

磁场中窄禁带半导体的高阶光学性质 (II)

柳 树 政¹⁾

(北京大学物理系)

1983年11月14日收到

提 要

本文讨论了在磁场中,窄禁带半导体在双光子吸收线附近的三阶非线性,并计算了在带边的几个非线性 Faraday 旋转峰和 Voigt 相移峰的位置和相对强度。

一、引 言

从非线性光学的角度看,双光子吸收只是对应于三阶非线性光学极化率的虚部。三阶极化率的一般表达式为^[1]

$$\chi_{\mu\gamma\beta\alpha}^{(3)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1) = -S \frac{1}{6\hbar^3} \sum_{abcd} \rho_a^{(0)} \times \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\gamma R_{cd}^\beta R_{da}^\alpha}{(\omega_{ab} + \omega_3 + \omega_2 + \omega_1 + i\Gamma_{ab})(\omega_{ac} + \omega_2 + \omega_1 + i\Gamma_{ac})(\omega_{ad} + \omega_1 + i\Gamma_{ad})} + \frac{R_{ab}^\gamma R_{bc}^\alpha R_{cd}^\beta R_{da}^\mu}{(\omega_{ab} - \omega_3 - i\Gamma_{ab})(\omega_{ac} + \omega_2 + \omega_1 + i\Gamma_{ac})(\omega_{ad} + \omega_1 + i\Gamma_{ad})} + \frac{R_{ab}^\gamma R_{bc}^\beta R_{cd}^\mu R_{da}^\alpha}{(\omega_{ab} + \omega_3 - i\Gamma_{ab})(\omega_{ac} - \omega_3 - \omega_2 - i\Gamma_{ac})(\omega_{ad} + \omega_3 + i\Gamma_{ad})} + \frac{R_{ab}^\gamma R_{bc}^\beta R_{cd}^\alpha R_{da}^\mu}{(\omega_{ab} - \omega_3 - i\Gamma_{ab})(\omega_{ac} - \omega_3 - \omega_2 - i\Gamma_{ac})(\omega_{ad} - \omega_3 - \omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_{ad})} \right]. \quad (1)$$

式中 $\mu, \gamma, \beta, \alpha$ 表示三个坐标分量; a, b, c, d 表示各个可能的态; S 表示对 $\omega_1\alpha, \omega_2\beta, \omega_3\gamma$ 这三对指标的置换求和; $\rho_a^{(0)}$ 表示能级 a 的 0 阶占有几率; $R_{ab}^\mu = \langle a | R^\mu | b \rangle$, R^μ 是偶极矩 $\mathbf{R}$ 在 μ 方向的投影; $\hbar\omega_{ij} = E_i - E_j$ 。

我们将从这个公式出发,计算和上述双光子跃迁相应的三阶非线性极化率,分析三阶非线性极化率的实部和虚部在双光子吸收线附近的变化。这种分析具有两方面的意义。首先它可以从另一类物理现象来认识双光子跃迁,以补充双光子吸收实验的结果。本文讨论了非线性 Faraday 旋转和非线性 Voigt 相移。其次,如所周知,近年来发生了一系列与三阶非线性光学效应相联系的物理现象,如光学四波混频、光学共轭波的产生、光学双稳等,对在双光子吸收线附近的这些效应的研究,不仅有物理上的意义,也有某些应用的可能。

1) 现在中央广播电视大学工作。

二、InSb 中与双光子吸收相联系的三阶非线性极化率的计算

1. 三阶极化率的表达式

从(1)式可以得到,在双光子吸收线附近,晶体的单一频率的三阶极化率公式为

$$\chi_{\mu\gamma\beta\alpha}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) = \frac{e^4}{6\hbar^3 m^4 \omega^4} \sum_{ac} \frac{\rho_a^{(0)}}{\omega_{ca} - 2\omega - i\Gamma_{ca}} \times \sum_{bd} \left[\frac{p_{ab}^{\mu} p_{bc}^{\gamma} p_{cd}^{\beta} p_{da}^{\alpha} + p_{ab}^{\gamma} p_{bc}^{\mu} p_{cd}^{\beta} p_{da}^{\alpha} + p_{ab}^{\mu} p_{bc}^{\gamma} p_{cd}^{\alpha} p_{da}^{\beta} + p_{ab}^{\gamma} p_{bc}^{\mu} p_{cd}^{\alpha} p_{da}^{\beta}}{(\omega_{ba} - \omega)(\omega_{da} - \omega)} \right], \quad (2)$$

式中 p 是动量算符,每一项对应的跃迁过程如图 1 所示,在双光子吸收线附近的意思是指 $\omega_{ca} \approx 2\omega$.

