

Bài 8

Quang phi tuyến bán dẫn

Huỳnh Thanh Đức

11/11/2022

Nội dung

12 Quang phi tuyến bán dẫn

- ▶ Quang tuyến tính, quang phi tuyến và quang phi tuyến cực đoan
- ▶ Khai triển nhiễu loạn phương trình Bloch bán dẫn
 - ★ Độ cảm quang tuyến tính $\chi^{(1)}$
 - ★ Độ cảm quang phi tuyến bậc hai $\chi^{(2)}$
- ▶ Một số quá trình phi tuyến bậc ba cho hệ bán dẫn hai dải
 - ★ Trộn bốn sóng (Four-Wave Mixing Experiments)
 - ★ Bơm - thăm dò (Pump-Probe Experiments)
 - ★ Phổ tiếng vọng photon hai chiều (2D Photon Echo Spectroscopy)
 - ★ Dòng điện/spin do hấp thụ 1 và 2 photon
- ▶ Một số quá trình phi tuyến cực đoan
 - ★ High-order Harmonic Generation
 - ★ High-order Sideband Generation

Tài liệu tham khảo

- T. Meier, P. Thomas, and S. W. Koch, *Coherent Semiconductor Optics* (Springer 2007).
- R. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd Edition (Academic Press, 2008).

XII. Quang phi tuyến bán dẫn

Quang tuyến tính

Phương trình sóng trong môi trường điện môi:

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \quad (1)$$

Vector điện trường \mathbf{E} Độ phân cực vĩ mô \mathbf{P}

Giả sử \mathbf{P} phụ thuộc tuyến tính vào \mathbf{E}

$$\mathbf{P} = \chi \mathbf{E} \quad (2)$$

Độ cảm điện môi tuyến tính χ

Vector cảm ứng điện trường trong môi trường điện môi là

$$\mathbf{D} = \mathbf{E} + \mathbf{P} = (1 + \chi) \mathbf{E} = \epsilon \mathbf{E} \quad (3)$$

Hàm điện môi ϵ

\mathbf{P} , \mathbf{E} , \mathbf{D} là các vector \Rightarrow độ cảm tuyến tính, hàm điện môi là các tensor hạng hai:

$$P_i = \chi_{ij} E_j, \quad D_i = \epsilon_{ij} E_j, \quad i, j = x, y, z \quad (4)$$

Quang phi tuyến

Trên thực tế, sự phụ thuộc của \mathbf{P} vào \mathbf{E} phức tạp hơn.

Với \mathbf{E} nhỏ, người ta có thể khai triển \mathbf{P} thành chuỗi lũy thừa của \mathbf{E} :

$$P_i = \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j + \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \quad (5)$$

trong đó $i, j, k, l = x, y, z$ và độ cảm bậc n , $\chi^{(n)}$, là tensor hạng $n + 1$.

Dưới phép biến đổi nghịch đảo không gian $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$, vector điện trường \mathbf{E} đổi dấu (phản đối xứng). Nếu môi trường điện môi có đối xứng nghịch đảo không gian, phương trình sóng (1) bất biến dẫn đến vector độ phân cực \mathbf{P} phản đối xứng:

$$-P_i = -\sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j + \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k - \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \quad (6)$$

(5) và (6) $\Rightarrow \chi_{ijk}^{(2)} = 0$, tức là độ cảm quang phi tuyến bậc chẵn triệt tiêu trong vật liệu có đối xứng nghịch đảo không gian.

Quang phi tuyến

Phân tích đối xứng cho ta biết những yếu tố tensor nào có thể tồn tại

Tensor độ cảm quang bậc hai cho một số cấu trúc tinh thể

Tinh thể	Nhóm điểm	Các yếu tố tensor $\chi_{ijk}^{(2)}$ khác không
Tetragonal	C_{4v} D_{2d} C_{4h}, D_{4h}	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz$ $xyz = yxz, xzy = yzx, zxy = zyx$ Không có
Cubic	T_d T_h, O_h	$xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zyx$ Không có
Hexagonal	C_6 D_{3h} C_{6h}, D_{6h}	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz$ $yyy = yxx = xxy = xyx$ Không có

Quang phi tuyến

Xét ví dụ trường hợp 1 chiều

$$P = \chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots$$

Giả sử điện trường của sóng ánh sáng là

$$E = E_0 \cos(\omega_L t)$$

Độ phân cực phi tuyến có dạng

$$\begin{aligned} P = & \chi^{(1)} E_0 \cos(\omega_L t) + \chi^{(2)} \frac{1}{2} E_0^2 + \chi^{(2)} \frac{1}{2} E_0^2 \cos(2\omega_L t) \\ & + \chi^{(3)} \frac{1}{4} E_0^3 \cos(3\omega_L t) + \chi^{(3)} \frac{3}{4} E_0^3 \cos(\omega_L t) + \dots \end{aligned}$$

Các quá trình vật lý tương ứng: khúc xạ và hấp thụ tuyến tính, optical rectification (OR), phát sinh điều hòa bậc 2 (SHG), phát sinh điều hòa bậc 3, khúc xạ và hấp thụ phụ thuộc cường độ, ...

