

研究简报

关于激子谱线近傍的三阶非线性光学系数

甘子钊 杨国桢
(北京大学物理系) (中国科学院物理研究所)

1981 年 7 月 8 日收到

提 要

本文计算了在激子谱线近傍, 由于激子谱线的吸收饱和而引起的三阶非线性光学系数, 并具体估计了 GaAs 的激子谱线和 Cu_2O 的黄系激子谱线的情况.

在文献 [1, 2] 中, 我们证明了在强的相干光的作用下, 半导体中的激子的激发是类似于一个二能级系统的相干激发的; 一个直接的结果是激子线应当有吸收饱和现象. 文献 [3] 报道了, 在 GaAs 激子线上观察到的吸收饱和现象. 显然, 由于吸收饱和, 当入射光频率近于激子谱线时, 半导体应有较强的三阶非线性光学效应. 文献 [4] 报道了 GaAs 激子谱线近傍由此而产生的光学双稳现象. 本文将用文献 [1, 2] 中发展的理论, 对在激子谱线近傍的三阶非线性光学系数作一估计.

一、激子的相干激发

为了叙述的方便, 本节先简要叙述文献 [1, 2] 中的有关结果.

讨论在简单的二能带模型中, Wannier 激子的相干激发. 设系统在相干光作用下的状态波函数为

$$\psi = \prod_{\mathbf{k}} \left(\alpha(\mathbf{k}) + \beta(\mathbf{k}) D^+ \begin{pmatrix} \mathbf{k} + \mathbf{q} \\ -\mathbf{k} \end{pmatrix} \right) \psi_0. \quad (1.1)$$

这里 ψ_0 是系统的基态波函数; $D^+ \begin{pmatrix} \mathbf{k} + \mathbf{q} \\ -\mathbf{k} \end{pmatrix} = a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^+ b_{-\mathbf{k}}^+$, $a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^+$ 和 $b_{-\mathbf{k}}^+$ 分别是波矢为 $\mathbf{k} + \mathbf{q}$ 的电子和波矢为 $-\mathbf{k}$ 的空穴的产生算符; \mathbf{q} 是入射光波的波矢; $\alpha(\mathbf{k})$ 和 $\beta(\mathbf{k})$ 是时间的函数. (1.1) 式其实是电子空穴对——激子的相干态波函数, 可以引入

$$\delta(\mathbf{k}) = \beta(\mathbf{k})/\alpha(\mathbf{k}),$$
$$\psi \propto \exp \left(\sum_{\mathbf{k}} \delta(\mathbf{k}) D^+ \begin{pmatrix} \mathbf{k} + \mathbf{q} \\ -\mathbf{k} \end{pmatrix} \right) \psi_0. \quad (1.2)$$

来描述. $\delta(\mathbf{k})$ 的物理意义是波矢为 $\mathbf{k} + \mathbf{q}$ 的电子和波矢为 $-\mathbf{k}$ 的空穴对的激发振幅. 假如入射光的频率很接近某一分立的激子谱线, 而与其它激子谱线相距较远, 光强又不是

特别强的情况下,可以近似认为

$$\delta(\mathbf{k}) = l_1 f_1(\mathbf{k}) e^{-i\omega t}. \quad (1.3)$$

$f_1(\mathbf{k})$ 是相应的这条激子谱线的量子态的 Bloch 表象波函数(归一化了的 Bloch 表象波函数); ω 是光波的圆频率; l_1 是这种激子的激发振幅;在一定的意义下,可以说 $|l_1|^2$ 相应于激发的激子的数目. 在有效质量近似下, $f_1(\mathbf{k})$ 满足的方程为 [5]

$$(E_c(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_v(\mathbf{k}))f_1(\mathbf{k}) + \vartheta(f_1(\mathbf{k})) = E_{cx,1}(\mathbf{q})f_1(\mathbf{k}), \quad (1.4)$$

其中 $E_c(\mathbf{k})$ 和 $E_v(\mathbf{k})$ 是导带和价带的能量-波矢关系; $E_{cx,1}(\mathbf{q})$ 是相应的激子的能量. $\vartheta(f_1(\mathbf{k}))$ 的定义为

$$\vartheta(f_1(\mathbf{k})) = \sum_{\mathbf{q}} v(\mathbf{q})f_1(\mathbf{k} - \mathbf{q}),$$

$v(\mathbf{q})$ 是电子和空穴相互作用势的傅氏分量.