在我们的具体条件下, a 是价带中的朗道子带, c 是导带中的朗道子带, b, d 则是所有可能的中间态. 在低温下,可以近似认为导带的朗道子带是完全空的,价带的朗道子带是完全满的. 假如我们将每一朗道子带的能量作为 k_z 的函数写作

$$E_{i,k_z} = E_{i,0} + \frac{k_z^2}{2m_{i,0}^*}$$

(抛物线近似),并且只考虑竖直跃迁,再假定 p_{ij}^{μ} 和 Γ_{ij} 是与 k_z 无关的,同时定义

$$W_{\mu\gamma\beta\alpha} = \sum_{bd} \frac{p_{ab}^{\mu} p_{bc}^{\gamma} p_{cd}^{\beta} p_{da}^{\alpha} + p_{ab}^{\gamma} p_{bc}^{\mu} p_{cd}^{\beta} p_{da}^{\alpha} + p_{ab}^{\mu} p_{bc}^{\gamma} p_{cd}^{\alpha} p_{da}^{\beta} + p_{ab}^{\gamma} p_{bc}^{\mu} p_{cd}^{\alpha} p_{da}^{\beta}}{(\omega_{ba} - \omega)(\omega_{da} - \omega)}. \quad (3)$$

可以证明在双光子吸收线附近, $W_{\mu\gamma\beta\alpha}$ 随 k_z 的变化是很缓慢的,这样, (2)式中对初态 a 的求和变为对 k_z 的积分. 完成这个积分可以得到

$$\chi_{\mu\gamma\beta\alpha}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) = \frac{e^5 \sqrt{m_{ca,0}^*}/2}{12\pi c \hbar^4 m^4 \omega^4} \cdot W_{\mu\gamma\beta\alpha} \cdot \frac{iH}{\sqrt{2\hbar\delta\omega + i\hbar\Gamma_{ca}}}. \quad (4)$$

若定义

$E_{ca,0} = E_g + \zeta_{ca}H$ (由文献 [7] 中图 1 可以看出, ζ_{ca} 在 $H \gg 1\text{kG}$ 时可以看作与 H 无关),

$$K_{ca}(\omega, H, \zeta, \Gamma) = \frac{iH}{\omega^4 \cdot \sqrt{2\hbar\delta\omega + i\hbar\Gamma_{ca}}}.$$

则 $\chi_{\mu\gamma\beta\alpha}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \propto K_{ca} \cdot W_{\mu\gamma\beta\alpha} \cdot \sqrt{m_{ca,0}^*}$.

显然, $m_{ca,0}^*$ 是由取定的跃迁决定的,由于导带和价带的非抛物性,当 H 增加时,它也随之增加. 下面我们分别讨论 K_{ca} 和 $W_{\mu\gamma\beta\alpha}$ 的变化规律.

1) K_{ca} 随频率(或磁场)及参量 Γ, ζ 的变化.

(1) 对于取定的跃迁和失谐度(ζ 和 $\delta\omega$ 是常数)

$$K_{ca} \propto \frac{H}{\omega^4} = \frac{2\hbar\omega - E_g - 2\hbar\delta\omega}{\zeta\omega^4}.$$

当 $\hbar\omega = \frac{2}{3}(E_g + 2\hbar\delta\omega)$ 时, K_{ca} 达到极大. 对于 InSb 来说,若取 $\delta\omega = 0$, 则 $\tilde{\nu}_{\max} = 1255\text{cm}^{-1}$.