Quang phi tuyến

Nếu trường ánh sáng là

$$E = E_1 \cos(\omega_1 t) + E_2 \cos(\omega_2 t)$$

thì độ phân cực phi tuyến có dạng

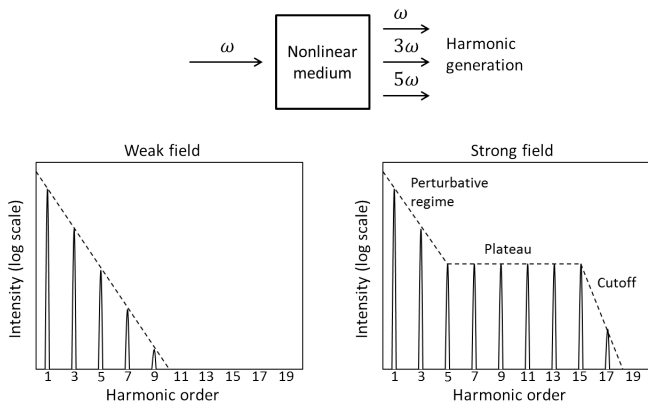
$$\begin{aligned} P = & \chi^{(1)} (E_1 \cos(\omega_1 t) + E_2 \cos(\omega_2 t)) \\ & + \chi^{(2)} \frac{1}{2} (E_1^2 + E_2^2) + \chi^{(2)} \frac{1}{2} (E_1^2 \cos(2\omega_1 t) + E_2^2 \cos(2\omega_2 t)) \\ & + \chi^{(2)} \frac{1}{2} E_1 E_2 \cos((\omega_1 + \omega_2)t) + \chi^{(2)} \frac{1}{2} E_1 E_2 \cos((\omega_1 - \omega_2)t) \\ & + \chi^{(3)} \frac{1}{4} (E_1^3 \cos(3\omega_1 t) + E_2^3 \cos(3\omega_2 t)) + \chi^{(3)} \frac{3}{4} (E_1^3 \cos(\omega_1 t) + E_2^3 \cos(\omega_2 t)) \\ & + \chi^{(3)} \frac{1}{4} E_1 E_2^2 [2 \cos(\omega_1 t) + \cos((\omega_1 + 2\omega_2)t) + \cos((\omega_1 - 2\omega_2)t)] \\ & + \chi^{(3)} \frac{1}{4} E_1^2 E_2 [2 \cos(\omega_2 t) + \cos((\omega_2 + 2\omega_1)t) + \cos((\omega_2 - 2\omega_1)t)] + \dots \end{aligned}$$

Quang phi tuyến cực đoan

Nếu trường rất mạnh, có biên độ so sánh được với trường nguyên tử $E_{\text{atom}} \sim 10^{11}$ V/m, thì khai triển chuỗi lũy thừa (5) không phù hợp.

Lúc này ta cần phải giải các phương trình để xác định \mathbf{P} một cách đầy đủ, KHÔNG sử dụng gần đúng nhiễu loạn.

Ví dụ: hiện tượng phát sinh điều hòa bậc cao (HHG)



Mô tả vĩ mô của vector phân cực điện môi

Độ phân cực của điện tử được định nghĩa bởi toán tử đơn hạt

$$\mathbf{\Pi} = -e\mathbf{r} \quad (7)$$

Độ phân cực vĩ mô là giá trị trung bình của $\mathbf{\Pi}$ trong biểu diễn lượng tử hóa lần thứ hai:

$$\mathbf{P} = -e \sum_{\lambda, \lambda', \mathbf{k}, \mathbf{k}'} \langle \psi_{\lambda \mathbf{k}} | \mathbf{r} | \psi_{\lambda' \mathbf{k}'} \rangle \langle a_{\lambda \mathbf{k}}^\dagger a_{\lambda' \mathbf{k}'} \rangle \quad (8)$$

trong đó các yếu tố ma trận vị trí được cho bởi

$$\langle \psi_{\lambda \mathbf{k}} | \mathbf{r} | \psi_{\lambda' \mathbf{k}'} \rangle = (i\delta_{\lambda \lambda'} \nabla_{\mathbf{k}} + \boldsymbol{\xi}_{\lambda \lambda' \mathbf{k}}) \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \quad (9)$$

Như vậy, độ phân cực có thể viết dưới dạng

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_{\text{intra}} + \mathbf{P}_{\text{inter}} \quad (10)$$

trong đó

$$\mathbf{P}_{\text{intra}} = -e \sum_{\lambda, \mathbf{k}} (i\nabla_{\mathbf{k}} + \boldsymbol{\xi}_{\lambda \lambda \mathbf{k}}) \rho_{\lambda \lambda \mathbf{k}} \quad (11)$$

$$\mathbf{P}_{\text{inter}} = -e \sum_{\lambda, \lambda' \neq \lambda, \mathbf{k}} \boldsymbol{\xi}_{\lambda \lambda' \mathbf{k}} \rho_{\lambda' \lambda \mathbf{k}} \quad (12)$$

Khai triển nhiễu loạn phương trình Bloch bán dẫn

Phương trình Bloch bán dẫn cho ma trận mật độ rút gọn $\rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}}$ trong VG:

$$\frac{d}{dt}\rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} = -i(\omega_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} - i\gamma)\rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} - \frac{ie}{\hbar m}\mathbf{A}(t) \cdot \sum_{\mu} (\mathbf{p}_{\lambda\mu\mathbf{k}}\rho_{\mu\lambda'\mathbf{k}} - \rho_{\lambda\mu\mathbf{k}}\mathbf{p}_{\mu\lambda'\mathbf{k}}) \quad (13)$$

trong đó $\omega_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} = (\varepsilon_{\lambda\mathbf{k}} - \varepsilon_{\lambda'\mathbf{k}})/\hbar$.