这时,激发振幅 l_1 满足的方程近似为

$$i\hbar \frac{dl_1}{dt} = \hbar\Delta\omega_1 l_1 + A_1(1 - \sigma_1 l_1^2) + \alpha(l_1)|l_1|^2 l_1. \quad (1.5)$$

这里

$$\begin{aligned} \hbar\Delta\omega_1 &= E_{cx,1}(\mathbf{q}) - \hbar\omega, \\ A_1 &= \sum_{\mathbf{k}} f_1^*(\mathbf{k}) \left(\frac{e}{mc} \mathbf{A}_0 \cdot \mathbf{P}_{cv}(\mathbf{k}) \right) = \sum_{\mathbf{k}} f_1^*(\mathbf{k}) G_1(\mathbf{k}), \end{aligned}$$

其中 \mathbf{A}_0 是入射光波矢量势的振幅,即入射光矢量势为 $\mathbf{A} = \mathbf{A}_0 e^{-i\omega t} + \mathbf{A}_0^* e^{i\omega t}$; $\mathbf{P}_{cv}(\mathbf{k})$ 是动量算符 \mathbf{P} 在波矢为 \mathbf{k} 的价带状态与波矢为 $\mathbf{k} + \mathbf{q}$ 的导带状态之间的矩阵元. 而

$$\begin{aligned} \sigma_1 &= \sum_{\mathbf{k}} |f_1(\mathbf{k})|^2 f_1(\mathbf{k}) G_1(\mathbf{k}) / \sum_{\mathbf{k}} f_1^*(\mathbf{k}) G_1(\mathbf{k}); \\ \alpha(l_1) &= - \sum_{\mathbf{k}} f_1^*(\mathbf{k}) \vartheta \left(\frac{|f_1(\mathbf{k})|^2 f_1(\mathbf{k})}{1 + |l_1|^2 |f_1(\mathbf{k})|^2} \right) + |f_1(\mathbf{k})|^2 \\ &\quad \cdot f_1(\mathbf{k}) \vartheta \left(\frac{f_1^*(\mathbf{k})}{1 + |l_1|^2 |f_1(\mathbf{k})|^2} \right). \end{aligned}$$

在文献 [1, 2] 中我们已分析过方程 (1.5) 的性质,说明 σ_1 项相应于饱和, $\alpha(l_1)|l_1|^2$ 相应于激子谱线随激发程度而产生的频率移动.

经过一定的变换,方程 (1.5) 可变为一个等效的磁矩 \mathbf{m} 在外场 \mathbf{H} 下的运动:

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{m}}{dt} &= \mathbf{m} \times \mathbf{H}, \\ |\mathbf{m}| &= 1/2, \quad \mathbf{H} = (0, -\hbar, \delta\omega), \end{aligned} \quad (1.6)$$

其中 \hbar 和 $\delta\omega$ 的定义为

$$\hbar = \frac{2}{\hbar} A_1 \sqrt{\sigma_1}, \quad \delta\omega = \Delta\omega_1 + \frac{\alpha(l_1)|l_1|^2}{\hbar}. \quad (1.7)$$

磁矩 \mathbf{m} 与 l_1 的关系为

$$l_1 = -i \frac{1}{\sqrt{|\sigma_1|}} \frac{m_x + im_y}{\frac{1}{2} + m_z}$$

$$|l_1|^2 = \frac{1}{|\sigma_1|} \frac{\frac{1}{2} - m_x}{\frac{1}{2} + m_x}, \quad (1.8)$$

我们可以唯象地引入横向弛豫时间 τ_T 和纵向弛豫时间 τ_l 来描述激子谱线的弛豫. 这时方程 (1.6) 可写为

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = \mathbf{m} \times \mathbf{H} - \left(\frac{\hat{1}}{\tau}\right) (\mathbf{m} - \mathbf{m}_0), \quad (1.9)$$

其中

$$\mathbf{m}_0 = \left(0, 0, \frac{1}{2}\right),$$

$$\left(\frac{\hat{1}}{\tau}\right) = \begin{pmatrix} \frac{1}{\tau_T} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\tau_T} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\tau_l} \end{pmatrix}.$$

与这样的激子相干激发态相连系的单位体积电偶极矩的频率为 ω 的成分为

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_\omega &= -i \frac{e}{m\omega} \sum_{\mathbf{k}} \alpha^*(\mathbf{k}) \beta(\mathbf{k}) \mathbf{P}_{vc}(\mathbf{k}) \\ &\approx -i \frac{e}{m\omega} \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{f_1(\mathbf{k})}{1 + |l_1|^2 |f_1(\mathbf{k})|^2} \mathbf{P}_{vc}(\mathbf{k}) \right) l_1 e^{-i\omega t}. \end{aligned} \quad (1.10)$$

以上的这些结果的详细说明见文献 [1, 2].

