Szegedi Tudományegyetem
Fizika Doktori Iskola
Természettudományi és Informatikai Kar
Elméleti Fizikai Tanszék

Fényindukált töltéstranszport szilárdtestekben: kvantummechanikai leírás

Doktori (Ph.D.) értekezés tézisei

írta
Magashegyi István

Témavezető:
Dr. Földi Péter
egyetemi docens

Szeged
2022

Bevezetés

A lézertechnológia rohamos fejlődésének köszönhetően napjainkban már a femtoszekundumos (fs-os) impulzusok keltése is könnyen megvalósítható. Ezek a források hatékony eszközökként szolgálnak a különféle kémiai és fizikai folyamatok nagy időfelbontású feltérképezése során [1, 2].

Ezeknek az ultrarövid fényimpulzusoknak az elektromágneses tere jellemzően pár optikai ciklusból áll, aminek köszönhetően igen fontos paraméterük az ún. vivő-burkoló fázis (Carrier-envelope phase, rövien CEP), ami lényegében a maximális térerősség időbeli eltolódását jelenti az impulzus burkolójának maximumához képest. A napjainkban standardnak számító CEP-et mérő berendezések vákuumkarában lévő gázatomok ionizációján alapulnak. A csúcstechnológiás laborokban demonstrált legújabb eredmények azonban rávilágítottak arra, hogy a CEP meghatározása szilárdtestekben keltett töltések és töltésáramlások közvetlen mérésével is megvalósítható [3, 4].

Az ultrarövid lézerimpulzusok karakterizálásának ilyen irányú fejlődése irányította az érdeklődésünket a szilárdtestekben végbemenő töltéstranszport folyamatokra. A szilárdtest mint sokrészecske-rendszer rendkívül összetett, ezért közelítések és kompromisszumok nélküli teljes leírása kivitelezhetetlen. A külső lézerimpulzus alatt végbemenő dinamika meghatározására több különböző megközelítés létezik: egyelektron képet alkalmazó Schrödinger–egyenlet, Green-függvény technika és a Bloch–egyenletekre épülő módszerek [5–7]. Természetesen a folyamat teljes értékű leírásához az elektron–elektron kölcsönhatásokat is figyelembe vevő többrészecske modellre van szükség. Ennek ellenére számtalan különböző rendszer esetén sikerült az egyensúlyi kvantumos transzport tulajdonságokat megfelelően reprodukálni egyelektron képben is [8].

Dielektrikum szilárdtest mintákban, mint például a szilícium-dioxid, kelthetünk olyan áramokat, amelyek szoros kapcsolatban állnak a keltő elektromágneses impulzussal [3]. Ezekben a kísérletekben a fs-os időskálán keltett áramok hasonlóan gyorsan el is tűnnek, ami ideális kiindulópont lehet az ultragyors kapcsolási technikák kifejlesztéséhez [9]. Azonban a széles tiltott sávval rendelkező anyagok alkalmazása egyúttal korlátot is jelenthet, mivel nagy térerősségekre van szükség a többfotonos folyamat lejátszódásához. Vezetők és félvezetők esetében az áramok keltéséhez sokkal kisebb térerősségek is elegendők. Az áramok könnyű keltése miatt ez esetben a jelenséget detektálási célokra használhatjuk. Ez lehetővé teheti olyan megfizethető szilárdtest alapú detektorok kifejlesztését, amelyek képesek lehetnek a gerjesztő impulzus paramétereinek meghatározására.

Ahogy az a fentiekben felsorolt kísérleti eredmények is mutatják, a szilárdtestekben lokálisan keltett töltések vizsgálata egyre intenzívebben kutatott terület.

Célkitűzések

A disszertációban bemutatott doktori munka fő célja az volt, hogy megvizsgáljuk az elektronok kölcsönhatását térben lokalizált elektromágneses impulzusokkal. Érdemes itt kiemelni, hogy dipólközelítés alkalmazása esetén, amikor azt feltételezzük, hogy az elektromágneses tér térfüggése elhanyagolható, a kvantummechanikai állapotok időfejlődése analitikusan meghatározható, ekkor ugyanis a szabad töltött részecske nem nyer energiát az egymódusú elektromágneses térrel történő kölcsönhatása során. A lokális gerjesztés alapfeltétele tehát annak, hogy nem triviális időfejlődéssel rendelkező dinamikát vizsgálhassunk.