Khai triển ρ thành chuỗi lũy thừa của trường, với ký hiệu $\rho^{(n)} \propto A^n$,

$$\rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} = \rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}}^{(0)} + \rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}}^{(1)} + \rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}}^{(2)} + \dots$$

Phương trình chuyển động cho bậc thứ n của trường (với $n \geq 1$) là

$$\frac{d}{dt}\rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}}^{(n)} = -i(\omega_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} - i\gamma)\rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}}^{(n)} - \frac{ie}{\hbar m}\mathbf{A}(t) \cdot \sum_{\mu} (\mathbf{p}_{\lambda\mu\mathbf{k}}\rho_{\mu\lambda'\mathbf{k}}^{(n-1)} - \rho_{\lambda\mu\mathbf{k}}^{(n-1)}\mathbf{p}_{\mu\lambda'\mathbf{k}}) \quad (14)$$

Khi không có tương tác hệ điện tử ở trạng thái cơ bản, tức là:

$$\rho_{vv\mathbf{k}}^{(0)} = 1, \quad \rho_{cv\mathbf{k}}^{(0)} = \rho_{cc\mathbf{k}}^{(0)} = \rho_{cc'\mathbf{k}}^{(0)} = \rho_{vv'\mathbf{k}}^{(0)} = 0, \quad \text{với } v, v' \neq v \in \text{VB}, \quad c, c' \neq c \in \text{CB}$$

Bậc một nhiễu loạn

Nghiệm hình thức của (14) có dạng

$$\rho_{\lambda\lambda'\mathbf{k}}^{(n)} = -\frac{ie}{\hbar m} e^{-i(\omega_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} - i\gamma)t} \int_{-\infty}^t dt' \mathbf{A}(t') \cdot \sum_{\mu} \left(\mathbf{p}_{\lambda\mu\mathbf{k}} \rho_{\mu\lambda'\mathbf{k}}^{(n-1)} - \rho_{\lambda\mu\mathbf{k}}^{(n-1)} \mathbf{p}_{\mu\lambda'\mathbf{k}} \right) e^{i(\omega_{\lambda\lambda'\mathbf{k}} - i\gamma)t'} \quad (15)$$

Giả sử thể vector của trường ánh sáng cho bởi

$$\mathbf{A}(t) = \sum_p \mathbf{A}_{\omega_p} e^{-i\omega_p t} + c.c. \quad (16)$$

Ta có các yếu tố ma trận mật độ bậc 1:

$$\begin{aligned} \rho_{cv\mathbf{k}}^{(1)} &= -\frac{ie}{\hbar m} \sum_p e^{-i(\omega_{cv\mathbf{k}} - i\gamma)t} \left[\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{cv\mathbf{k}} \int_{-\infty}^t dt' e^{i(\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_p - i\gamma)t'} \right. \\ &\quad \left. + \mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{cv\mathbf{k}} \int_{-\infty}^t dt' e^{i(\omega_{cv\mathbf{k}} + \omega_p - i\gamma)t'} \right] \xrightarrow{0 \text{ (RWA)}} \\ &= -\frac{e}{\hbar m} \sum_p \frac{\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{cv\mathbf{k}}}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_p - i\gamma} e^{-i\omega_p t} \end{aligned} \quad (17)$$

Độ cảm quang tuyến tính $\chi^{(1)}$

Vector cường độ điện trường của ánh sáng có dạng

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t} = \sum_p \mathbf{E}_{\omega_p} e^{-i\omega_p t} + c.c. \quad \text{trong đó} \quad \mathbf{E}_{\omega_p} = i\omega_p \mathbf{A}_{\omega_p} \quad (18)$$

Từ (17) và hệ thức $\xi_{cv\mathbf{k}} = -\frac{i}{m} \frac{\mathbf{p}_{cv\mathbf{k}}}{\omega_{cv\mathbf{k}}}$ ta nhận được vector độ phân cực liên dải tuyến tính

$$\mathbf{P}_{\text{inter}}^{(1)}(t) = -e \sum_{cv\mathbf{k}} \xi_{v\mathbf{k}} \rho_{cv\mathbf{k}}^{(1)} + c.c. = \frac{e^2}{\hbar} \sum_p \sum_{cv\mathbf{k}} \frac{\omega_{cv\mathbf{k}}}{\omega_p} \frac{\xi_{v\mathbf{k}} (\mathbf{E}_{\omega_p} \cdot \xi_{cv\mathbf{k}}) e^{-i\omega_p t}}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_p - i\gamma} + c.c. \quad (19)$$

Biến đổi Fourier của các thành phần vector $\mathbf{P}_{\text{inter}}^{(1)}(t)$ là

$$P_i^{(1)}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} P_i^{(1)}(t) = \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega) E_{\omega}^j, \quad i, j = x, y, z \quad (20)$$

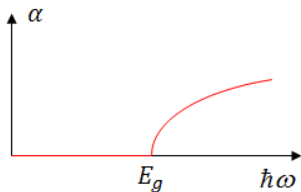
trong đó tensor độ cảm quang tuyến tính được cho bởi

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = \frac{e^2}{\hbar} \sum_{cv\mathbf{k}} \frac{\omega_{cv\mathbf{k}}}{\omega} \frac{\xi_{v\mathbf{k}}^i \xi_{cv\mathbf{k}}^j}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega - i\gamma} \quad (21)$$

Độ cảm quang tuyến tính $\chi^{(1)}$

Hệ số hấp thụ tuyến tính:

$$\begin{aligned}\alpha(\omega) &\propto \text{Im}\chi^{(1)}(\omega) \propto \sum_{\mathbf{k}} \frac{\gamma}{(\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega)^2 + \gamma^2} \simeq \sum_{\mathbf{k}} \delta(\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega) \\ &\simeq \frac{V}{(2\pi)^3} \int d^3k \delta(\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega) = \frac{V}{2\pi^2} \int_0^\infty dk k^2 \delta(\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega) \\ &\propto \int_0^\infty d\varepsilon \sqrt{\varepsilon} \delta((\varepsilon + E_g)/\hbar - \omega) \propto \Theta(\hbar\omega - E_g) \sqrt{\hbar\omega - E_g}\end{aligned}$$



