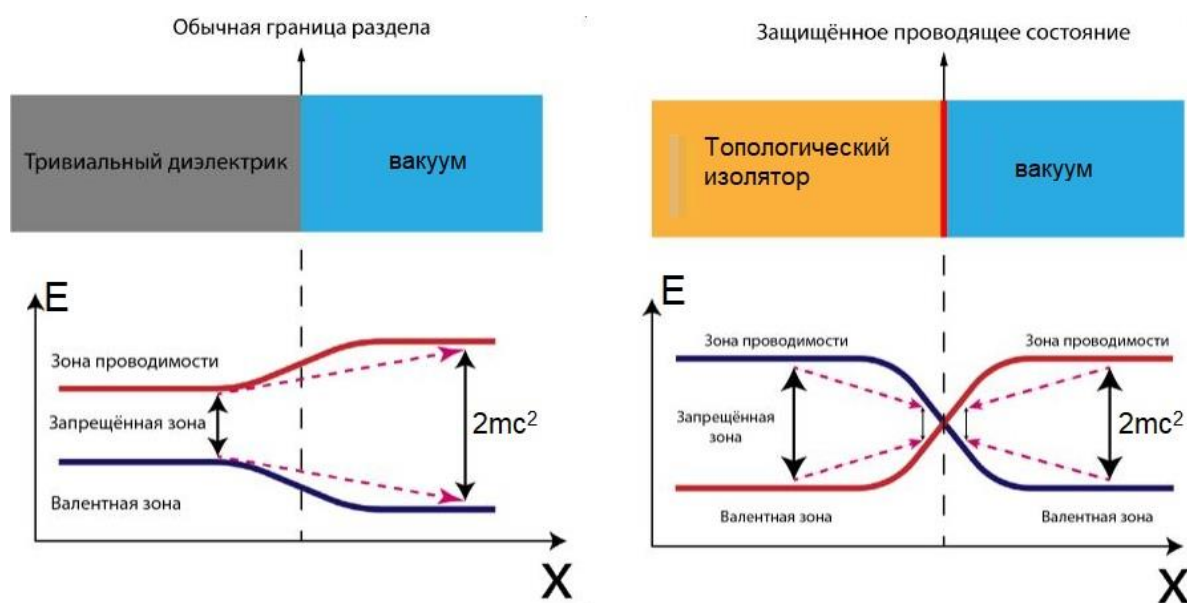
Состояния на поверхности топологических изоляторов отличаются от состояний в обычных металлах. В обычных материалах даже малые

возмущения могут вытеснить проводящие состояния с поверхности, тогда как в топологических изоляторах всегда будут наблюдаться граничные металлические состояния. Это объясняется наличием различных топологических инвариантов (число Черна, фаза Берри и др.), зависящих от зонной структуры материала, что обеспечивает стабильность металлических состояний на поверхности изолятора. Кроме того, направления движения поверхностных электронов и их спинов жестко связаны между собой и могут изменяться только согласованно.

В качестве примера материала с инвертированными зонами рассмотрим топологический изолятор  $Bi_2Se_3$  и его зонную структуру  $p$ -уровней (внешнюю оболочку) при учёте её расщепления (1) кристаллическим полем и (2) спин-орбитальным взаимодействием (Рис. 51). Изначальная энергетическая щель между уровнями  $Bi$  и  $Se$ , обусловленная разностью энергий ионизаций, резко уменьшается за счёт расщепления уровней кристаллическим полем. Поэтому при следующем учёте спин-орбитального взаимодействия (оказывающегося достаточно сильным) меняется порядок следования  $\epsilon^+$  и  $\epsilon^-$  уровней, формирующих границы запрещённой зоны. Теперь рассмотрим "контакт" инвертированного и "нормального" диэлектриков. В общем случае, ширина и центр запрещённой зоны могут меняться в зависимости от их характеристик у контактирующих материалов, но всегда будет наблюдаться характерная особенность - за счёт перехода "инвертированных" уровней, формирующих края, запрещённой зоны в "обычные" происходит их локализованное на границе раздела пересечение. То есть возникают локализованные металлические состояния, характеризующиеся нулевой запрещённой зоной, это схематично показано на рис. 52.