Első lépésként a fémek vezetési sávjában keltett áramok kapcsolatát vizsgáltuk a keltő impulzussal, több különböző paraméter figyelembe vételével. A célunk azt volt, hogy meghatározzuk, hogy a vezetési sávban lévő, különböző kezdeti síkhullám állapotok hogyan változnak meg a külső gerjesztés hatására. Célunk volt továbbá az energia-sajátállapotok együttes dinamikájának meghatározása is adott hőmérsékletű szilárdtestben. Terveztük továbbá a keltő elektromágneses tér és az egyes állapotok valószínűségi árama közötti kapcsolat feltérképezését is. Mélyebb betekintést szerettünk volna nyerni abba, hogy a jellemzően fémekben ultrarövid impulzusok által keltett áramok milyen kapcsolatban állnak a keltő impulzus (időbeli) hosszával, központi hullámhosszával, valamint a kivilágítás szélességével, illetve a kezdő állapot energiájával. Meg szerettük volna határozni továbbá azt, hogy a rendszer különböző fizikai paramétereihez köthető idők megjelennek-e, és ha igen, milyen mértékben a keltett áramok spektrumában.

Napjaink csúcstechnológiás detektorai sem képesek az ultrarövid impulzusok által keltett áramok időfüggésének kellő felbontású direkt mérésére. Az áram időintegráljának, azaz a töltésnek a mérésére ezzel ellentétben több különféle módszer található. A kísérleti eredmények elméleti hátterének kidolgozása során az egyik legnagyobb nehézség a kölcsönhatás természetéből fakadó különböző időskálák összeegyeztetése. A lézerimpulzus jellemzően néhány femtoszekundum hosszúságú, míg a kölcsönhatás során keletkezett töltések nagyságrendekkel nagyobb, általában ps-os időskálán érik el a detektort. A különféle elméleti megközelítések numerikus megvalósítása ennek köszönhetően nehezen optimalizálható. Érdemes tehát egy olyan módszert keresni, amelyhez nincs szükség az állapot explicit időfüggésére a detektálási pontig történő terjedés során. A

fentieket figyelembe véve, az áramok vizsgálata után a célunk egy hatékony eszköz kidolgozása volt a szilárdtestekben lézerimpulzus hatására elmozduló töltések meghatározására. Célul tűztük ki egy analitikus formula megalkotását a töltéstranszportra egyetlen kvadratikus sáv figyelembe vételével, valamint ezeknek a számításoknak az általánosítását többsávos esetre.

Módszerek

Az egyszerűség kedvéért egydimenziós modellel dolgoztunk, ami ennek ellenére kísérleti szempontból is releváns lehet például nanohuzalok, vagy jól vezető szén nanocsövek lézerimpulzussal történő kölcsönhatása során [10–12].

A kvantummechanika hajnalán megalkotott Born–Oppenheimer–közelítés segítségével szét lehet választani az atommagok és az elektronok dinamikáját. Ennek a szilárdtestfizikában alapvetőnek számító közelítésnek köszönhetően az atommagok helyzetét rögzítettnek tekinthetjük és az elektronokat úgy kezelhetjük, mint egy rácsperiódikus potenciálban mozgó töltött részecskét. A vizsgálataink során az egyrészecske–képet alkalmaztuk, azaz úgy tekintettünk minden elektronra, mintha egyedül terjedne a kristályrács periodikus potenciáljában. A periodicitásnak köszönhetően a szilárdtestbeli elektronok ún. Bloch–állapotait egy rácsperiodikus függvény és egy síkhullám szorzataként írhattuk fel. Ezeket a Bloch–állapotokat az időfüggetlen Schrödinger–egyenlet megoldásával kaptuk meg.