Phổ hấp thụ tuyến tính cho bán dẫn khối

Bậc hai nhiễu loạn

$$\begin{aligned}
 \rho_{cc'\mathbf{k}}^{(2)} &= \frac{e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \sum_v \frac{(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{cv\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{vc'\mathbf{k}})}{\omega_{cc'\mathbf{k}} + \omega_p - \omega_q - i\gamma} \left[\frac{1}{\omega_{c'v\mathbf{k}} - \omega_p + i\gamma} - \frac{1}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} \right] e^{i(\omega_p - \omega_q)t} \\
 &\quad - \frac{e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \sum_v \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{vc'\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{cv\mathbf{k}})}{\omega_{cc'\mathbf{k}} - \omega_p - \omega_q - i\gamma} \frac{1}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} e^{-i(\omega_p + \omega_q)t} \\
 &\quad + \frac{e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \sum_v \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{cv\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q}^* \cdot \mathbf{p}_{vc'\mathbf{k}})}{\omega_{cc'\mathbf{k}} + \omega_p + \omega_q - i\gamma} \frac{1}{\omega_{c'v\mathbf{k}} - \omega_q + i\gamma} e^{i(\omega_p + \omega_q)t} \\
 \rho_{vv'\mathbf{k}}^{(2)} &= \frac{-e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \sum_c \frac{(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{cv'\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{vc\mathbf{k}})}{\omega_{vv'\mathbf{k}} + \omega_p - \omega_q - i\gamma} \left[\frac{1}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_p + i\gamma} - \frac{1}{\omega_{cv'\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} \right] e^{i(\omega_p - \omega_q)t} \\
 &\quad + \frac{e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \sum_c \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{vc\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{cv'\mathbf{k}})}{\omega_{vv'\mathbf{k}} - \omega_p - \omega_q - i\gamma} \frac{1}{\omega_{cv'\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} e^{-i(\omega_p + \omega_q)t} \\
 &\quad - \frac{e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \sum_c \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{cv'\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q}^* \cdot \mathbf{p}_{vc\mathbf{k}})}{\omega_{vv'\mathbf{k}} + \omega_p + \omega_q - i\gamma} \frac{1}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_q + i\gamma} e^{i(\omega_p + \omega_q)t} \\
 \rho_{cv\mathbf{k}}^{(2)} &= \frac{e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \left[\sum_{c'} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{cc'\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{c'v\mathbf{k}})}{\omega_{c'c\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} - \sum_{v'} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{v'v\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{cv'\mathbf{k}})}{\omega_{cv'\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} \right] \\
 &\quad \times \frac{1}{\omega_{cv\mathbf{k}} + \omega_p - \omega_q - i\gamma} e^{i(\omega_p - \omega_q)t} \\
 &\quad + \frac{e^2}{\hbar^2 m^2} \sum_{p,q} \left[\sum_{c'} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{cc'\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{c'v\mathbf{k}})}{\omega_{c'v\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} - \sum_{v'} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{v'v\mathbf{k}})(\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{cv'\mathbf{k}})}{\omega_{cv'\mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} \right] \\
 &\quad \times \frac{1}{\omega_{cv\mathbf{k}} - \omega_p - \omega_q - i\gamma} e^{-i(\omega_p + \omega_q)t}
 \end{aligned}$$

Độ cảm quang bậc hai $\chi^{(2)}$

Vector độ phân cực liên dải bậc hai:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{P}_{\text{inter}}^{(2)}(t) &= -e \sum_{\lambda, \lambda' \neq \lambda \mathbf{k}} \boldsymbol{\xi}_{\lambda \lambda' \mathbf{k}} \rho_{\lambda' \lambda \mathbf{k}}^{(2)} \\
 &= \frac{e^3}{\hbar^2 m^2} \sum_{p, q} \sum_{c v \mathbf{k}} \frac{\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{c v \mathbf{k}}}{\omega_{c v \mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} \left[\sum_{\lambda \neq c} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{v \lambda \mathbf{k}}) \boldsymbol{\xi}_{\lambda c \mathbf{k}}}{\omega_{c \lambda \mathbf{k}} + \omega_p - \omega_q - i\gamma} - \sum_{\lambda \neq v} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p}^* \cdot \mathbf{p}_{\lambda c \mathbf{k}}) \boldsymbol{\xi}_{v \lambda \mathbf{k}}}{\omega_{\lambda v \mathbf{k}} + \omega_p - \omega_q - i\gamma} \right] e^{i(\omega_p - \omega_q)t} \\
 &+ \frac{e^3}{\hbar^2 m^2} \sum_{p, q} \sum_{c v \mathbf{k}} \frac{\mathbf{A}_{\omega_q} \cdot \mathbf{p}_{c v \mathbf{k}}}{\omega_{c v \mathbf{k}} - \omega_q - i\gamma} \left[\sum_{\lambda \neq c} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{v \lambda \mathbf{k}}) \boldsymbol{\xi}_{\lambda c \mathbf{k}}}{\omega_{c \lambda \mathbf{k}} - \omega_p - \omega_q - i\gamma} - \sum_{\lambda \neq v} \frac{(\mathbf{A}_{\omega_p} \cdot \mathbf{p}_{\lambda c \mathbf{k}}) \boldsymbol{\xi}_{v \lambda \mathbf{k}}}{\omega_{\lambda v \mathbf{k}} - \omega_p - \omega_q - i\gamma} \right] e^{-i(\omega_p + \omega_q)t} \\
 &+ c.c.
 \end{aligned}$$

Biến đổi Fourier ta nhận được

$$\begin{aligned}
 P_i^{(2)} &= \sum_{jk} \sum_{(p, q)} \left[\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_q - \omega_p, -\omega_p, \omega_q) E_{\omega_p}^{j*} E_{\omega_q}^k + \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_p + \omega_q, \omega_p, \omega_q) E_{\omega_p}^j E_{\omega_q}^k \right. \\
 &\quad \left. + \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_p - \omega_q, \omega_p, -\omega_q) E_{\omega_p}^j E_{\omega_q}^{k*} + \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_p - \omega_q, -\omega_p, -\omega_q) E_{\omega_p}^{j*} E_{\omega_q}^{k*} \right]
 \end{aligned} \tag{22}$$

