Письма в ЖЭТФ, том 104, вып. 7, с. 475 – 479

Измерение электронной зонной структуры твердого тела методом генерации оптических гармоник высокого порядка

А. А. Ланин[+*], *А. М. Желтиков*[+*×1)]

[+] *Физический факультет, Международный лазерный центр, МГУ им. Ломоносова, 119992 Москва, Россия*

[*] *Российский квантовый центр, 143025 Сколково, Россия*

[×] *Texas A&M University, 77843 College Station TX, USA*

Поступила в редакцию 23 июня 2016 г.

После переработки 25 августа 2016 г.

Показана возможность определения полной электронной зонной структуры твердого тела методом генерации гармоник высокого порядка в поле сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного диапазона. Зондирование электронных зон твердого тела вдоль характерных направлений зоны Бриллюэна осуществляется электронными и дырочными волновыми пакетами, направление импульса которых по отношению к осям симметрии зоны Бриллюэна определяется поляризацией поля накачки.

DOI: 10.7868/S0370274X16190024

Электронная зонная структура отражает фундаментальные свойства твердого тела, служит ключом к пониманию сложных физических явлений в новых материалах, таких как высокотемпературные сверхпроводники [1], графены [2] и топологические изоляторы [3]. Широко распространенные методы рентгеноструктурного анализа [4, 5] позволяют с высокой точностью определить параметры кристаллической решетки в прямом пространстве и могут быть использованы для измерений в объеме твердого тела. В отличие от этих методов техника фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением [6], позволяющая выполнить анализ электронной зонной структуры, может быть применена лишь для исследований на поверхности твердого тела, т.к. для ее реализации требуется регистрация испускаемых под действием света электронов.

В связи с имеющимися трудностями экспериментального исследования электронной зонной структуры в объеме твердых тел значительный интерес вызывает возможность использования сверхкоротких лазерных импульсов среднего инфракрасного (ИК) диапазона для полностью оптического анализа электронной зонной структуры твердых тел на основе генерации гармоник высокого порядка (ГГВП). Практическая реализация этого подхода становится возможной [7–9] благодаря созданным в последние годы компактным твердотельным источникам мощных сверхкоротких импульсов среднего ИК-диапазона [7–14]. Первые эксперименты, демонстрирующие этот новый подход к исследованию твердого тела, были выполнены с использованием сверхкоротких лазерных импульсов с длиной волны 3.66 мкм [9]. Генерация гармоник высокого порядка в твердом теле в присутствии интенсивного поля накачки с такой длиной волны, в основном, связана с межзонными процессами в твердом теле. Частоты наиболее информативных гармоник высокого порядка при этом превышают частоту энергетической щели зонной структуры твердого тела, что приводит к значительному ослаблению излучения гармоник и ограничивает глубину, на которой может быть выполнен анализ зонной структуры твердого тела.

При увеличении центральной длины волны поля накачки соотношение между вкладами внутризонных токов и межзонных переходов в процесс ГГВП изменяется [15]. Как показано в недавно выполненных экспериментах [16], явление ГГВП в поле сверхкоротких лазерных импульсов с центральной длиной волны 5–7 мкм в основном связано с внутризонными процессами в твердом теле. В связи с тем, что генерируемые в этом режиме гармоники высокого порядка лежат в области прозрачности материала, создаются благоприятные условия для полностью оптической диагностики электронной зонной структуры, в том числе, в объеме твердотельных материалов. Как показано в настоящей работе, поляризационный анализ обусловленных внутризонными процессами гармоник высокого порядка позволяет на основе измерений, выполняемых в полосе прозрачности твердо-

1)e-mail: zhieltikov@physics.msu.ru

го тела, определить его полную электронную зонную структуру.