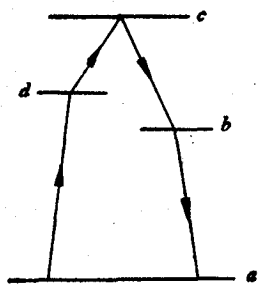


图 1

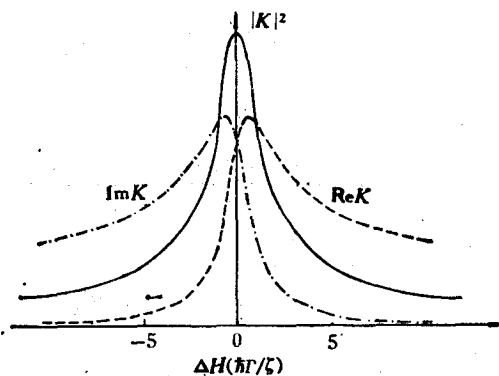


图 2

(2) 对于固定的频率和取定的跃迁, K 随 H 变化的线型如图 2 所示. 其中,

$$\Delta H \approx H - \frac{2\hbar\omega - E_g}{\zeta} = H - H_{\text{res}} \cdot |K|^2$$

的半峰宽与 H_{res} 的比值为 $\frac{2\sqrt{3}\hbar\Gamma}{2\hbar\omega - E_g}$, 可以认为与 ζ 无关. 显然当 $2\hbar\omega \rightarrow E_g$ 时, 将显示不出共振峰的特征来. 若取这个比值为 $1/3$, 则相应的频率下限大约是 $\tilde{\nu}_{\min} = 977 \text{ cm}^{-1}$. 这里我们取 $\Gamma \sim 10^{12} \text{ s}^{-1}$.

(3) 当 $\delta\omega = 0$ 时, $K \propto \frac{1}{\sqrt{\Gamma}}$.

(4) 对于固定的 $\delta\omega$, $K \propto \frac{H}{\omega^4}$. 从而, $\chi_{\mu\gamma\beta\alpha}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \propto \frac{HW_{\mu\gamma\beta\alpha}}{\omega^4}$.

2) $W_{\mu\gamma\beta\alpha}$ 的计算

$W_{\mu\gamma\beta\alpha}$ 取决于具体的能带结构和波函数. 由入射光的频率和偏振方向, 可以根据选择定则, 把每一对共振的能级 a, c 和相应的 H_{res} 确定下来, 从而求出相应的 $W_{\mu\gamma\beta\alpha}$ 值. 下面我们先讨论 $\mathbf{p}$ 的矩阵元, 然后分别就 Faraday 和 Voigt 两种位形进行讨论.

(a) 动量算符 $\mathbf{p}$ 的矩阵元

在磁场中, 根据有效质量近似, 可以把 InSb 的零级波函数表为

$$\phi = \sum_{i=1}^8 f_i(\mathbf{r}) u_{i,0}(\mathbf{r}),$$

其中 $u_{i,0}(\mathbf{r})$ 是 L - K 表象的基矢.

$$\text{定义 } E^{\pm} = \frac{E^x \pm iE^y}{\sqrt{2}}, \quad p^{\pm} = \frac{p^x \pm ip^y}{\sqrt{2}}.$$

可以求得, 对于不同的偏振光, $\mathbf{p}$ 的矩阵元为

$\mathbf{E} // \mathbf{H}$, π 光

$$\Delta n = -1, \quad \Delta s = +1,$$

$$p_{ij}^{\pm} = \left(\sqrt{\frac{2}{3}} a_1^{\dagger*} a_2^{\pm} + \frac{i}{\sqrt{3}} a_1^{\dagger*} a_3^{\pm} - \frac{i}{\sqrt{3}} a_2^{\dagger*} a_3^{\pm} + \sqrt{\frac{2}{3}} a_3^{\dagger*} a_2^{\pm} \right) p, \quad (5)$$

$$\Delta n = +1, \Delta s = -1,$$

$$p_{ij}^{\pm} = \left(\sqrt{\frac{2}{3}} a_2^* a_3^i + \frac{i}{\sqrt{3}} a_2^* a_7^i - \frac{i}{\sqrt{3}} a_8^* a_1^i + \sqrt{\frac{2}{3}} a_6^* a_1^i \right) P, \quad (6)$$

$E \perp H, \sigma_R$ 光

$$\Delta n = -1, \Delta s = 0,$$

$$p_{ij}^{\pm} = \begin{cases} \left(i a_1^* a_3^i - \frac{i}{\sqrt{3}} a_5^* a_1^i + \sqrt{\frac{2}{3}} a_7^* a_1^i \right) P \cdots a \text{ 能级}, & (7) \\ \left(-i a_4^* a_2^i + \frac{i}{\sqrt{3}} a_2^* a_6^i + \sqrt{\frac{2}{3}} a_2^* a_8^i \right) P \cdots b \text{ 能级}. & (8) \end{cases}$$

