Розділ 3. Нелінійні явища, пов'язані з кубічною нелінійною сприйнятливістю $\chi^{(3)}$.

Лекція 3-1(7). Розвиток моделі ангармонійного осцилятора. Квадратичний електрооптичний ефект (ефект Керра). Двофотонне поглинання.

Розвиток моделі ангармонійного осцилятора.

Розглянемо тепер ті нелінійні оптичні ефекти, що пов'язані з кубічним поляризаційним членом в рівнянні

$$x(\omega_p) = A(\omega_r + \omega_s)\exp i(\omega_r + \omega_s)t = A(\omega_p)\exp i\omega_p t$$

В моделі осцилятора тепер $q_2 = 0$ і рівняння

$$m\ddot{x} + mg\dot{x} + m\omega_0^2 x + mq_2 x^2 + mq_3 x^3 = -eE_1\cos\omega_1 t - eE_2\cos\omega_2 t - eE_3\cos\omega_3 t$$

В результаті отримуємо співвідношення, яке аналогічно формулі (34) в лекції 1-1:

$$\chi_{xxxx}(\omega_p = \omega_r + \omega_s + \omega_t) = \frac{Nq_3 e^4}{m^3\varepsilon_0 D(\omega_p)D(\omega_r)D(\omega_t)}, \tag{1}$$

де $\omega_r, \omega_s, \omega_t$ дорівнюють $\pm\omega_1, \pm\omega_2, \pm\omega_3$. У довгохвильовій області, коли частота ω_0 велика у порівнянні з частотами $\omega_p, \omega_r, \omega_s, \omega_t$ формула для нелінійної сприйнятливості спрощується

$$\chi_{xxxx} = (n_0^2 - 1)q_3 e^2 / m^2\omega_0^6 \tag{2}$$

або якщо виразити її через зміщення $\bar{x}'$, що визначається співвідношенням $mq_3\bar{x}'^3 = m\omega_0^2\bar{x}'$

$$\chi_{xxxx} = (n_0^2 - 1)e^2 / m^2\omega_0^4\bar{x}'^2 \tag{3}$$

Виміряні значення коефіцієнтів, обумовлених зв'язаними (валентними) електронами, виявились дещо більшими, ніж приведеними раніше:

$$Ge:\ c_{1111} \approx 1.4\cdot 10^{-18}\ м^2\cdot B^{-2},\ \ c_{1122} \approx 9\cdot 10^{-19}\ м^2\cdot B^{-2},$$

$$Si:\ c_{1111} \approx 8\cdot 10^{-20}\ м^2\cdot B^{-2},\ \ c_{1122} \approx 4\cdot 10^{-20}\ м^2\cdot B^{-2}.$$

Квадратичний електрооптичний ефект (ефект Керра).

Ефект кубічної зворотної сили зводиться до зміни резонансної частоти, яка стає рівною ω_0' у відповідності з формулою

$$(\omega_0')^2 = \omega_0^2 + (3q_3 e^2 E_0^2)/m^2\omega_0^4 \tag{4}$$

що веде до зміни показника заломлення

$$\Delta n = -\frac{3q_3 e^2(n^2 - 1)E_0^2}{2nm^2\omega_0^4(\omega_0^2 - \omega^2)} \tag{5}$$

або якщо виразити його через питоме зміщення $\bar{x}'$, що було визначене вище:

$$\Delta n = -\frac{3e^2(n^2 - 1)E_0^2}{2nm^2\omega_0^2(\omega_0^2 - \omega^2)\bar{x}'^2} \tag{6}$$

Підставив звичайні чисельні значення, отримаємо для $\omega^2 << \omega_0^2$, $\Delta n = 0.9\cdot 10^{-16} E_0^2$, де E_0^2 вимірюється у В·см$^{-1}$.

Двофотонне поглинання.

Як ми розглядали у попередніх лекціях якщо $P_{NL} = \varepsilon_0 E^2 d$ (див. рівняння (6) без індексів, лекція 1-2), то це еквівалентно припущенню, що

$$\varepsilon = \varepsilon^{(0)} + \varepsilon^{(1)} E$$

У наступному порядку по полю

$$\varepsilon = \varepsilon^{(0)} + \varepsilon^{(1)} E + \varepsilon^{(2)} E^2$$

або

$$P = \varepsilon_0 \chi E = \varepsilon_0 (\chi_0 E + E^2 d + e E^3) \tag{7}$$

Член $P = \varepsilon_0 e E^3$ відповідає чотирифотонному розсіюванню і може привести до генерації за рахунок нелінійної поляризації:

$$P^{(\omega_4)} = \varepsilon_0 e E_1^{(\pm\omega_1)} E_2^{(\pm\omega_2)} E_3^{(\pm\omega_3)}$$

на частотах $\omega_4 = \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$.