Félvezetők, illetve fémek vezetési sávjának leírása során, amikor a Fermi–nívó a sáv aljának közelében helyezkedik el, gyakran alkalmazzák az ún. effektív tömeg közelítést. Ennek lényege, hogy a vezetési sávot,

vagy a legnagyobb energiás valenciasávot egy kvadratikus diszperziós reláció segítségével közelítik. Ekkor a kvadratikus tag előtt megjelenik egy – szokásosan $1/m^*$ alakba írt – szorzótényező, ami egy 1/tömeg dimenziójú mennyiség. Felírva a kristályrácsbéli elektron mozgásegyenletét azt láthatjuk, hogy ez az m^* tölti be a tömeg szerepét, ezért effektív tömegnek nevezik.

Ballisztikus vezetőkről akkor beszélhetünk, amikor a vizsgált mintára ideálisnak tekintett kontaktusok segítségével külső elektromotoros teret kapcsolunk és klasszikus képet használva a külső tér által hajtott elektron lényegében ütközés nélkül halad át a mintán. Más szóval, az elektron szabad úthossza nagyobb, mint a mintán lévő kontaktusok távolsága. Ennek a feltételnek a teljesülése esetén a gerjesztett elektronok dinamikáját a Landauer-Büttiker formalizmuson alapuló modell segítségével írhatjuk le. Ennek a módszernek a lényege, hogy az egyes energia sajátállapotokat egymástól függetlenül kezeljük és az egyes sajátállapotok által létrehozott áramkomponenseket egyenként számoljuk ki, majd az így kapott áramokat összegezve határozzuk meg azok eredőjét [8].

A külső lézerimpulzus alatt a fényindukált dinamika meghatározására az egyelektron képben felírt időfüggő Schrödinger–egyenletet használtuk először valós térben, majd síkhullámbázisban felírva. Ezt egy negyedrendű adaptív lépésközű Runge–Kutta-módszer segítségével oldottuk meg [13].

Tudományos eredmények

Az alábbiakban találhatók a dolgozatban bemutatott új tudományos eredményeim. A tézispontjaimhoz kapcsolódó publikációkat a füzet végében

található listában gyűjtöttem össze. Az adott tézisponthoz kötődő publikációt a tézispont végén hivatkozom.

1. **Lokális gerjesztések egydimenziós modellje**

   Szilárdtestek és lézerimpulzusok kölcsönhatását vizsgáltam. Módszert dolgoztam ki egy dimenzióban, egyrészecske–képben, effektív tömeg közelítést alkalmazó modellben a vezetési sávbeli elektronok és térben lokalizált lézerimpulzus kölcsönhatásának a leírására. Ez a numerikus eljárás túlmutat a szokásosan alkalmazott dipólközelítés keretein és alkalmas a fókuszfoltban keletkező, majd onnan tovaterjedő elektronsűrűség-oszcillációk tanulmányozására [P1].

2. **Kvantumos szórás valószínűségi áramsűrűségének időfüggése**

   Az 1. pontban ismertetett módszert alkalmazva vizsgáltam a lézerindukált dinamika függését az elektronenergiáktól és a kivilágítás szélességétől. Kiszámítottam a lézerimpulzus által keltett áram időfüggését, majd Fourier–transzformáció segítségével megmutattam, hogy a gerjesztő tér vivőfrekvenciájának a súlya a spektrumban annál kisebb, minél lassabbak az elektronok, illetve minél szélesebb a kölcsönhatási tartomány [P1].

3. **A ponderomtoros potenciál szerepének feltérképezése**

   A kapott eredményeket fizikailag értelmeztem a ponderomotoros potenciál koncepcióját felhasználva. Klasszikus képben az effektust úgy interpretálhatjuk, hogy a kölcsönhatási tartományon áthaladó elektron mozgására a lézertér által indukált oszcilláció rakódik rá, ami a haladó mozgás szempontjából egy effektív potenciált jelent. Ennek a potenciálnak a hatása annál erősebb, minél több időt tölt az

elektron a kölcsönhatási tartományban, ami összhangban van az előző tézispontban talált összefüggésekkel. Lassú elektronok és/vagy széles kivilágítási tartomány esetén a lézerindukált dinamika közel megegyezik egy, az impulzus burkolója szerint megjelenő, majd eltűnő potenciál által létrehozott időfejlődéssel [P1].