$E \perp H, \sigma_L$ 光

$$\Delta n = +1, \Delta s = 0,$$

$$p_{ij}^{\pm} = \begin{cases} \left(\frac{i}{\sqrt{3}} a_1^* a_3^i + \sqrt{\frac{2}{3}} a_1^* a_7^i - i a_3^* a_1^i \right) P \cdots a \text{ 能级} & (9) \\ \left(-\frac{i}{\sqrt{3}} a_6^* a_2^i + \sqrt{\frac{2}{3}} a_8^* a_2^i + i a_2^* a_4^i \right) P \cdots b \text{ 能级} & (10) \end{cases}$$

(b) Faraday 位形

Faraday 位形如图 3 所示。图中 $\mathbf{n}$ 是光波传播方向的单位矢量, $\mathbf{n} // \mathbf{H} // z$ 轴。为了方便起见, 对于 n 阶极化矢量 $\mathcal{P}^{(n)}$, 我们定义

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{\pm}^{(n)} &= \frac{\mathcal{P}_x^{(n)} \pm i \mathcal{P}_y^{(n)}}{\sqrt{2}}, \\ \mathcal{P}_{\pm}^{(1)} &= \chi_{\pm\pm}^{(1)} \cdot E^+ + \chi_{\pm\mp}^{(1)} \cdot E^-, \\ \mathcal{P}_{\pm}^{(2)} &= \chi_{\pm\pm\pm}^{(2)} \cdot E^+ E^+ + \chi_{\pm\pm\mp}^{(2)} \cdot E^+ E^- + \chi_{\pm\mp\pm}^{(2)} \cdot E^- E^+ + \chi_{\pm\mp\mp}^{(2)} \cdot E^- E^-, \\ \mathcal{P}_{\pm}^{(3)} &= \chi_{\pm\pm\pm\pm}^{(3)} \cdot E^+ E^+ E^+ + \chi_{\pm\pm\pm\mp}^{(3)} \cdot E^+ E^+ E^- + \chi_{\pm\pm\mp\pm}^{(3)} \cdot E^+ E^- E^+ \\ &\quad + \chi_{\pm\pm\mp\mp}^{(3)} \cdot E^- E^+ E^+ + \chi_{\pm\mp\pm\pm}^{(3)} \cdot E^+ E^- E^- + \chi_{\pm\mp\pm\mp}^{(3)} \cdot E^- E^- E^+ \\ &\quad + \chi_{\pm\mp\mp\pm}^{(3)} \cdot E^- E^- E^+ + \chi_{\pm\mp\mp\mp}^{(3)} \cdot E^- E^- E^-. \end{aligned} \quad (11)$$

以后我们将(11)式简记为 $\mathcal{P}_{\pm}^{(3)} = \chi_{\pm\pm\pm\pm}^{(3)} \cdot E^{\pm} E^{\pm} E^{\pm}$ 。

因为我们只讨论“球形项” D_0 引起的跃迁, 所以利用 W 的对称形式, 得到

$$W_{++++} = \sum_{b,d} \frac{4 p_{ab}^+ p_{bc}^+ p_{cd}^- p_{da}^-}{(\omega_{ba} - \omega)(\omega_{da} - \omega)} = 4 \left| \sum_b \frac{p_{cb}^- p_{ba}^-}{\omega_{ba} - \omega} \right|^2, \quad (12)$$

$$W_{----} = 4 \left| \sum_b \frac{p_{cb}^+ p_{ba}^+}{\omega_{ba} - \omega} \right|^2, \quad (13)$$

$$W_{+---} = W_{-++-} = W_{-+-+} = W_{-+-+} = \left| \sum_b \frac{p_{cb}^+ p_{ba}^- + p_{cb}^- p_{ba}^+}{\omega_{ba} - \omega} \right|^2. \quad (14)$$

这里, 我们利用了关系 $p_{ij}^{\pm} = (p_{ji}^{\mp})^*$ 。

(c) Voigt 位形

Voigt 位形如图 4 所示。同样得到

$$W_{zzzz} = 4 \left| \sum_b \frac{p_{cb}^z p_{ba}^z}{\omega_{ba} - \omega} \right|^2, \quad (15)$$