二、激子谱线近傍的三阶非线性光学系数

在光强不是特别大时, 激发引起的激子谱线的频移 $\frac{1}{\hbar} \alpha(l_1) |l_1|^2$ 可以略去, $\delta\omega_1 = \Delta\omega_1$. 现在考虑激发达到一个稳态解. (1.9) 式型的 Bloch 方程的稳态解是熟知的, 即

$$\begin{aligned} m_x &= \frac{1}{2} \tau_T h / (1 + \tau_T^2 \omega_r^2), \\ m_y &= -\frac{1}{2} \tau_T h (\tau_T \Delta\omega) / (1 + \tau_T^2 \omega_r^2), \\ m_z &= \frac{1}{2} (1 + \tau_T^2 \Delta\omega_1^2) / (1 + \tau_T^2 \omega_r^2). \end{aligned} \quad (2.1)$$

这里

$$\omega_r^2 = \Delta\omega_1^2 + \frac{\tau_l}{\tau_T} h^2. \quad (2.2)$$

代入得到 l_1 为

$$|l_1|^2 = \frac{1}{2} \frac{\tau_l}{\tau_T} h^2 / \left(\frac{1}{\tau_T^2} + \Delta\omega_1^2 + \frac{1}{2} h^2 \left(\frac{\tau_l}{\tau_T} \right) \right). \quad (2.3)$$

而电偶极矩 P_ω 为

$$P_\omega = \left(\frac{e}{m\omega}\right)^2 \frac{E_0}{\hbar} \left(\sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{f_1(\mathbf{k})}{1 + |l_1|^2 |f_1(\mathbf{k})|^2} P_{vc}(\mathbf{k})\right)\right) \left(\sum_{\mathbf{k}} f_1(\mathbf{k}) \cdot \left(P_{cv}(\mathbf{k}) \cdot \frac{\mathbf{E}_0}{E_0}\right)\right) \left(\frac{\Delta\omega_1 + i\frac{1}{\tau_T}}{\Delta\omega_1^2 + \left(\frac{1}{\tau_T}\right)^2 + \frac{1}{2} \hbar^2 \left(\frac{\tau_l}{\tau_T}\right)}\right) e^{-i\omega t}, \quad (2.4)$$

其中 $E_0 = i\frac{\omega}{c} A_0$ 是电场的振幅.

按 (1.7) 式, $\hbar l_1$ 是正比于外场振幅的. 因此, (2.4) 式给出的电偶极矩与外场的关系是非线性的. 把 (2.4) 式对外场振幅展开, 一阶项是激子跃迁贡献的一阶极化, 三阶项是激子跃迁的饱和贡献的三阶极化. 不难得到, 这个一阶极化率张量为

$$\chi_{ij}^{(1)}(-\omega, \omega) = \left(\frac{e}{m\omega}\right)^2 \frac{1}{\hbar} \left(\sum_{\mathbf{k}} f_1(\mathbf{k}) P_{vc,i}(\mathbf{k})\right) \left(\sum_{\mathbf{k}} f_1^*(\mathbf{k}) P_{cv,i}(\mathbf{k})\right) \cdot \tau_T \frac{\tau_T \Delta\omega_1}{1 + (\tau_T \Delta\omega_1)^2}, \quad (2.5)$$

其中 $P_{vc,i}(\mathbf{k})$ 是指矢量 P_{vc} 的 i 分量. 这个三阶极化率张量为

$$\chi_{ijk}^{(3)}(-\omega, \omega, -\omega, \omega) = -\chi_{ij}^{(1)}(-\omega, \omega) 4 \left(\frac{e}{m\hbar\omega}\right)^2 \cdot \left(\sum_{\mathbf{k}} f_1^*(\mathbf{k}) P_{cv,k}(\mathbf{k})\right) \left(\sum_{\mathbf{k}} |f_1(\mathbf{k})|^2 f_1(\mathbf{k}) P_{vc,l}(\mathbf{k})\right) \left(\frac{\tau_l}{\tau_T}\right) \cdot \tau_T^2 \left(\frac{1}{1 + (\Delta\omega_1 \tau_T)^2}\right). \quad (2.6)$$

(2.5) 和 (2.6) 式给的是激子谱线贡献的反常色散和三阶非线性. 当然, 如果激子谱线离吸收边很近时, 还应考虑带边引起的一阶极化率的反常色散^[6], 以及带间跃迁贡献的三阶非线性^[7].