Якщо коефіцієнт e в (1) представляє собою комплексну одиницю, то як видно з рівняння

$$-\int_S (\mathbf{E} \times \mathbf{H}) \mathbf{n} ds = \int_V \left[\mathbf{E}\mathbf{j} + \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}\mathbf{E}}{2} + \frac{\mu_0 \mathbf{H}\mathbf{H}}{2} \right) + \right.$$

$$\left. + \mathbf{E} \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \mu_0 \mathbf{H} \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \right] dv$$

для потужності втрат маємо $P = \overline{\mathbf{E} \frac{d\mathbf{P}}{dt}}$, величина потужності, що поглинається у середовищі, буде пропорційна E^4.

Вираз для імовірності цього процесу другого порядку можна отримати як узагальнення формули, для непрямих переходів

$$P_{mv}(t) = \frac{2\pi |H_{i0}|^2 |H_{mi}^{\pm}|^2}{\hbar (\Delta E_0 - h\nu)^2} \rho_v(E_v) t \tag{8}$$

де $\rho_v(E_v)$ - число станів поблизу енергії E_v у валентній зоні, що приходиться на одиничний інтервал енергій. H_{i0} - оптичні матричні елементи, $H_{mi}^{\pm}$ - матричні елементи електрон-фононної взаємодії (див. **рис. 2**). Таким чином, швидкість переходу на одиницю об'єму з валентної зони у зону провідності записується у вигляді

$$\frac{P_{vc}(t)}{t} =$$

$$\frac{2\pi}{\hbar^3}\rho(\hbar\omega_t)\left\{\sum_j\left[\frac{|H_{vj}(\omega_1)||H_{jc}(\omega_2)|}{\omega_{jv}-\omega_1}+\frac{|H_{vj}(\omega_2)||H_{jc}(\omega_2)|}{\omega_{jv}-\omega_2}\right]^2 + \right. \quad (9)$$

$$\left. + \sum_l\left[\frac{|H_{cl}(\omega_1)||H_{lv}(\omega_2)|}{\omega_{cl}-\omega_1}+\frac{|H_{cl}(\omega_2)||H_{lv}(\omega_2)|}{\omega_{cl}-\omega_2}\right]^2\right\}$$

де $\rho(\hbar\omega_t)$ є приведена густина станів для переходів між валентною зоною і зоною провідності, що визначається формулою

$$\rho(h\nu) = V4\pi(2m_r)^{3/2}(h\nu - E_G)^{1/2}/h^3 \quad (10)$$

де V - об'єм кристалу, m_r - приведена маса ($1/m_r = 1m_e + 1/m_h$), E_G - енергія забороненої зони. Матричні елементи визначаються формулою

$$|H_{vj}(\omega_1)|^2 = \frac{2e^2 I(\omega_1)|\mathbf{p}_{vj}|^2}{3m_0^2 n\varepsilon_0 c\omega_1} \quad (11)$$

і аналогічними їй для інших елементів. Відповідна величина $\mathbf{k}$ визначається співвідношенням

$$\hbar\omega_t = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = E_G + \hbar^2\mathbf{k}^2/2m_r \quad (12)$$

де m_r - приведена маса елетронно-діркової пари, яка створена у процесі двофотонного поглинання. Якщо можна обчислити імовірність переходу $P_{cv}(t)$, то далі за допомогою формули для коефіцієнта поглинання

$$K = \frac{\hbar\omega P_{cv}(t)}{I(\nu)Vt} = \frac{e^2|p_{m0}|^2\rho(\omega_{m0})}{6m_0^2 n\varepsilon_0 c\nu V} \quad (13)$$

(де p_{m0} - матричний елемент переходу обчислений за допомогою виразу $p_{m0}(k_0) \approx -i\hbar\int u_c^*(r,k_0)\nabla u_v(r,k_0)dr$, k_0 - відповідає мінімальній відстані між зонами. $\rho(\omega_{m0})\hbar\Delta\omega_{m0}$ - число пар рівнів, енергетична відстань між якими знаходиться у межах від $\hbar\omega_{m0}$ до $\hbar\omega_{m0} + \hbar\Delta\omega_{m0}$. V -об'єм кристалу),

Компонента поляризації з кутовою частотою ω_1 виражається через лінійну сприйнятливість χ_{xx} та нелінійну сприйнятливість χ_{xxxx} наступним чином:

$$P_x(\omega_1) = \varepsilon_0[\chi_{xx}E(\omega_1) + \gamma\chi_{xxxx}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_1 + \omega_2)E(\omega_1)E(\omega_2)^2] \quad (14)$$

де множник γ включено у кубічний поляризаційний член, щоби врахувати всі комбінації фур'є компонент з частотами $\pm\omega_1$ та $\pm\omega_2$. які були відповідальні за появу членів з частотою ω_1.