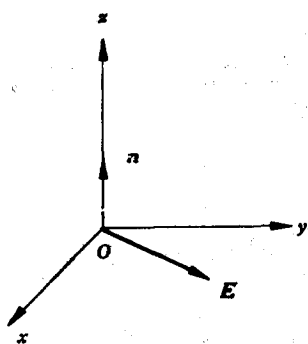


图 3

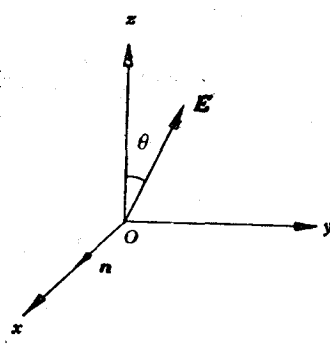


图 4

$$W_{yyyy} = W_{+--+} + \frac{1}{4}(W_{++++} + W_{----}), \quad (16)$$

$$W_{yzzy} = W_{zyyz} = W_{yzzy} = W_{zyzy} = \frac{1}{2}(W_{z+++} + W_{z---}), \quad (17)$$

$$W_{zzyy} = W_{zz+-} = W_{zz-+} = (W_{yyzz})^* = (W_{+-zz})^* = (W_{-+zz})^*, \quad (18)$$

$$W_{z+++} = \left| \sum_b \frac{p_{cb}^* p_{ba}^- + p_{cb}^- p_{ba}^+}{\omega_{ba} - \omega} \right|^2, \quad (19)$$

$$W_{z---} = \left| \sum_b \frac{p_{cb}^* p_{ba}^+ + p_{cb}^+ p_{ba}^-}{\omega_{ba} - \omega} \right|^2. \quad (20)$$

由(5)–(10)式,可以算出 W_{++++} , W_{----} , W_{+--+} , W_{zzzz} , W_{z+++} , W_{z---} 和 W_{zz+-} 在紧靠带边的几个跃迁的共振点上的值,其结果列在文献[7]表 3 中.

2. 双光子吸收系数的推导

光通过介质时的吸收系数是 $\alpha = \frac{2\omega}{c} k$, 其中 k 是复折射率的虚部: $\eta = N + ik$.

双光子吸收系数是 α 对强度的展开式中线性项的系数,它对应于三阶极化率的虚部.

(a) Faraday 位形

设在非磁化介质中传播的左右旋圆偏振光的电场强度为

$$E^\pm(z) = A^\pm(z) e^{i\frac{\omega}{c}\eta_\pm z},$$

其中

$$A^\pm(z) = \frac{E^x(0) \pm iE^y(0)}{\sqrt{2}} e^{i\varphi_\pm(z)}.$$

考虑到 $\chi^{(3)}$ 项的作用,求得

$$\frac{dA^+}{dz} = \frac{i6\pi\omega}{c\eta_+} \chi_{++++}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) A^{+*} A^+ A^+,$$

$$\frac{dA^-}{dz} = \frac{i6\pi\omega}{c\eta_-} \chi_{----}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) A^{-*} A^- A^-.$$

如果忽略非“球形项”引起的跃迁,

$$\frac{d\varphi_+}{dz} = \frac{3\pi\omega E^2}{c\eta_+} [\chi_{++++}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{+--+}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)],$$

$$\frac{d\varphi_-}{dz} = \frac{3\pi\omega E^2}{c\eta_-} [\chi_{----}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{-+-+}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)].$$

所以三阶非线性项引起的复折射率的改变为

$$\Delta\eta_+ = \frac{3\pi E^2}{\eta_+} [\chi_{++++}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{+--+}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)],$$

$$\Delta\eta_- = \frac{3\pi E^2}{\eta_-} [\chi_{----}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{-+-+}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)]. \quad (21)$$

由此可以推出文献[7]的(9)式.

(b) Voigt 位形

令

$$\mathbf{E}_{\parallel} = A_{\parallel} \hat{z} e^{i\frac{\omega}{c}\eta_{\parallel}x},$$

$$\mathbf{E}_{\perp} = A_{\perp} \hat{y} e^{i\frac{\omega}{c}\eta_{\perp}x}.$$

有

$$\frac{dA_{\parallel}}{dx} = \frac{i6\pi\omega}{c\eta_{\parallel}} [\chi_{zzzz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\parallel}^* A_{\parallel} A_{\parallel} + \chi_{zyyz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\perp}^* A_{\perp} A_{\parallel}$$

$$+ \chi_{xyzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\perp}^* A_{\parallel} A_{\perp} + \chi_{yyzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\parallel}^* A_{\perp} A_{\perp}],$$

$$\frac{dA_{\perp}}{dx} = \frac{i6\pi\omega}{c\eta_{\perp}} [\chi_{yyyy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\perp}^* A_{\perp} A_{\perp} + \chi_{yyzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\parallel}^* A_{\parallel} A_{\perp}$$

$$+ \chi_{zyyz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\parallel}^* A_{\perp} A_{\parallel} + \chi_{zzzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \cdot A_{\perp}^* A_{\parallel} A_{\parallel}].$$