现在, 讨论两个具体的例子.

1. GaAs 的激子谱线

GaAs 的激子态的结构是比较复杂的^[8], 但不影响这里讨论的问题的物理本质, 还是可以把它简化成一对简单能带构成的类氢激子态来考虑. 类氢激子态的 $1s$ 波函数为

$$f_1(\mathbf{k}) = \frac{8}{\sqrt{\pi}} \frac{a^{3/2}}{(1 + (ak)^2)^2}, \quad (2.7)$$

a 是类氢激子的玻尔半径. 可以用实验测得的 GaAs 激子的电离能 $E_1 = (4.2 \pm 0.3) \times 10^{-3} \text{eV}$ ^[9], 以及 GaAs 的静电介电常数的值, 来推算得 GaAs 的激子态的玻尔半径为

$$a = 1.39 \times 10^{-6} \text{cm}.$$

GaAs 的价带 $\mathbf{k} = 0$ 的状态到导带 $\mathbf{k} = 0$ 的状态的跃迁是容许跃迁, 所以可在 (2.5), (2.6) 式中把 $P_{cv}(\mathbf{k})$ 用 $P_{cv}(0)$ 来近似. $P_{cv}(0)$ 的值按照文献 [10] 的估计, 可取

$$|P_{cv}(0)|^2 \approx 1.46 \cdot 10^{-38} \text{g}^2 \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{sec}^{-2}.$$

把(2.7)式和 a 及 P_{cv} 的估计值代入, 可得到

$$\begin{aligned}\chi^{(1)} &= \left(\frac{e}{m\omega}\right)^2 \frac{1}{\hbar} |P_{cv}(0)|^2 \frac{\tau_T}{\pi a^3} \frac{\Delta\omega\tau_T}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2} \\ &\approx 8.62 \cdot 10^{10} \tau_T \frac{\Delta\omega\tau_T}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2}.\end{aligned}\quad (2.8)$$

$$\begin{aligned}\chi_{zzzz}^{(3)} &= -\chi^{(1)} \frac{14e^2}{(m\hbar\omega)^2} |P_{cv}(0)|^2 \left(\frac{\tau_l}{\tau_T}\right) \tau_T^2 \frac{1}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2} \\ &\approx -9.68\chi^{(1)} \cdot 10^{21} (\tau_T)^2 \left(\frac{\tau_l}{\tau_T}\right) \frac{1}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2} \text{dyn}^{-1} \cdot \text{cm}^2.\end{aligned}\quad (2.9)$$

关于激子谱线的横向和纵向弛豫时间是难以作出确切的估计的, 实验上的谱线宽度总有非均匀展宽的成分. 如果取 $\tau_T = 4 \times 10^{-12} \text{sec}$, $\tau_l/\tau_T = 3$, 那么, (2.8), (2.9) 式给出的三阶非线性光学系数的值便为

$$\begin{aligned}\frac{\chi_{zzzz}^{(3)}}{\chi^{(1)}} &\approx -4.6 \cdot 10^{-1} \frac{1}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2} \text{dyn}^{-1} \cdot \text{cm}^2, \\ \chi_{zzzz}^{(3)} &\approx -1.6 \cdot 10^{-1} \frac{(\Delta\omega\tau_T)}{(1 + (\Delta\omega\tau_T)^2)^2} \text{dyn}^{-1} \text{cm}^2.\end{aligned}$$

图 1 给出 $\chi_{zzzz}^{(3)}$ 随 $\Delta\omega$ 的变化.

从文献 [3] 中, 可得出 GaAs 激子谱线的饱和参量的值, 由此可推算出 $\chi^{(3)}/\chi^{(1)}$ 的值. 结果与这里得到的估计值是相近的. 考虑到这里的许多参量选择上的不确定性, 更定量的比较是难以作出的.