Độ cảm quang bậc hai $\chi^{(2)}$

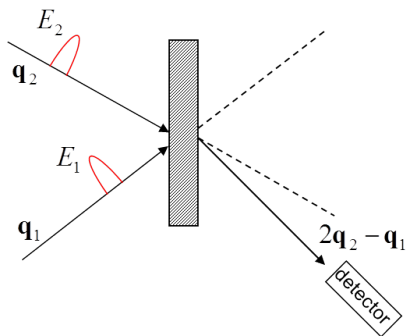
trong đó

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\pm\omega_q \pm \omega_p, \pm\omega_p, \pm\omega_q) = -\frac{e^3}{\hbar^2 m^2} \frac{1}{(\mp\omega_p)(\mp\omega_q)} \sum_{cv\mathbf{k}} \frac{p_{cv\mathbf{k}}^k}{\omega_{cv\mathbf{k}} \mp \omega_q - i\gamma} \\ \times \left[\sum_{\lambda \neq c} \frac{p_{v\lambda\mathbf{k}}^j \xi_{\lambda c\mathbf{k}}^i}{\omega_{c\lambda\mathbf{k}} \mp \omega_p \mp \omega_q - i\gamma} - \sum_{\lambda \neq v} \frac{p_{\lambda c\mathbf{k}}^j \xi_{v\lambda\mathbf{k}}^i}{\omega_{\lambda v\mathbf{k}} \mp \omega_p \mp \omega_q - i\gamma} \right] \quad (23)$$

$\chi_{ijk}^{(2)}(0, -\omega, \omega) \longleftrightarrow$ Optical rectification, shiftcurrent

$\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) \longleftrightarrow$ Phát sinh điều hòa bậc hai

Phi tuyến bậc ba: Four-Wave Mixing



- Four-Wave Mixing (FWM) là hiện tượng phi tuyến bậc ba
- Hai xung cực ngắn cách nhau khoảng thời gian trễ $\tau \geq 0$
- Detector đặt theo phương nhiễu xạ $2\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1$ để loại bỏ tín hiệu nền tuyến tính
- Bốn sóng: hai sóng đi vào (có một sóng trộn hai lần nên tương đương ba sóng) và một sóng đi ra

Phi tuyến bậc ba: Four-Wave Mixing

Các phương trình Bloch bán dẫn cho mô hình hai dải, bỏ qua các số hạng $\propto \nabla_{\mathbf{k}}$, có dạng

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}p_{\mathbf{k}} &= -i\omega_{cv\mathbf{k}}p_{\mathbf{k}} - \frac{i}{\hbar}\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{d}_{\mathbf{k}}(2n_{\mathbf{k}} - 1) - \frac{p_{\mathbf{k}}}{T_2} \\ \frac{d}{dt}n_{\mathbf{k}} &= -\frac{2}{\hbar}\text{Im}[\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{d}_{\mathbf{k}}p_{\mathbf{k}}^*] - \frac{n_{\mathbf{k}}}{T_1} + \frac{n_{\mathbf{k}}^{\text{FD}}}{T_1}\end{aligned}\quad (24)$$

trong đó $n_{\mathbf{k}} = n_{\mathbf{k}}^e = n_{\mathbf{k}}^h$, $\omega_{cv\mathbf{k}} = E_g + \varepsilon_{\mathbf{k}}^e + \varepsilon_{\mathbf{k}}^h$, $\mathbf{d}_{\mathbf{k}} = -e\boldsymbol{\xi}_{cv\mathbf{k}}$.

Điện trường phụ thuộc thời gian có dạng:

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}\bar{E}(t)e^{-i\omega t} + \mathbf{e}\bar{E}^*(t)e^{i\omega t}$$

Gần đúng sóng quay (RWA):

$$p_{\mathbf{k}} \simeq \bar{p}_{\mathbf{k}}e^{-i\omega t}\quad (25)$$

\bar{E} và $\bar{p}_{\mathbf{k}}$ biến đổi chậm theo thời gian.

Phi tuyến bậc ba: Four-Wave Mixing

Thay (25) vào (24) ta được các phương trình Bloch bán dẫn trong RWA

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}} &= -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}} - \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}\bar{E}(t)(2n_{\mathbf{k}} - 1) - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}}{T_2} \\ \frac{d}{dt}n_{\mathbf{k}} &= -\frac{2}{\hbar}\text{Im} [\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}\bar{E}(t)\bar{p}_{\mathbf{k}}^*] - \frac{n_{\mathbf{k}}}{T_1} + \frac{n_{\mathbf{k}}^{\text{FD}}}{T_1}\end{aligned}\quad (26)$$

trong đó $\Delta_{cv\mathbf{k}} = \omega_{cv\mathbf{k}} - \omega$ là tần số detuning.

Trong thí nghiệm trộn bốn sóng, điện trường của xung ánh sáng có dạng

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{e}_1 E_1(t)e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} + \mathbf{e}_2 E_2(t)e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \\ E_1(t) &= \bar{E}_1(t)e^{-i\omega t} + c.c., \quad \bar{E}_1(t) = E_1\delta(t) \\ E_2(t) &= \bar{E}_2(t)e^{-i\omega t} + c.c., \quad \bar{E}_2(t) = E_2\delta(t - \tau) \quad \text{với } \tau > 0\end{aligned}\quad (27)$$

Trong trường hợp này (26) trở thành

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}} &= -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}} - \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot (\mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t)e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} + \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t)e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}}) (2n_{\mathbf{k}} - 1) - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}}{T_2} \\ \frac{d}{dt}n_{\mathbf{k}} &= \frac{i}{\hbar} [\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot (\mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t)e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} + \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t)e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}})\bar{p}_{\mathbf{k}}^* \\ &\quad - \mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot (\mathbf{e}_1 \bar{E}_1^*(t)e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} + \mathbf{e}_2 \bar{E}_2^*(t)e^{-i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}})\bar{p}_{\mathbf{k}}] - \frac{n_{\mathbf{k}}}{T_1} + \frac{n_{\mathbf{k}}^{\text{FD}}}{T_1}\end{aligned}$$