为明确起见,设光的电场强度方向与 z 轴的夹角为 $\pi/2$, 即

$$A_{\parallel} = \frac{E}{\sqrt{2}} e^{i\varphi_{\parallel}(x)},$$

$$A_{\perp} = \frac{E}{\sqrt{2}} e^{i\varphi_{\perp}(x)}.$$

因而

$$\frac{d\varphi_{\parallel}}{dx} = \frac{3\pi\omega E^2}{c\eta_{\parallel}} [\chi_{zzzz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{zyyz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + \chi_{xyzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)],$$

$$\frac{d\varphi_{\perp}}{dx} = \frac{3\pi\omega E^2}{c\eta_{\perp}} [\chi_{yyyy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{yyzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + \chi_{zyyz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)].$$

所以

$$\Delta\eta_{\parallel} = \frac{3\pi E^2}{\eta_{\parallel}} [\chi_{zzzz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{zyyz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + \chi_{xyzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)],$$

$$\Delta\eta_{\perp} = \frac{3\pi E^2}{\eta_{\perp}} [\chi_{yyyy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + 2\chi_{yyzy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) + \chi_{zyyz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)]. \quad (22)$$

对于 InSb 的双光子磁吸收,已经有很多文献通过讨论吸收线的位置,来判断跃迁的性质,从而获得有关能带结构的知识.但是,如果仅仅讨论吸收线的位置而不考虑其强

度,则很难对跃迁的性质作出明确的判断,因为可能的跃迁是很多的。在文献[7]中,我们已经看到,强度的计算有助于判断共振峰的跃迁性质。在测定双光子磁吸收的实验中,光电导法是最常用的。它虽然是确定跃迁能级的较好方法,但其峰值不是直接与吸收系数的大小有关。因为,虽然光电导响应的本质是吸收过程,但其大小是与量子传输效应有关,所以它依赖于散射过程,而散射过程是与能量、温度等因素有关。吸收系数的直接测量是困难的。由于与吸收有关的现象的这些局限性,我们自然会想到,既然在双光子吸收峰附近存在着相当大的三阶非线性的实部,我们就可以利用与实部有关的现象来研究能带结构。下面讨论两种与实部有关的现象,即非线性 Faraday 旋转和非线性 Voigt 相移。

3. 双光子吸收线附近的三阶非线性光学现象——非线性 Faraday 旋转

Faraday 旋转和 Voigt 相移都是与极化率的实部有关的光学现象。与吸收相比,它们不仅在一定情况下有实验上的便利,而且往往可获得有关能带结构的新的情况。例如,吸收只有大小的差别,而 Faraday 旋转和 Voigt 相移除了大小之外,还有方向性。因此,在吸收谱上由于相隔很近而重迭在一起的峰,就有可能由于符号的不同而在旋转谱上分辨出来。

线偏振光通过单位长度的介质后所发生的偏振面旋转为

$$\theta = \frac{\omega}{2c} (N_+ - N_-).$$

由于三阶非线性项导致的附加的旋转可以从(21)式得到

$$\begin{aligned} \Delta\theta &= \frac{3\pi\omega E^2}{2c|\bar{\eta}|} \operatorname{Re} [\chi_{++++}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) - \chi_{----}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)] \\ &= \frac{e^3 E^2 \sqrt{m_{ca0}^*/2}}{8c^2 \hbar^4 m^4 \omega^3 |\bar{\eta}|} \cdot H(W_{++++} - W_{----}) \operatorname{Re} \left(\frac{i}{\sqrt{2\hbar\delta\omega + i\hbar\Gamma_{ca}}} \right). \end{aligned} \quad (23)$$

显然在双 σ_R 光子跃迁的共振峰附近将出现正的旋转峰,在双 σ_L 光子跃迁的共振峰附近将出现负的旋转峰。 $\Delta\theta \cdot \frac{\omega^3}{E^2}$ 在紧靠带边的几个跃迁的共振点上的相对值列在表 1。