4. **Töltéstranszport egydimenziós kvadratikus sávban**

   A lézerimpulzus által gerjesztett elektronsűrűség-oszcillációk időfüggő áramot jelentenek, azonban ezeknek az áramoknak az időfüggése – éppen a gyors oszcillációk miatt – a jelenlegi kísérleti eljárásokkal nem határozható meg. Időintegráljuk – azaz a lézerimpulzus által elmozdított összes töltés – azonban megfelelő technikával már mérhető. Ennek elméleti meghatározására először egyetlen kvadratikus diszperzióval rendelkező vezetési sávot tekintettem egyelektron–közelítést alkalmazva. Az általam kapott analitikus eredményt numerikusan és a Gauss-hullámcsomag példájának segítségével analitikusan is validáltam [P2].

5. **Töltéstranszport egydimenziós kvantummechanikai modellje szilárdtestekben**

   A modell továbbfejlesztéseként megvizsgáltam a több sávot is figyelembe vevő egydimenziós esetet is. Ekkor célszerű a lézerimpulzus utáni állapotot nem egyszerűen síkhullámok, hanem Bloch–állapotok lineáris szuperpozíciójaként tekinteni. Kontúrintegrálok alkalmazásával ebben az esetben is analitikus összefüggést kaptam, amelynek a segítségével a lézerimpulzus által elmozdított összes töltés meghatározható, attól függően, hogy a kölcsönhatási tartomány melyik oldalán van a detektor. A kapott összefüggés jól interpretál-

ható fizikai képet jelent [P2].

6. **Töltéstranszport három dimenzióban**

   További általánosításként megmutattam, hogy az előző pontban leírt eredmény átvihető a háromdimenziós esetre is. Ekkor a detektálási pontok szerepét síkok veszik át, és azt a kérdést tudjuk megválaszolni, hogy a lézeres gerjesztés után egy kiválasztott síkon keresztül mennyi, a kölcsönhatás következményeként elmozduló töltés áramlik át. Ezzel az egyelektron képet használó modellen belül a lehető legáltalánosabb formulát adtam meg ezeknek a töltéseknek a kiszámítására [P2].

Summary

State of the art experiments with ultrashort laser pulses can explore physical processes that are as fast as the dynamics of the electrons in molecular or atomic systems [1, 2]. The propagation and the absorption of wideband electromagnetic radiation through a medium significantly depends on the temporal behaviour, the "waveform" of the pulse. From this point of view, one of the most important parameters is the carrier–envelope phase (CEP). The characterization of the laser pulses through measurements, often using a single shot only, means a considerable challenge. In recent experiments [3, 9], the value of the CEP is determined from the currents and charges that were generated by the light pulses impinging on the surface of a solid.

Our aim was to develop a quantum mechanical solid state model, which can efficiently be used to investigate light–induced charge transport, and to analyse and understand the related physical processes in detail. As a first step, using single electron picture and effective mass approximation, I developed a model for describing the laser-induced dynamics in the conduction band of one-dimensional solids. I calculated the time dependent current, and used Fourier transform to obtain the corresponding spectrum. I showed that the carrier frequency of the exciting pulse has weaker contribution to the spectrum when the electron energies decrease or the laser spot size increases. I provided a clear physical interpretation of my numerical findings in terms of the ponderomotive potential [P1].

The density oscillations that are induced by the laser pulse correspond to rapidly oscillating currents, the time dependence of which, however, is beyond the reach of currently available detectors. I obtained an analytic equation for the displaced charge, which was verified numerically and also by using the example of a Gaussian wave packet. As a natural way to

proceed, I investigated one-dimensional crystals with multiple bands and determined the net charge that was displaced by the laser pulse. I have shown that these results can be transferred to three dimensional systems as well, which leads to a general description of the problem in the framework of one-electron approximation [P2].