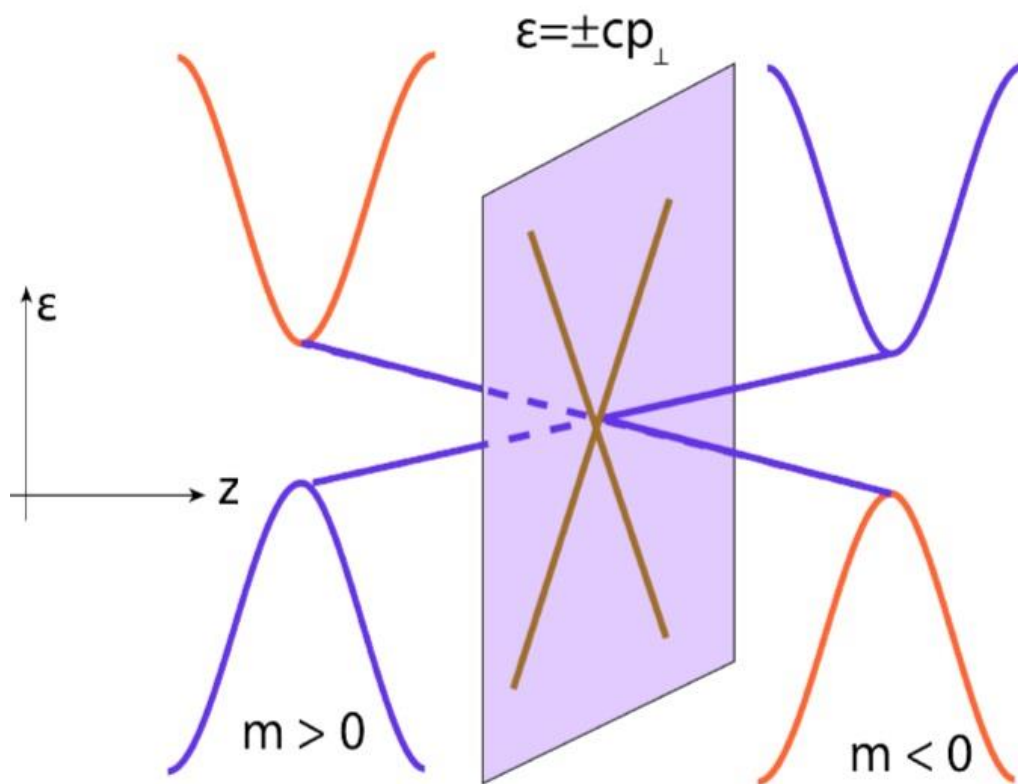


**Рис. 51.** Формирование инвертированной зонной структуры при учете расщепления уровней. (0) – исходные уровни, (1) – расщепление из-за внутрикристаллического поля, (2) – расщепление вследствие спин-орбитального взаимодействия



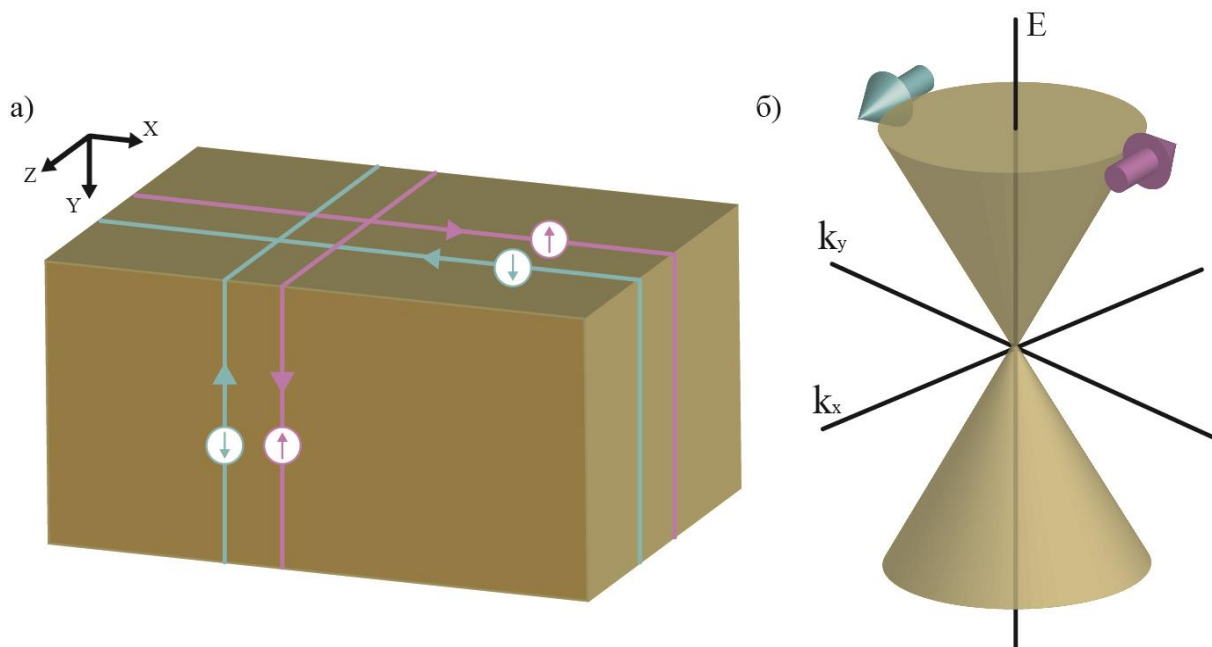
**Рис. 52.** Формирование поверхностных состояний на границе раздела.