2. Cu_2O 的激子谱线

另一个例子是考虑 Cu_2O 激子谱线中黄系的 $n = 2$ 谱线. 关于它的性质文献 [5, 11, 12] 都有过比较仔细的分析. 它是 Γ_7^+ 对称性的价带与 Γ_6^+ 对称性的导带形成的类氢激子态, 相应于主量子数 $n = 2$ 和角量子数 $l = 1$. 设光的偏振方向为 z 轴, 则相应的类氢波函数为

$$f_l(\mathbf{k}) = \left(\frac{3}{4\pi}\right)^{1/2} \cos\theta \frac{128}{(3\pi)^{1/2}} \frac{ak}{(1 + 4(ak)^2)^3} (2\pi a)^{3/2}, \quad (2.10)$$

a 是类氢激子的玻尔半径.

Γ_7^+ 和 Γ_6^+ 间是禁戒跃迁. 因此, 在 (2.5), (2.6) 式中应近似选取

$$P_{cv,z}(\mathbf{k}) \approx Da k_z, \quad (2.11)$$

D 是一个常数. 可从 Cu_2O 黄系激子的振子强度及激子电离能^[5]估计得

$$\begin{aligned}a &\approx 8.6 \cdot 10^{-8} \text{cm}, \\ D &\approx 7.2 \cdot 10^{-21} \text{g} \cdot \text{cm} \cdot \text{sec}^{-1}.\end{aligned}$$

把 (2.10) 式及这些估计值代入, 便得到在 Cu_2O 黄系 $n = 2$ 激子谱线近傍

$$\begin{aligned}\chi^{(1)} &= \frac{1}{32\pi} \left(\frac{e}{m\omega}\right)^2 \frac{D^2}{\hbar a^3} \tau_T \frac{\tau_T \Delta\omega}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2} \\ &\approx 2.8 \cdot 10^{10} \tau_T \frac{\Delta\omega\tau_T}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2},\end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\chi_{zzzz}^{(3)}}{\chi^{(1)}} &= -\frac{9}{4} \left(\frac{e}{m\hbar\omega} \right)^2 D^2 \tau_T^2 \left(\frac{\tau_l}{\tau_T} \right) \frac{1}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2} \\ &\approx -1.22 \cdot 10^{18} (\tau_T)^2 \left(\frac{\tau_l}{\tau_T} \right) \frac{1}{1 + (\Delta\omega\tau_T)^2} \text{ dyn}^{-1} \cdot \text{cm}^2. \end{aligned} \quad (2.12)$$

如果,也选取 $\tau_T = 4 \cdot 10^{-12} \text{sec}$, $\tau_l/\tau_T = 3$. 就得到 $\chi_{zzzz}^{(3)}$ 的估计值为

$$\chi_{zzzz}^{(3)} \approx -6.4 \cdot 10^{-6} \frac{(\Delta\omega\tau_T)}{(1 + (\Delta\omega\tau_T)^2)^2} \text{ dyn}^{-1} \cdot \text{cm}^2.$$

图 2 是 $\chi_{zzzz}^{(3)}$ 与 $\Delta\omega$ 的关系.

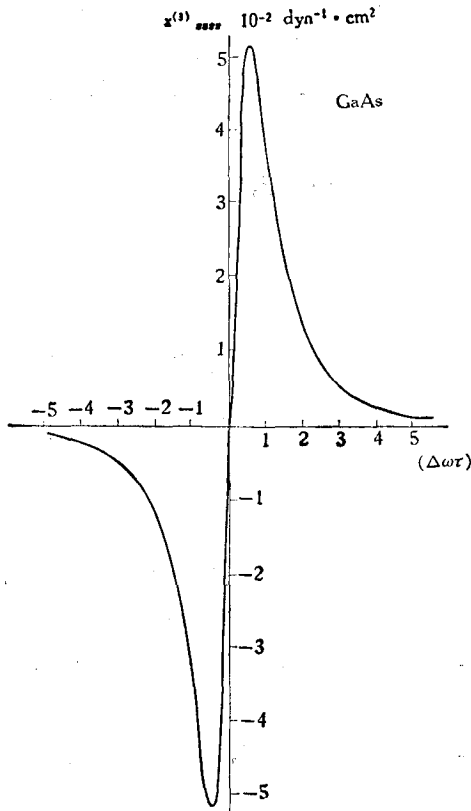


图 1 GaAs 激子谱线近旁的三阶非线性光学系数
 $\tau = 4 \times 10^{-12} \text{sec}$; $\Delta\omega = \omega - \omega_{ex}$