Phi tuyến bậc ba: Four-Wave Mixing

Khai triển nhiễu loạn $\bar{p}_{\mathbf{k}}$ qua các số hạng $\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l)(m,n)}$ và $n_{\mathbf{k}}$ qua $n_{\mathbf{k}}^{(l)(m,n)}$, $l \geq |m| + |n|$, trong đó (l) là bậc nhiễu loạn và (m, n) chỉ phương của sóng trộn $m\mathbf{q}_1 + n\mathbf{q}_2$, tương ứng với pha $e^{i(m\mathbf{q}_1 + n\mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{r}}$, ta nhận được

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(m,n)} &= -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(m,n)} + \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t)e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} + \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t)e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \\
 &\quad - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(m,n)}}{T_2}, \\
 \frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l)(m,n)} &= -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l)(m,n)} - \frac{2i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t)e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}}n_{\mathbf{k}}^{(l-1)(m-1,n)} \\
 &\quad - \frac{2i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t)e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}}n_{\mathbf{k}}^{(l-1)(m,n-1)} - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l)(m,n)}}{T_2}, \quad l > 1 \\
 \frac{d}{dt}n_{\mathbf{k}}^{(l)(m,n)} &= \frac{i}{\hbar} \left[\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t)e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l-1)(-m+1,-n)*} \right. \\
 &\quad \left. - \mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1^*(t)e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l-1)(m+1,n)} \right. \\
 &\quad \left. + \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t)e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l-1)(-m,-n+1)*} \right. \\
 &\quad \left. - \mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2^*(t)e^{-i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(l-1)(m,n+1)} \right] - \frac{n_{\mathbf{k}}^{(l)(m,n)}}{T_1}
 \end{aligned} \tag{28}$$

Phi tuyến bậc ba: Four-Wave Mixing

Ta quan tâm độ phân cực bậc ba theo phương $2\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1$:

$$\frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(-1,2)} = -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(-1,2)} - \frac{2i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)} - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(-1,2)}}{T_2} \quad (29)$$

trong đó phân bố bậc hai $n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)}$ tuân theo phương trình

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)} = & -\frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1^*(t) e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} \\ & + \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)*} - \frac{n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)}}{T_1} \end{aligned} \quad (30)$$

Phương trình chuyển động cho độ phân cực bậc nhất $\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)}$ là

$$\frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} = -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} + \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)}}{T_2}$$

$$\begin{aligned} \Rightarrow \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} &= \frac{i}{\hbar} e^{-i(\Delta_{cv\mathbf{k}} - i/T_2)t} \int_{-\infty}^t dt' \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 E_2 \delta(t' - \tau) e^{i(\Delta_{cv\mathbf{k}} - i/T_2)t'} e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \\ &= \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 E_2 e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \Theta(t - \tau) e^{-(i\Delta_{cv\mathbf{k}} + 1/T_2)(t - \tau)} \end{aligned} \quad (31)$$

Phi tuyến bậc ba: Four-Wave Mixing

Tương tự, phương trình chuyển động cho độ phân cực $p_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)}$ là

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} &= -i\Delta_{cv\mathbf{k}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} + \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t) e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} - \frac{\bar{p}^{(1)(1,0)}}{T_2} \\ \Rightarrow \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} &= \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 E_1 e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \Theta(t) e^{-(i\Delta_{cv\mathbf{k}} + 1/T_2)t} \end{aligned} \quad (32)$$

Thay (44) và (43) vào (30) và giải phương trình này ta nhận được

$$\begin{aligned} n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)} &= - \left(\frac{i}{\hbar} \right)^2 (\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2) (\mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1) E_1^* E_2 e^{i(-\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{r}} \\ &\quad \times \Theta(t - \tau) \Theta(\tau) e^{-\frac{t-\tau}{T_1}} e^{(i\Delta_{cv\mathbf{k}} - 1/T_2)\tau} \end{aligned} \quad (33)$$

Thay (30) vào (29) và giải phương trình vi phân ta có kết quả

$$\begin{aligned} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(-1,2)}(t, \tau) &= \left(\frac{i}{\hbar} \right)^3 (\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2)^2 (\mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1) E_1^* E_2^2 e^{i(2\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1) \cdot \mathbf{r}} \\ &\quad \times \Theta(t - \tau) \Theta(\tau) e^{-\frac{2\tau}{T_2}} e^{(i\Delta_{cv\mathbf{k}} + 1/T_2)(t - 2\tau)} \end{aligned} \quad (34)$$

$\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(-1,2)}$ trễ thời gian τ so với xung thứ hai nên được gọi là "photon echo".

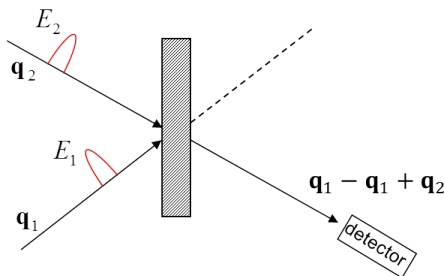
Phi tuyến bậc ba: Four-Wave Mixing

Biến đổi Fourier ta được tín hiệu FWM

$$\begin{aligned}\bar{p}^{(3)(-1,2)}(\omega, \tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \bar{p}^{(3)(-1,2)}(t, \tau) \\ &\propto -i\Theta(\tau) e^{i\Delta_{cv\mathbf{k}}2\tau} \int_{-\infty}^{\infty} dt \Theta(t - \tau) e^{(-i(\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega) - 1/T_2)t} \\ &\propto -i\Theta(\tau) e^{i\Delta_{cv\mathbf{k}}2\tau} \left. \frac{e^{(-i(\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega) - 1/T_2)t}}{-(\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega) - 1/T_2} \right|_{\tau}^{\infty} \\ &\propto -\Theta(\tau) e^{i\Delta_{cv\mathbf{k}}2\tau} e^{i\omega\tau} \frac{(\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega) + i/T_2}{(\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega)^2 + 1/T_2^2} e^{-\frac{\tau}{T_2}}\end{aligned}\tag{35}$$

Do $\bar{p}^{(3)(-1,2)}(\omega, \tau) \propto \exp\left[-\frac{\tau}{T_2}\right]$, bằng cách đo tín hiệu FWM theo thời gian trễ τ người ta có thể xác định được thời gian dephasing T_2 .