Генерация гармоник высокого порядка в газовых средах является одним из ключевых явлений оптической физики сильных полей [17], лежащим в основе технологий генерации аттосекундных импульсов [18]. Физическая картина ГГВП в твердом теле значительно более сложна и многообразна [7–15] по сравнению с ГГВП в газовой среде. Аналогично стандартной классификации механизмов оптической нелинейности твердого тела в пределе слабых световых полей [19] разделяют внутризонные и межзонные механизмы ГГВП (рис. 1). Межзонная ГГВП

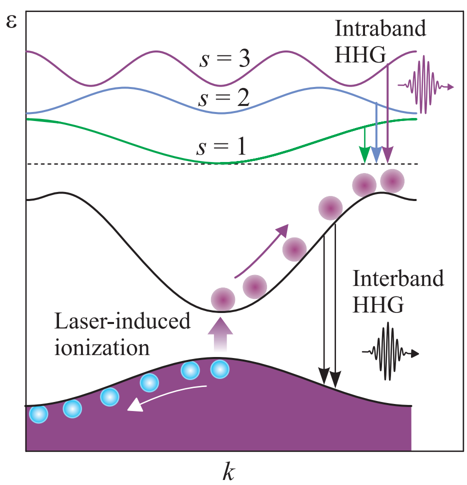

Рис. 1. (Цветной онлайн) Генерация гармоник высокого порядка за счет межзонных и внутризонных процессов в твердом теле. В верхней части рисунка иллюстрируется представление зоны проводимости в виде суммы фурье-гармоник

связана с индуцируемым световым полем переводом электронов из зоны валентности в зону проводимости и образованием дырок в валентной зоне с последующей рекомбинацией ускоренных полем накачки электронов и дырок, сопровождающейся испусканием излучения гармоник поля накачки. Внутризонная ГГВП (рис. 1) обусловлена нелинейной зависимостью энергии от импульса электронов и дырок, ускоряемых полем в зоне проводимости и валентной зоне, сильно нелинейной зависимостью вероятности перехода электронов из валентной зоны в зону проводимости от поля накачки, а также эффектами рассеяния, сопровождающими рассеяние электронов на дырках.

Наиболее информативная часть спектра гармоник, генерируемых за счет межзонных процессов, лежит выше энергии запрещенной зоны твердого тела и поглощается материалом. В этой связи особый интерес представляет ГГВП, обусловленная нелинейностью закона дисперсии электронов и дырок в твердом теле. Значительная часть спектра гармоник, генерируемых за счет этого механизма нелинейности, лежит ниже энергии запрещенной зоны твердого тела, попадая, тем самым в область прозрачности материала. Изучение свойств спектра гармоник высокого порядка, генерируемых в этом режиме, позволяет получить важную информацию о характере дисперсии $\varepsilon = \varepsilon(\mathbf{k})$, т.е. о зонной структуре твердого тела. Для реализации этого режима ГГВП требуются источники сверхкоротких импульсов достаточно высокой пиковой мощности с центральной длиной волны, значительно превышающей длину волны накачки, позволяющую наблюдать межзонные ГГВП-явления. Лазерные источники, удовлетворяющие этим требованиям, появились лишь недавно [13, 14, 20]. Тем самым, созданы условия для практической реализации полностью оптических методов диагностики зонной структуры твердых тел.

Для определения геометрии поляризационных измерений, позволяющих определить полную структуру электронных зон в твердом теле, воспользуемся следующим выражением для сигнала ГГВП, генерируемого за счет внутризонного тока $\mathbf{J}(t)$ [11, 12]:

$$\mathbf{E}(t) \propto \frac{d\mathbf{J}(t)}{dt}. \tag{1}$$

Суммарный внутризонный ток, наводимый световым полем во всех зонах твердого тела, записывается в виде

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}^e + \mathbf{J}^h \tag{2}$$

как сумма токов электронов и дырок $\mathbf{J}^e$ и $\mathbf{J}^h$.

Каждое из слагаемых в выражении (2) представляется как сумма токов, индуцируемых полем накачки внутри i-й зоны вдоль определенного направления зоны Бриллюэна, и записывается в виде произведения [21]

$$\mathbf{J}^\lambda(t) = \sum_{i,\lambda} q n_i^\lambda \mathbf{v}_i^\lambda(t) \tag{3}$$

электрического заряда q ($q = -e$ для электронов и $q = +e$ для дырок), плотности носителей заряда n_i^λ и групповой скорости волнового пакета носителей заряда $\mathbf{v}_i^\lambda(t)$. Учет вкладов электронных и дырочных токов осуществляется суммированием по λ ($\lambda = e$ для электронов, $\lambda = h$ для дырок). Сумма по i в выражении (3) содержит слагаемые, соответствующие всем направлениям зоны Бриллюэна.