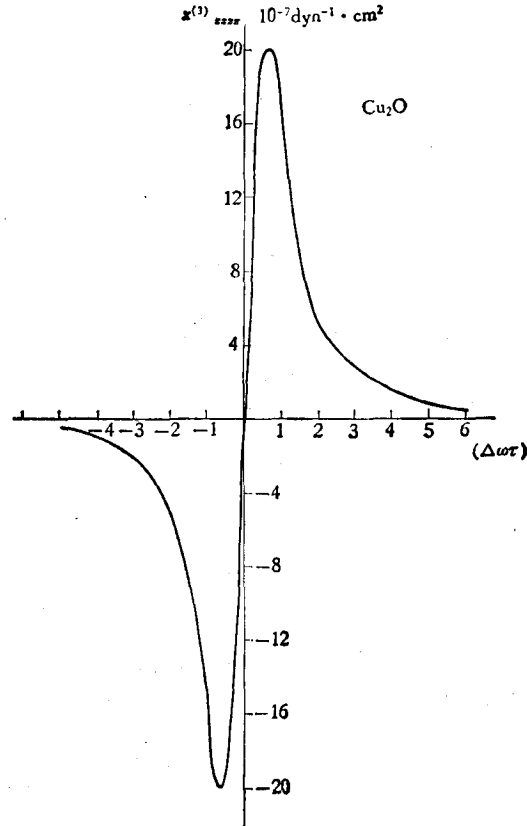


图 2 Cu_2O 黄系 $n=2$ 激子谱线近旁的 $\chi_{zzzz}^{(3)}$
 $\tau = 4 \times 10^{-12} \text{sec}$; $\Delta\omega = \omega - \omega_{ex}$

从以上讨论可以看出,在比较锐的激子谱线近傍,会有比较显著的三阶非线性。所以,研究半导体的激子谱线近傍的三阶非线性光学现象,如简并的光学四波混频,光学克尔效应,光学双稳现象等,是很有意思的。

作者感谢沈元壤教授对这项工作的关心和支持。

参 考 文 献

- [1] 甘子钊、杨国桢, 物理学报, **30**(1981), 878; 1041.
- [2] Gan Zi-zhao (甘子钊), Yang Guo-zhen (杨国桢), Internal Report of International Centre For

- Theoretical Physics IC/80/60, TRIESTE, ITALY.
- [3] H. M. Gibbs, *Solid State Comm.*, **30**(1979), 271.
 - [4] H. M. Gibbs, S. L. McCall, T. N. C. Venkatesan, A. C. Gossard, A. Passner, W. Wiegmann, *Appl. Phys. Lett.*, **35**(1979), 451.
 - [5] R. S. Knox, *Solid State Physics*, Supplement 5, Academic Press, New York and London, (1963).
 - [6] M. Cardona, *Solid State Physics*, Supplement 11, Academic Press, New York and London, (1969).
 - [7] 甘子钊、杨国桢, *物理学报*, **31** (1982), 237.
 - [8] A. Baldereschi, N. C. Lipari, *Phys. Rev. B*, **3**(1971), 439.
 - [9] S. B. Nam, D. C. Reynolds, C. W. Litton, R. J. Almassy, T. C. Collinc, C. M. Wolfe, *Phys. Rev. B*, **13**(1976), 761.
 - [10] H. Ehrenreich, *J. Appl. Phys.*, **32**(1961), 2155.
 - [11] A. Daunois, J. L. Diess, J. C. Merle, C. Wecker, S. Nikitine, *Eleventh International Conference of the Physics of Semiconductors, Warsaw, (1973)*, 1402.
 - [12] P. Y. Yu, Y. R. Shen, *Phys. Rev. B*, **17**(1978), 4017.

ON THE THIRD ORDER OPTICAL NONLINEARITY NEAR EXCITON LINES

GAN ZI-ZHAO

(*Department of Physics, Peking University*)

YANG GUO-ZHEN

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

In this paper, a theoretical method is presented to calculate the third order optical susceptibility which is induced by the saturation effect of light absorption near exciton lines. In particular, the numerical results of the nonlinear susceptibility are given in both exciton lines of GaAs and exciton lines of the yellow series of Cu_2O .