Phi tuyến bậc ba: Pump-Probe Experiment



- Hai xung cực ngắn tới theo phương \mathbf{q}_1 và \mathbf{q}_2 cách nhau khoảng thời gian trễ $\tau \geq 0$

$$\text{Pump: } \bar{E}_1(t) = E_1\delta(t) , \quad \text{Probe: } \bar{E}_2(t) = E_2\delta(t - \tau)$$

- Cường độ xung bơm (pump) mạnh hơn nhiều xung thăm dò (probe)
- Detector đặt theo phương \mathbf{q}_2
- So sánh tín hiệu quan sát được khi có và không có xung bơm

Phi tuyến bậc ba: Pump-Probe Experiment

Ta quan tâm tới độ phân cực bậc ba theo phương $\mathbf{q}_2 = \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2$. Từ phương trình (28) ta có

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} &= i\Delta_{cv\mathbf{k}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} - \frac{2i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t) e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)} \\ &\quad - \frac{2i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)}}{T_2} \end{aligned} \quad (36)$$

trong đó phân bố bậc hai $n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)}$ và $n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)}$ được cho bởi các phương trình

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)} &= -\frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_a^*(t) e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} + \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)*} \\ &\quad - \frac{n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)}}{T_1} \end{aligned} \quad (37)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} &= \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t) e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)*} - \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1^*(t) e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)*} - \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2^*(t) e^{-i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} - \frac{n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)}}{T_1} \end{aligned} \quad (38)$$

Phi tuyến bậc ba: Pump-Probe Experiment

Trường hợp chỉ có một mình xung Probe:

$$\frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} = -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} - \frac{2i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)}}{T_2} \quad (39)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} &= \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)*} - \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2^*(t) e^{-i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} \\ &\quad - \frac{n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)}}{T_1} \end{aligned} \quad (40)$$

Lấy hiệu của (36) và (39) và hiệu của (38) và (40) ta được:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\delta\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} &= -i\Delta_{cv\mathbf{k}}\delta\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} - \frac{2i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t) e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)} \\ &\quad - \frac{2i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t) e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \delta n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} - \frac{\delta\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)}}{T_2} \end{aligned} \quad (41)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\delta n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} &= \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t) e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)*} - \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1^*(t) e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} \\ &\quad - \frac{\delta n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)}}{T_1} \end{aligned} \quad (42)$$

trong đó $\delta\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} = \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} - \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)}$ và $\delta n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} = n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} - n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)}$

Phi tuyến bậc ba: Pump-Probe Experiment

Độ phân cực bậc một $\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)}$ và $\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)}$ lần lượt được cho bởi các phương trình

$$\frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} = -\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} + \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 \bar{E}_1(t)e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)}}{T_2} \quad (43)$$

$$\frac{d}{dt}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} = -\Delta_{cv\mathbf{k}}\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} + \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 \bar{E}_2(t)e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} - \frac{\bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)}}{T_2} \quad (44)$$

Với $\bar{E}_1(t) = E_1\delta(t)$ và $\bar{E}_2(t) = E_2\delta(t - \tau)$ các phương trình (43) và (44) có nghiệm:

$$\begin{aligned} \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(1,0)} &= \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1 E_1 e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \Theta(t) e^{-(i\Delta_{cv\mathbf{k}} + 1/T_2)t} \\ \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(1)(0,1)} &= \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2 E_2 e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r}} \Theta(t - \tau) e^{-(i\Delta_{cv\mathbf{k}} + 1/T_2)(t - \tau)} \end{aligned} \quad (45)$$

Giải phương trình (37) sử dụng (45):

$$\begin{aligned} n_{\mathbf{k}}^{(2)(-1,1)} &= -\left(\frac{i}{\hbar}\right)^2 (\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2)(\mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{e}_1) E_1^* E_2 e^{i(\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1) \cdot \mathbf{r}} \Theta(t - \tau) \Theta(\tau) \\ &\times e^{-\frac{t - \tau}{T_1}} e^{(i\Delta_{cv\mathbf{k}} - 1/T_2)\tau} \end{aligned} \quad (46)$$

Phi tuyến bậc ba: Pump-Probe Experiment

Giải phương trình (42) sử dụng (45):

$$\delta n_{\mathbf{k}}^{(2)(0,0)} = - \left(\frac{i}{\hbar} \right)^2 |\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1|^2 |E_1|^2 \Theta(t) e^{-t/T_1} \quad (47)$$

Giải phương trình (41) sử dụng (47) ta được

$$\begin{aligned} \delta \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} &= \left(\frac{i}{\hbar} \right)^3 |\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_1|^2 (\mathbf{d}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}_2) |E_1|^2 E_2 e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}} \Theta(\tau) \Theta(t - \tau) \\ &\times e^{-(i\Delta_{cv\mathbf{k}} + 1/T_2)(t - \tau)} e^{-\tau/T_1} \end{aligned} \quad (48)$$

Biến đổi Fourier (48)