Факт возникновения поверхностных проводящих состояний, характеризующихся линейной дисперсией энергии, так же можно объяснить с помощью рассмотрения электрона. Его энергия  $E = \pm\sqrt{m^2c^4 + c^2p^2}$ ; с одной стороны, знак массы здесь совершенно не важен, ведь она входит в выражение под квадратом. Но в то же время, если представить, что эффективная масса является функцией координат и она может менять свой знак, то можно наблюдать новый эффект. Пусть, например,  $m(x)$  меняет свой знак в точке  $x = x_0$ . Тогда вне зависимости от вида самой функции  $m(x)$  в плоскости  $(y,z)$  возникнут локализованные состояния, характеризующиеся линейной дисперсией энергии:  $\varepsilon = \pm cp$  (рис. 53) [21].



**Рис. 53.** Инверсный контакт между двумя материалами с эффективными массами разных знаков. На поверхности возникают проводящие состояния, характеризующиеся линейным законом дисперсии (нулевой эффективной массой).

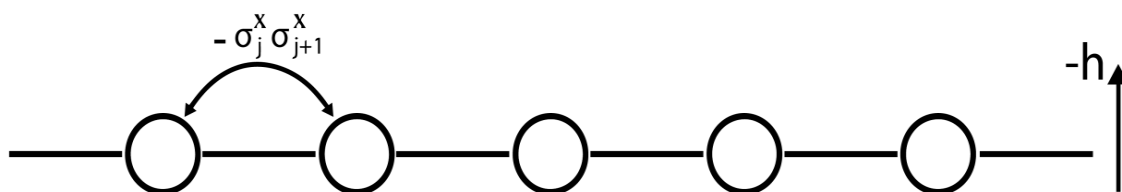
Топологический изолятор в отличие от графена имеет только одну точку Дирака и не имеет спинового вырождения. Точка Дирака, по сути, является точкой пересечения краевых состояний. Графен же имеет две точки Дирака и является спин-вырожденным. Движение дираковских электронов с противоположенными спинами и импульсами на поверхности 3D топологического изолятора в координатном (а) и импульсном (б) пространстве схематично проиллюстрировано на рис. 54.



**Рис. 54.** Движение дираковских электронов по поверхности в координатном (а) и импульсном (б) пространстве

Модель Изинга во внешнем магнитном поле широко применяется во многих задачах физики конденсированного состояния, особенно, в связи с широким исследованием магнитных свойств твердых тел. Это простейшая модель, описывающая поведение электронов в материале с сильным межузельным спин-орбитальным взаимодействием. Его роль в данном случае может выполнять некоторое эффективное магнитное поле. Рассмотрим модель Изинга одномерной цепочки взаимодействующих спинов (рис. 55).