表 1

编 号	类型	跃迁标记	$\bar{\nu}_1 = 1045\text{cm}^{-1}$		$\bar{\nu}_2 = 973.5\text{cm}^{-1}$	
			$H_{\text{res}}(\text{kG})$	$\left(\Delta\theta \cdot \frac{\omega^3}{E^2}\right)_{\text{rel}}$	$H_{\text{res}}(\text{kG})$	$\left(\Delta\theta \cdot \frac{\omega^3}{E^2}\right)_{\text{rel}}$
1	$\sigma_R + \sigma_R$	$a^+(3) \rightarrow a^c(0)$	13.2	9.8	3.6	0.76
2		$a^-(3) \rightarrow a^c(0)$	68.5	5.6×10^2	17.3	0.50
3		$b^+(3) \rightarrow b^c(0)$	10.2	39	2.4	4.6
4		$b^-(3) \rightarrow b^c(0)$	43.0	29	11.9	15
5	$\sigma_L + \sigma_L$	$a^+(0) \rightarrow a^c(1)$	23.1	-5.1	5.8	-0.40
6		$b^+(0) \rightarrow b^c(0)$	18.0	-1.8×10^2	4.7	-32

对于 $\Delta\theta$ 的数量级可作如下估计: 若取 $\chi^{(3)} \sim 10^{-8}(\text{CGSE})$, 则 $\frac{\Delta\theta}{I} \sim 10^\circ\text{cm}/\text{MW}$. 这说明, 在 $1\text{MW}/\text{cm}^2$ 的光强下, 非线性 Faraday 旋转角的共振峰就可以很明显地从平滑的线性谱的背景上观察到. 扣除线性效应后, 非线性 Faraday 旋转谱的线型如图 5 所示. 图中吸收峰和旋转峰之间的距离 $\delta H \propto \Gamma$, 且与跃迁的性质有关, 但是对所有的跃迁来说,

$$\frac{\delta H}{H_{\text{res}}} = \frac{2\hbar\Gamma}{\sqrt{3(2\hbar\omega - E_g)}}.$$

在文献[2]中分析过另外一种由于导带能级上电子占据数的变化而引起的振荡波形. 在扣除了线性本底之后, 这种振荡线型如图 6 所示. 它实质上是由非共振的带间跃迁引起的. 分析表明, 在 $H > 2\text{kG}$ 时, 就不再会发生这种线性振荡了. 而我们所讨论的非线性旋转的共振峰大多发生在更高的磁场处, 所以它们是不会混淆的.