Az értekezéshez felhasznált publikációk:

[P1] I. Magashegyi, L. Zs. Szabó, and P. Földi, „*Ultrashort laser-pulse-driven currents in conductors: one-dimensional model for local excitation in the single-electron picture with quadratic dispersion* “, *J. Opt. Soc. Am. B* **35**, A116-A125 (2018)

[P2] I. Magashegyi, K. Oltyán, and P. Földi, „*Analytic expression for the charge carried by a locally excited Bloch state* “, *Physical Review B* **103**, 245204 (2021)

Egyéb publikációk:

- J. Kasza, I. Magashegyi, P. Dombi and P. Földi, „*Polarization dependence of atomic high-order harmonic generation: Description using a discrete basis* “, *Phys. Rev. A* **105**, 033105 (2022)

- V. Szaszkó-Bogár, P. Földi, I. Magashegyi and K. Varjú, „*Interference-Induced Phenomena in High-Order Harmonic Generation from Bulk Solids* “, *Appl. Scl.* **9**(8), 1573 (2019)

Hivatkozások

[1] A. Baltuška, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, and F. Krausz, „Attosecond control of electronic processes by intense light fields," *Nature*, vol. 421, pp. 611–615, Feb. 2003.

[2] M. Kretschmar, A. Hadjipittas, B. Major, J. Tümmler, I. Will, T. Nagy, M. J. J. Vrakking, A. Emmanouilidou, and B. Schütte, „Attosecond investigation of extreme-ultraviolet multi-photon multi-electron ionization," *Optica*, vol. 9, p. 639, June 2022.

[3] A. Schiffrin, T. Paasch-Colberg, N. Karpowicz, V. Apalkov, D. Gerster, S. Mühlbrandt, M. Korbman, J. Reichert, M. Schultze, S. Holzner, J. V. Barth, R. Kienberger, R. Ernstorfer, V. S. Yakovlev, M. I. Stockman, and F. Krausz, „Optical-field-induced current in dielectrics," *Nature*, vol. 493, pp. 70–74, Dec. 2012.

[4] M. Kubullek, Z. Wang, K. von der Brelje, D. Zimin, P. Rosenberger, J. Schötz, M. Neuhaus, S. Sederberg, A. Staudte, N. Karpowicz, M. F. Kling, and B. Bergues, „Single-shot carrier–envelope-phase measurement in ambient air," *Optica*, vol. 7, p. 35, Jan. 2020.

[5] H. Haug and S. W. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific, Jan. 2009.

[6] B. Gaury, J. Weston, M. Santin, M. Houzet, C. Groth, and X. Waintal, „Numerical simulations of time-resolved quantum electronics," *Physics Reports*, vol. 534, pp. 1–37, Jan. 2014.

[7] R. Buschlinger, M. Lorke, and U. Peschel, „Light-matter interaction

and lasing in semiconductor nanowires: A combined finite-difference time-domain and semiconductor bloch equation approach," *Phys. Rev. B*, vol. 91, p. 045203, Jan 2015.

[8] S. Datta, *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*. Cambridge University Press, Sept. 1995.

[9] V. Hanus, V. Csajbók, Z. Pápa, J. Budai, Z. Márton, G. Z. Kiss, P. Sándor, P. Paul, A. Szeghalmi, Z. Wang, B. Bergues, M. F. Kling, G. Molnár, J. Volk, and P. Dombi, „Light-field-driven current control in solids with pJ-level laser pulses at 80 MHz repetition rate," *Optica*, vol. 8, p. 570, Apr. 2021.

[10] J.-C. Charlier, X. Blase, and S. Roche, „Electronic and transport properties of nanotubes," *Reviews of Modern Physics*, vol. 79, pp. 677–732, May 2007.

[11] Á. Kukovecz, R. Smajda, M. Őze, B. Schaefer, H. Haspel, Z. Kónya, and I. Kiricsi, „Multiwall carbon nanotube films surface-doped with electroceramics for sensor applications," *Physica Status Solidi (b)*, vol. 245, pp. 2331–2334, Aug. 2008.

[12] R. Rurali, „Colloquium: Structural, electronic, and transport properties of silicon nanowires," *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, pp. 427–449, Feb. 2010.

[13] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, *Numerical Recipes 3rd Edition: The Art of Scientific Computing*. USA: Cambridge University Press, 3 ed., 2007.