При приложении внешнего поля с напряженностью  $h$  данную одномерную цепочку можно описать следующим гамильтонианом:



**Рис.55.** Одномерная цепочка атомов, где  $\sigma_x$  это компонента спина в  $j$ -ом узле, а  $h$  – напряженность внешнего магнитного поля



$$H(h) = -J \sum_{j=-\infty}^{\infty} (\sigma_j^x \sigma_{j+1}^x + h \sigma_j^z) \quad (3.13)$$

где  $J$  – энергия взаимодействия, первое слагаемое описывает попарное взаимодействие спинов в цепочке атомов, имеющих противоположенное направление, а напряженность внешнего поля имеет отрицательный знак для удобства. Воспользуемся преобразованием Йордана-Вигнера (3.14) и соотношениями для операторов рождения и уничтожения (3.15). Если от  $\sigma^+$  и  $\sigma^-$  перейти к нормировочным операторам  $S^\pm = \frac{\hbar}{2} \sigma^\pm$ , то они будут сдвигать собственное значение z-компоненты спина на единицу (в единицах  $\hbar$ ):

$$\begin{cases} \sigma_j^z = 1 - 2c_j^+ c_j \\ \sigma_j^+ = c_j^+ \exp(i\pi \sum_{l=-\infty}^{j-1} c_l^+ c_l) \\ \sigma_j^- = c_j \exp(-i\pi \sum_{l=-\infty}^{j-1} c_l^+ c_l) \end{cases} \quad (3.14)$$

$$\begin{cases} \sigma^+ = \sigma^x + i\sigma^y \\ \sigma^- = \sigma^x - i\sigma^y \end{cases} \quad (1.15)$$

где  $c_j$  – это ферми-операторы уничтожения электрона на  $j$ -м узле, подчиняющиеся каноническим антикоммутиационным соотношениям  $\{c_j^+, c_k\} = \delta_{j,k}$

Используя (3.15) и подставляя (3.14) в гамильтониан (3.13) получим:

$$H(h) = -J \sum_{j=-\infty}^{\infty} (c_j^+ - c_j)(c_{j+1} + c_{j+1}^+) - Jh(c_j c_j^+ - c_j^+ c_j) \quad (3.16)$$

Этот гамильтониан диагонализуется с помощью преобразования Боголюбова:

$$c_j = \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk}{2\pi} e^{-ikj} [\cos(\theta_k/2) \alpha_k + i \sin(\theta_k/2) \alpha_{-k}^+] \quad (3.17)$$

$$e^{i\theta_k} = \frac{h - e^{ik}}{\sqrt{1 + h^2 - 2h \cos k}} \quad (3.18)$$

где  $\{\alpha_k, \alpha_p^+\} = \delta_{k,p}$  и  $\theta_k$  угол Боголюбова.

Тогда гамильтониан примет следующую форму:

$$H(h) = \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk}{2\pi} \varepsilon(k) \left[ \alpha_k^+ \alpha_k - \frac{1}{2} \right] \quad (3.19)$$

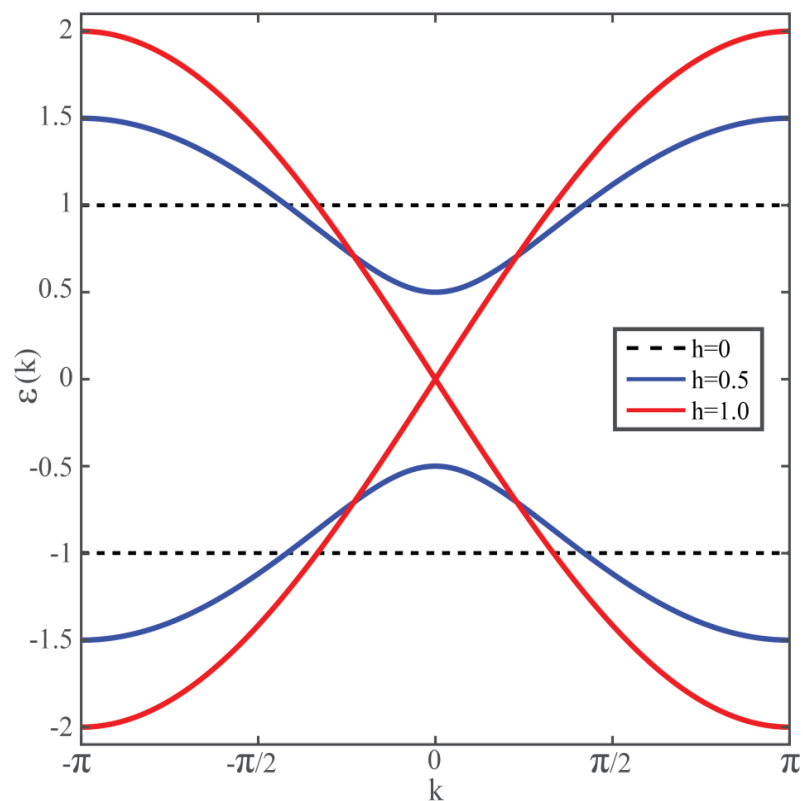
где дисперсионное соотношение для энергии определяется как:

$$\varepsilon(k) = \pm 2J \sqrt{1 + h^2 - 2h \cos k} \quad (3.20)$$

Положим  $J = 1/2$  и перепишем в более удобном виде

$$\varepsilon(k) = \pm \sqrt{(h - \cos k)^2 + (\sin k)^2} \quad (3.21)$$

Видно, что при  $h=1$  наблюдается исчезновение запрещенной зоны и возникновение дираковского конуса электронных состояний вблизи  $k=0$  (рис. 56). Поведение зон при  $h=0$  объясняется тем, что не была учтена модель слабой связи, поэтому зоны плоские и не зависят от волнового вектора электрона.



**Рис. 56.** Энергетический электронный спектр при разных  $h$

Гамильтониан для тонкой плёнки ТИ может быть записан как:

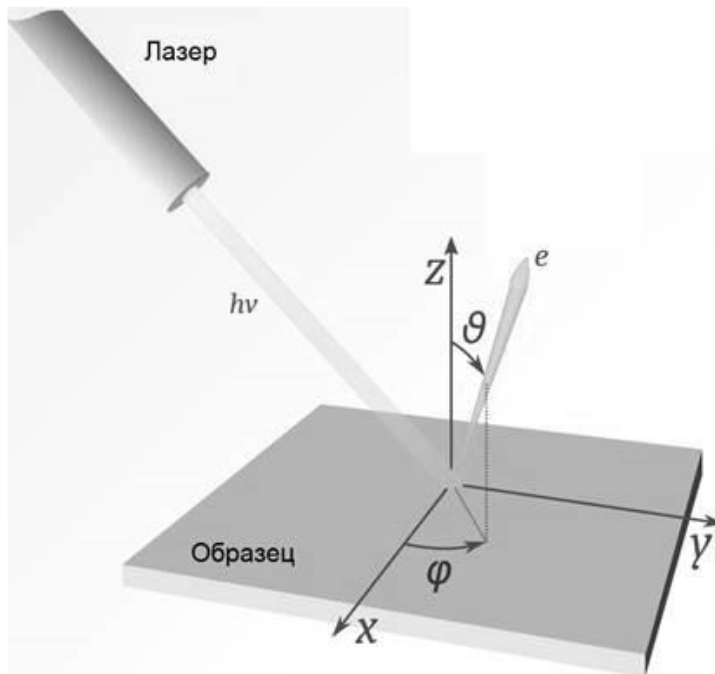
$$H = \frac{\hat{p}_x^2 + \hat{p}_y^2}{2m} + v_{Fermi}(\hat{p}_x \hat{\sigma}_y - \hat{p}_y \hat{\sigma}_x) \quad (3.22)$$

После диагонализации гамильтониана находим спектр электронов в случае 2D топологического изолятора:

$$E(p_x, p_y) = \frac{p_x^2 + p_y^2}{2m} + v_{Fermi} \sqrt{p_x^2 + p_y^2}. \quad (3.23)$$

Первый член отвечает за квадратичный закон дисперсии объёмного состояния, а второй - за дираковский конус, характеризующий поверхностные состояния ТИ.

В эксперименте электронные спектры топологических изоляторов изучаются с помощью метода фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением (ФСУР) – английская аббревиатура ARPES (Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy). Этот метод спектроскопии использует поток света высокой энергии, взаимодействующий с поверхностью исследуемого материала, и спектрометр с угловым разрешением для измерения энергии выброшенных электронов. В полушариях анализатора энергии поддерживается постоянное напряжение, по центральной траектории следуют электроны с кинетической энергией, равной заданной энергии прохождения. Те электроны, у которых более высокая или низкая энергия, оказываются ближе к внешнему или внутреннему полушарию на другом конце анализатора. Принципиальная схема ФСУР приведена на рис.57.