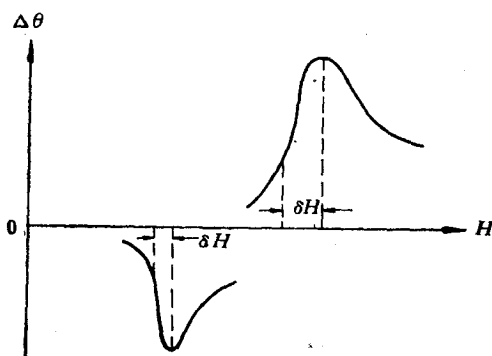


图 5

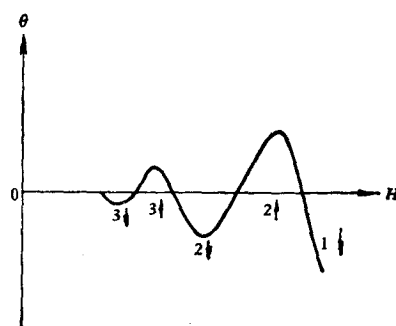


图 6

表 2

编 号	类型	跃迁标记	$\tilde{\nu}_1 = 1045\text{cm}^{-1}$		$\tilde{\nu}_2 = 973.5\text{cm}^{-1}$	
			$H_{\text{res}}(\text{kG})$	$\left(\Delta\delta \cdot \frac{\omega^3}{E^2}\right)_{\text{rel}}$	$H_{\text{res}}(\text{kG})$	$\left(\Delta\delta \cdot \frac{\omega^3}{E^2}\right)_{\text{rel}}$
1	W_{xxxx}	$a^+(1) \rightarrow a^c(0)$	49.5	80	12.4	-17
2		$a^+(2) \rightarrow a^c(1)$	12.7	35	3.3	-5.2
3		$a^-(2) \rightarrow a^c(1)$	22.7	1.7×10^2	5.7	32
4		$b^+(1) \rightarrow b^c(0)$	22.2	-27	5.6	-6.8
5		$b^+(2) \rightarrow b^c(1)$	9.2	-10	2.3	-1.8
6		$b^-(2) \rightarrow b^c(1)$	18.2	-14	4.7	-6.4
7	W_{++++}	$a^+(3) \rightarrow a^c(0)$	13.2	-2.5	3.6	-0.19
8		$a^-(3) \rightarrow a^c(0)$	68.5	-1.4×10^2	17.3	-0.13
9		$b^+(3) \rightarrow b^c(0)$	10.2	-10	2.4	-1.2
10		$b^-(3) \rightarrow b^c(0)$	43.0	-7.3	11.9	-3.8
11	W_{----}	$a^+(0) \rightarrow a^c(1)$	23.1	-1.3	5.8	-0.10
12		$b^+(0) \rightarrow b^c(1)$	18.0	-45	4.7	-8.0

4. 非线性 Voigt 相移

光通过单位长度介质后的 Voigt 相移为

$$\delta = \frac{\omega}{c} (N_{\parallel} - N_{\perp}).$$

由于三阶非线性而导致的附加的 Voigt 相移可以从(22)式得到

$$\begin{aligned} \Delta\delta = \frac{3\pi\omega E^2}{c|\vec{\eta}|} \operatorname{Re} [& \chi_{zzzz}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) - \chi_{yyyy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) \\ & + \chi_{xzyy}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega) - \chi_{yyzx}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)]. \end{aligned} \quad (24)$$

同样,在共振点上,有

$$\begin{aligned} \Delta\delta \cdot \frac{\omega^3}{E^2} \propto H_{\text{res}} \cdot \left[W_{zzzz} - W_{+-+-} - \frac{1}{4} (W_{++++} + W_{----}) \right. \\ \left. - 2 \operatorname{Im} (W_{zz+-}) \right]. \end{aligned}$$

$\Delta\delta \cdot \frac{\omega^3}{E^2}$ 在紧靠带边的几个跃迁共振点上的相对值列在表 2.

三、结 束 语

本文的主要结果是:对 InSb 的双光子磁光吸收来说,一次带间一次带内量子跃迁的模型可以解释大部分的实验事实,包括峰的位置和强度;与双光子共振相联系的 InSb 在磁场下的三阶非线性光学效应是值得研究的;在双光子吸收线附近,对于 $\chi^{(3)}$ 的实部可望有比较显著的可观测的反映,例如在与强度有关的 Faraday 旋转等方面的反映.

除了高阶带间跃迁以外, $\chi^{(3)}$ 的另一个可能的来源是载流子能量与动量关系的非抛物性^[3-5]和载流子的弛豫时间与能量有关^[6]. 对于 InSb 来说,这种非线性比较大,但是和我们讨论的束缚电子高阶跃迁在靠近双光子共振时的非线性比较起来,仍是很小的.

本文是在甘子钊副教授指导下完成的研究生毕业论文的一部分.

参 考 文 献

- [1] P. N. Butcher, Nonlinear Optical Phenomena.
- [2] S. D. Smith *et al.*, *Proc. Roy. Soc. (London) A*, **321**(1971), 303.
- [3] C. K. N. Patel *et al.*, *Phys. Rev. Letters*, **17**(1966), 1011.
- [4] P. A. Wolff, Gary. A. Pearson, *Phys. Rev. Letters*, **17**(1966), 1015.
- [5] B. Lax *et al.*, *Phys. Rev. Letters*, **18**(1967), 462.
- [6] P. Kaw, *Phys. Rev. Letters*, **21**(1968), 539.
- [7] 柳树政,本刊本期.

ON THE HIGH ORDER OPTICAL PROPERTIES OF NARROW-GAP SEMICONDUCTOR IN A MAGNETIC FIELD (II)

LIU SHU-ZHENG

(Department of Physics, Peking University)

ABSTRACT

In this paper, the third order optical nonlinearity of narrow-gap semiconductor near two-photon resonance in a magnetic field is discussed. The theoretical positions and relative strengths of the peaks of nonlinear Faraday rotation and Voigt phase shift near the gap edge are obtained.