Групповая скорость волнового пакета, формируемого в зоне с законом дисперсии $\varepsilon(k)$, определяется выражением

$$\mathbf{v}(\mathbf{k},t) = \frac{1}{\hbar}\frac{d\varepsilon(\mathbf{k})}{d\mathbf{k}}. \quad (4)$$

Энергию носителей в каждой из валентных зон ε_i^e и зон проводимости ε_i^h твердого тела представим в виде конечной суммы фурье-гармоник (рис. 1):

$$\varepsilon_i^e(k_i) = E_g + \sum_s \alpha_{i,s}^e \cos(s\mathbf{k}\mathbf{e}_i), \quad (5)$$

$$\varepsilon_i^h(k_i) = \sum_s \alpha_{i,s}^h \cos(s\mathbf{k}\mathbf{e}_i), \quad (6)$$

где E_g – ширина запрещенной зоны, $\mathbf{e}_i$ – вектор вдоль i-го направления зоны Бриллюэна с абсолютной величиной $|\mathbf{e}_i| = 2\pi/\kappa_i$, κ_i – размер зоны Бриллюэна вдоль направления I, $\alpha_{i,s}^e$ – амплитуды фурье-гармоник.

Используя соотношение [22]

$$k(t) = -(e/\hbar)\int_{-\infty}^{t} E(\theta)d\theta, \quad (7)$$

где θ – переменная интегрирования, и учитывая вклад всех зон, получим следующее выражение для групповой скорости электронного волнового пакета:

$$\mathbf{v}^e(\mathbf{k},t) = -\frac{1}{\hbar}\sum_{i,s}\mathbf{e}_i\alpha_{i,s}^e \sin\left(s\left[\mathbf{k} - \frac{e\mathbf{A}(t)}{\hbar c}\right]\mathbf{e}_i\right). \quad (8)$$

Здесь введен векторный потенциал $\mathbf{A}(t)$, который связан с полем соотношением $\mathbf{E}(t) = -\frac{1}{c}\frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t}$.

Полный внутризонный ток электронов, таким образом, определяется следующим выражением:

$$\mathbf{J}^e(t) = \frac{e}{\hbar}\sum_{i,s}\mathbf{e}_i n_i^e \alpha_{i,s}^e \cos(\mathbf{k}\mathbf{e}_i)\sin\left(s\frac{e\mathbf{A}(t)\mathbf{e}_i}{\hbar c}\right). \quad (9)$$

Как следует из формулы (9), полный внутризонный ток может быть представлен в виде разложения по векторам трансляции $\mathbf{e}_i$. При этом проекция групповой скорости на направление $\mathbf{e}_i$ зоны Бриллюэна, а, следовательно, и вклад в общий ток, который дает это направление зоны Бриллюэна, определяется проекцией вектор-потенциала $\mathbf{A}(t)$ на направление вектора $\mathbf{e}_i$.

Ненулевые проекции поляризации электрического поля накачки $\mathbf{E}(t)$ на направления $\mathbf{e}_i$ вектора трансляции приводят к возникновению тока в данных зонах. Это приводит к формированию независимых источников высоких гармоник разными зонами, поляризации которых параллельны направлениям обратного пространства. В случае простых типов решетки возможно полное разделение вкладов отдельных направлений зоны Бриллюэна в полный сигнал гармоник на основе поляризационных измерений. В качестве примера рассмотрим случай гранецентрированной кубической решетки кристалла ZnSe (рис. 2), исследовавшегося методом ГГВП в

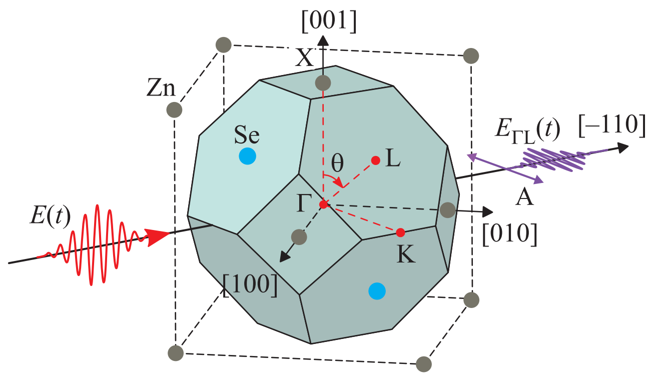

Рис. 2. (Цветной онлайн) Гранецентрированная кубическая решетка кристалла ZnSe (атомы Zn и Se показаны серыми и синими шариками) и его зона Бриллюэна. На рисунке показаны также зондирующий лазерный импульс и импульс излучения оптических гармоник, прошедший через анализатор поляризации (A). Угол θ характеризует ориентацию поляризации лазерного излучения