**Рис. 57.** Принципиальная схема эксперимента фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением

Энергия выбитых фотоэлектронов равна:

$$E_{кин} = \hbar\omega - E_b - \Phi, \quad (3.24)$$

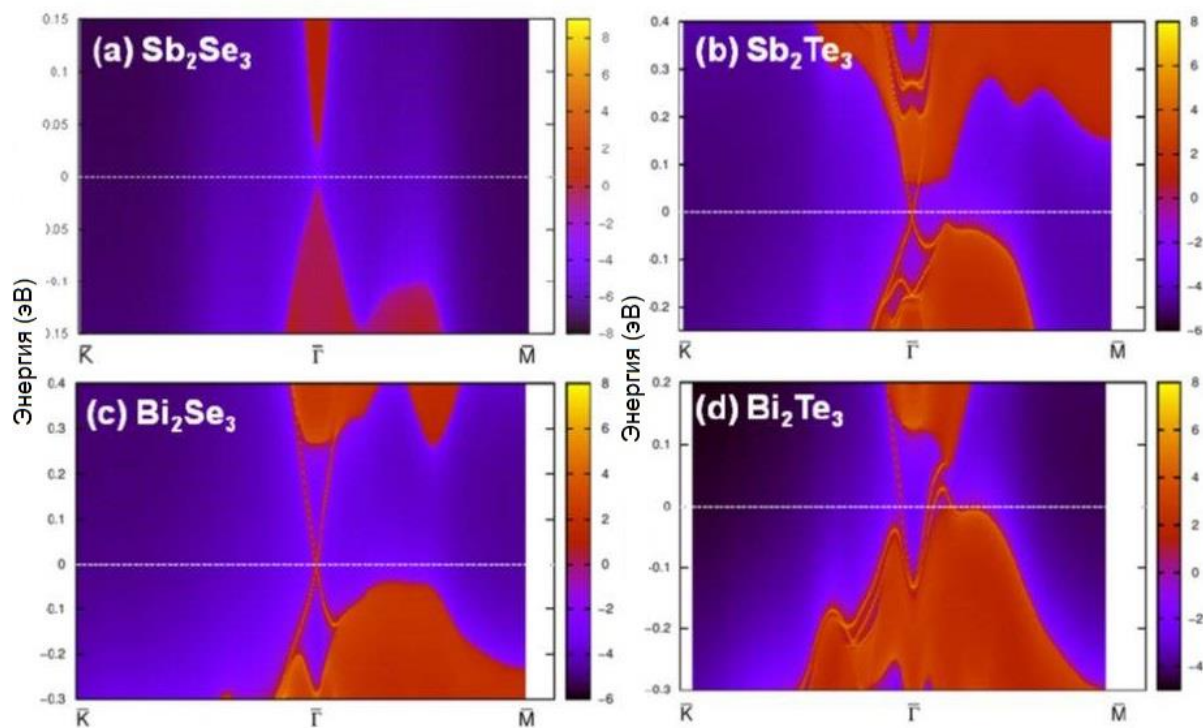
где  $E_b$  - энергия связи электрона,  $\Phi$  - работа выхода из материала. Из трансляционной симметрии вдоль поверхности следует, что продольный импульс электронов сохраняется (в пренебрежении импульсом фотона):

$$\begin{aligned} \hbar k_x^{initial} &= \sqrt{2mE_{кин}} \sin \theta \cos \varphi \\ \hbar k_y^{initial} &= \sqrt{2mE_{кин}} \sin \theta \sin \varphi . \\ \hbar k_z^{initial} &= \sqrt{2mE_{кин}} \cos \theta \end{aligned} \quad (3.25)$$

Тогда из (3.24) и (3.25) получаем:

$$\begin{aligned} k_{\parallel} &= \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (\hbar\omega - E_b - \Phi)} \sin \theta \\ k_{\perp} &= \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E_{кин} + V_0)} \cos \theta , \\ k &= \sqrt{k_{\perp}^2 + k_{\parallel}^2} \end{aligned} \quad (3.26)$$