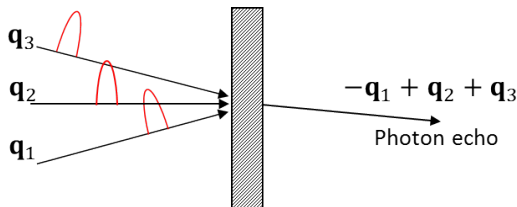
$$\delta \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \delta \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)} \propto -\Theta(\tau) e^{i\omega\tau} e^{-\tau/T_1} \frac{\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega + i/T_2}{(\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega)^2 + 1/T_2^2} \quad (49)$$

Độ hấp thụ vi phân:

$$\delta\alpha(\omega) \propto \text{Im} \left[\delta \bar{p}_{\mathbf{k}}^{(3)(0,1)}(\omega) \right] \propto - \frac{e^{-\tau/T_1}}{\Delta_{cv\mathbf{k}} - \omega)^2 + 1/T_2^2} \quad (50)$$

Bằng cách thay đổi thời gian trễ τ người ta có thể xác định được T_1

Phi tuyến bậc ba: Phổ tiếng vọng photon hai chiều



- Mẫu được kích thích bởi ba xung laser cực ngắn

$$\bar{E}_1(t) = E_1\delta(t) , \bar{E}_2(t) = E_2\delta(t - \tau) , \bar{E}_3(t) = E_3\delta(t - \tau - T)$$

- Tín hiệu tiếng vọng photon truyền theo phương $-\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3$ gọi là rephasing photon echo
- Tín hiệu tiếng vọng photon truyền theo phương $\mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3$ gọi là non-rephasing photon echo

Phi tuyến bậc ba: Phổ tiếng vọng photon hai chiều

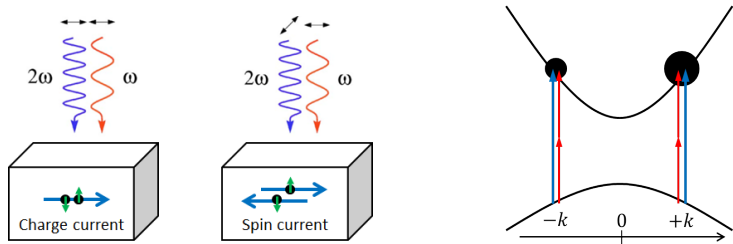
Vector độ phân cực bậc ba truyền theo phương $-\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3$:

$$\mathbf{P}_{\text{pe}}^{(3)}(t, \tau, T) = \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{d}_{\mathbf{k}}^* p_{\mathbf{k}}^{(3)(-1,1,1)} + c.c. \quad (51)$$

Phổ tiếng vọng photon được cho bởi biến đổi Fourier hai chiều

$$\mathbf{P}_{\text{pe}}^{(3)}(\omega_t, \omega_\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{P}_{\text{pe}}^{(3)}(t, \tau, T) e^{i\omega_t t} e^{i\omega_\tau \tau} \quad (52)$$

Phi tuyến bậc ba: Dòng quang điện/spin

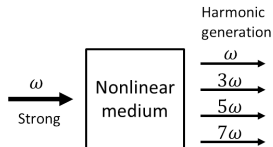


- Trường ánh sáng kích thích gồm hai tần số ω và 2ω với $2\hbar\omega > E_g > \hbar\omega$

$$\mathbf{E}_\omega(t) = \mathbf{e}_\omega \bar{E}_\omega(t) \cos(\omega t + \phi_\omega), \quad \mathbf{E}_{2\omega}(t) = \mathbf{e}_{2\omega} \bar{E}_{2\omega}(t) \cos(2\omega t + \phi_{2\omega})$$

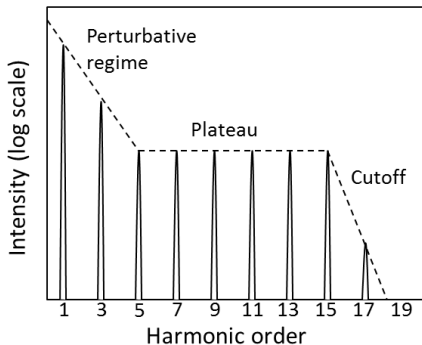
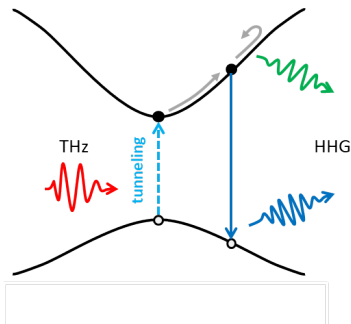
- Giao thoa giữa chuyển mức 1 photon và chuyển mức 2 photon dẫn đến xác suất điện tử bị kích thích phụ thuộc pha tương đối $\phi_{2\omega} - 2\phi_\omega$
- Quá trình phi tuyến bậc ba bao gồm 2 chuyển liên dải (đối xứng theo k) và 1 chuyển nội dải (phản đối xứng theo k) tạo thành phân bố điện tử bất đối xứng trong không gian k , tương ứng là sự xuất hiện dòng điện hoặc spin

Phi tuyến cực đoạn: High-order Harmonic Generation

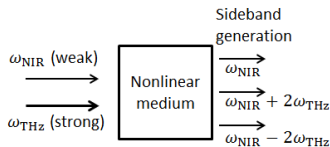


- Trường kích thích không cộng hưởng và có cường độ rất mạnh
- Các điện tử và lỗ trống được sinh do hiệu ứng chui ngầm

- Bức xạ HHG bao gồm bức xạ nội dải do sự gia tốc của điện tử, lỗ trống và bức xạ liên dải do sự tái hợp điện tử - lỗ trống



Phi tuyến cực đoạn: High-order Sideband Generation



- Trường hồng ngoại gần cường độ yếu kích thích cộng hưởng tạo ra các exciton
- Trường THz cường độ mạnh ion hóa exciton thành điện tử, lỗ trống và gia tốc chúng
- Điện tử tái hợp lỗ trống và bức xạ HSG