экспериментах [16]. В связи с тем, что для такой системы наибольшая вероятность ионизации достигается для направлений зоны Брюллюэна, содержащих точку Γ, в выражении для тока (3) удается ограничиться тремя слагаемыми, i = ΓL, ΓK, ΓX. Для кристалла с решеткой такого типа поляризация поля накачки может быть выбрана линейной (рис. 2) и ориентирована вдоль оси [001] ($\theta = 0°$) таким образом, чтобы исключить возбуждение внутризонных токов направления ΓK зоны Бриллюэна. Ориентируя анализатор поляризации сначала перпендикулярно $\mathbf{e}_{\Gamma L}$, а затем перпендикулярно $\mathbf{e}_{\Gamma X}$ (рис. 2), удается измерить сигнал ГГВП, соответствующий внутризонным токам вдоль направлений ΓX и ΓL зоны Бриллюэна (рис. 3a). Использование поля накачки, поляризованного вдоль направления $\mathbf{e}_{\Gamma K}$ кристалла, и анализатора, ориентированного перпендикулярно вектору $\mathbf{e}_{\Gamma L}$, позволяет записать сигнал ГГВП, индуцируемый движением тока вдоль ΓK зоны Бриллюэна (рис. 3b).

Раздельное измерение сигналов ГГВП, связанных с внутризонными токами вдоль различных направлений внутри зоны Бриллюэна, позволяет по форме спектра высоких гармоник определить профиль электронных зон вблизи данного направления зоны

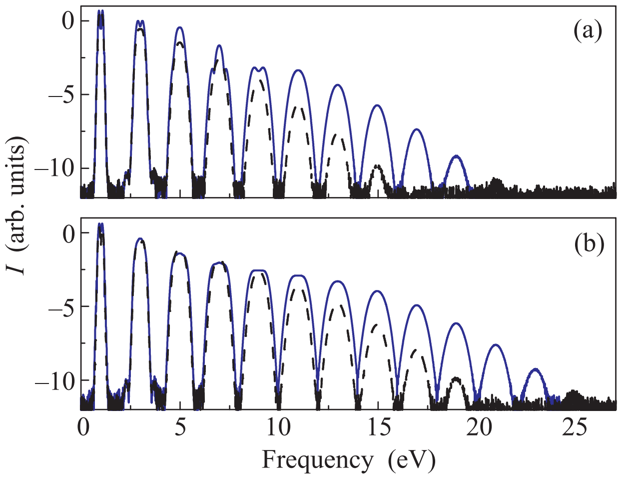

Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры оптических гармоник, генерируемых внутризонным током электронов, индуцируемым вдоль (a) направлений ГX (сплошная линия) и ГL (пунктирная линия) и (b) направлений ГK (сплошная линия) и ГL (пунктирная линия) зоны Бриллюэна кристалла ZnSe. Лазерный импульс имеет длительность 85 фс, центральную длину волны 6.7 мкм и амплитуду поля 0.8 В/А. Поле лазерного импульса поляризовано вдоль направлений ГX (a) и ГK (b) зоны Бриллюэна

Бриллюэна, фиксируемого ориентацией поляризатора и анализатора поляризации. Для этой цели удобно записать внутризонный ток вдоль направления $\mathbf{e}_i$ в виде:

$$\mathbf{J}_i^e(t) = \frac{e}{\hbar}\sum_s \mathbf{e}_i n_i^e \alpha_{i,s}^e \cos(\mathbf{k}\mathbf{e}_i)\sin\left(s\frac{e\mathbf{A}(t)\mathbf{e}_i}{\hbar c}\right). \quad (10)$$

Восстановление профиля зоны вблизи направления $\mathbf{e}_i$, таким образом, сводится к измерению серии спектров гармоник высокого порядка для различных интенсивностей поля накачки и поиска набора параметров $\alpha_{i,s}^e$, обеспечивающего наилучшее согласие результатов расчетов одновременно со всеми измеренными спектрами высоких гармоник. Полная зонная структура твердого тела (рис. 4) восстанавливается участок за участком на основе поляризационных ГГВП-измерений, позволяющих определить профиль $\varepsilon = \varepsilon(\mathbf{k})$ на отдельных участках зоны вблизи направлений зоны Бриллюэна, определяемых геометрией поляризационных измерений в ГГВП-экспериментах.