где  $V_0$  – некоторый поверхностный потенциал. Таким образом, спектр поверхностных электронных состояний может быть измерен методом ФСУР из анализа энергетически-угловых распределений выбитых фотоэлектронов. Примеры электронных спектров топологических изоляторов на основе халькогенидов висмута и сурьмы представлены на рис. 58. Топологически-тривиальный материал селенид сурьмы не проявляет никаких свойств ТИ, в запрещенной зоне отсутствуют электронные состояния, и наблюдается провал. В то время как во всех остальных трех бинарных соединениях, содержащих атомы тяжелых элементов висмута и теллура и обладающих сильным спин-орбитальным взаимодействием, можно видеть появление дираковских конусов [22].



**Рис. 58.** Спектры ФСУР (ARPES) топологических изоляторов на основе халькогенидов висмута и сурьмы [22]

### Задачи и вопросы к главе 3.

1. На границу металл/вакуум под углом  $\theta=30^\circ$  к нормали падает электромагнитная волна с частотой, равной половине плазменной  $\omega = \omega_p / 2$ . С каким периодом следует нанести на поверхность металла дифракционную решетку, чтобы возбудить поверхностный плазмон? Дисперсию диэлектрической проницаемости металла взять в виде,  $\omega_p = 10^{15} \text{ c}^{-1}$ .
2. Чем определяется ширина спектра сигнального излучения при когерентном антистоксовом рассеянии света на поверхностных поляритонах?
3. В чем отличия методов возбуждения поверхностных электромагнитных волн в схемах Отто и Кречмана?
4. Гамильтониан электронов в тонкой пленке топологического изолятора может быть представлен в виде:  $H = \frac{p_x^2 + p_y^2}{2m} + v_{Fermi}(p_x \sigma_y - p_y \sigma_x)$ , где  $p_i$  и  $\sigma_i$  ( $i=x,y$ ) обозначают проекции оператора импульса и матрицы Паули, а  $v_{Fermi}$  – скорость Ферми. Диагонализуйте гамильтониан и вычислите электронный энергетический спектр.

## Литература

1. П. Ю, М. Кардона. Основы физики полупроводников. Москва, Физматлит (2002)
2. P.A. Temple and C. E. Hathaway. Phys. Rev. B 7, 3685 (1973)
3. H.J. Zeiger et al. Phys. Rev. B 45, 768 (1992)
4. Ю.Н. Поливанов. УФН 126, 185 (1978)
5. Д.Н. Клышко. Фотоны и нелинейная оптика. Москва, Наука (1980).
6. Н.Б. Брандт, В.А. Кульбачинский. Квазичастицы в физике конденсированного состояния. Москва, Физматлит (2005)
7. В.Б. Тимофеев. ФТП 46, 865 (2012)
8. H.J. Bakker et al. Reviews of Modern Physics 70, 523 (1998)
9. А.М. Калашникова, А.В. Кимель, Р.В. Писарев. УФН 185, 1064 (2015)
10. A.V. Kimel et al. Nature 435, 655 (2005)
11. P.U. Jepsen et al. J. Opt. Soc. Am. 13, 2424 (1996)
12. D.M. Eagles. Phys.Rev. 145, 645 (1966)
13. H. Böttger, V.V. Bryksyn. Hopping conduction in solids, Akademie-Verlag, Berlin (1985)
14. Ю.А. Фирсов. Поляроны малого радиуса. Явления переноса. ФТП, 29, 994 (1995)
15. В.Н. Богомолов и др. ФТТ, 9, 2077 (1967)
16. Поляроны. Сборник под ред. Ю.А. Фирсова. Москва, Наука (1975)
17. D. Emin: Phys. Rev. B 48, 13691 (1993)
18. Yong Qiu et al. Phys. Stat. Sol. (c) 2, No. 1, 232–235 (2005)
19. D. Verben et al. J. Appl. Phys. 87, 1034 (2000)
20. Н.И. Лихолит и др. Квантовая электроника, 3, 457 (1976)
21. О.А. Панкратов. УФН 188, 1226 (2018)
22. H. Zhang et al. Nature Phys. 5, 438 (2009)