Таким образом, представленный в настоящей работе анализ показывает, что свойства оптических гармоник высокого порядка, связанных с наводимыми лазерным полем внутризонными процессами в твердом теле, содержат информацию об электронной зонной структуре твердого тела. Изменением по-

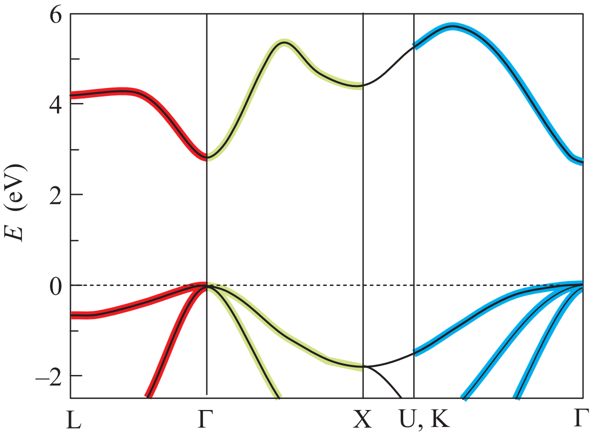

Рис. 4. (Цветной онлайн) Структура электронных зон кристалла ZnSe с гранецентрированной кристаллической решеткой. Регистрация сигнала оптических гармоник, генерируемых электронными токами в каждом из направлений зоны Бриллюэна, позволяет восстановить закон дисперсии для каждого из направлений зоны – ГL, ГX и ГK (показаны красными, желтыми и синими участками, соответственно)

ляризации поля сверхкоротких лазерных импульсов среднего ИК диапазона удается осуществить управляемое зондирование электронных зон твердого тела электронными и дырочными волновыми пакетами. На этой основе реализуется полностью оптическая методика измерения электронной зонной структуры твердого тела.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты 14-29-07182, 16-02-00843), Российского научного фонда (проект 14-12-00772) и фонда Роберта Уелча (грант A-1801).

1. A. Lanzara et al., Nature **412**, 510 (2001).
2. A. Bostwick, T. Ohta, T. Seyller, K. Horn, and E. Rotenberg, Nat. Phys. **3**, 36 (2007).
3. Y. L. Chen et al., Science **325**, 178 (2009).
4. M. von Laue, *Concerning the detection of x-ray interferences*, Nobel Lecture (1914).
5. W.L. Bragg, Proc. Cambridge Philos. Soc. **17**, 43 (1913).
6. A. Damascelli, Z. Hussain, and Z. X. Shen, Rev. Mod. Phys. **75**, 473 (2003).
7. G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, D. D. Klug, P. B. Corkum, and T. Brabec, Phys. Rev. Lett. **113**, 073901 (2014).
8. G. Vampa, T. J. Hammong, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, and P. B. Corkum, Nature **25**, 462 (2015).

9. G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, D. D. Klug, and P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **115**, 193603 (2015).
10. S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, Nature Phys. **7**, 138 (2011).
11. O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, Nature Photonics **8**, 119 (2014).
12. M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schubert, M. Knorr, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, Nature **523**, 572 (2015).
13. A. A. Lanin, A. A. Voronin, E. A. Stepanov, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, Opt. Lett. **39**, 6430 (2014).
14. E. A. Stepanov, A. A. Lanin, A. A. Voronin, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, Phys. Rev. Lett. **117**, 043901 (2016).
15. G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, P. B. Corkum, and T. Brabec, Phys. Rev. B **91**, 064302 (2015).
16. A. Lanin, E. Stepanov, A. Voronin, A. Fedotov, and A. Zheltikov, *Conference on Lasers and Electro-Optics, OSA Technical Digest (Optical Society of America, 2016)*, FF1M.5.
17. T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. **72**, 545 (2000).
18. P. B. Corkum and F. Krausz, Nature Phys. **3**, 381 (2007).
19. P. N. Butcher and D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (1990).
20. A. A. Lanin, A. A. Voronin, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, Sci. Rep. **4**, 6670 (2014).
21. K. Freericks, A. Y. Liu, A. F. Kemper, and T. P. Devereaux, Phys. Scr. **151**, 014062 (2012).
22. F. Bloch, Z. Phys. **52**, 555 (1929).