

## К ВОПРОСУ О ПРИРОДЕ «КОГЕРЕНТНОГО АРТЕФАКТА»

М. В. Лебедев<sup>a\*</sup>, О. В. Мисочко<sup>a</sup>, Т. Декорси<sup>b</sup>, Н. Георгиев<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Институт физики твердого тела Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

<sup>b</sup> Institute for Ion Beam Physics and Materials Research  
Forschungszentrum Rossendorf, P.O. Box 510119, D-01314 Dresden, Germany

Поступила в редакцию 18 июня 2004 г.

Экспериментально изучена временная область когерентного взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов в методике накачки – зондирования при наблюдении отражения света от монокристалла теллура. В этой области обнаружено периодическое изменение оптического отклика среды с частотой, равной частоте возбуждающего света. Полученные экспериментальные зависимости «когерентного артефакта» от соотношения интенсивностей накачки и зондирования, числа накоплений, а также взаимной ориентации поляризационных векторов электромагнитных полей и кристаллографических осей хорошо описываются феноменологической моделью.

PACS: 78.47.+p

### 1. ВВЕДЕНИЕ

В последние десятилетия отмечается значительный интерес к изучению отклика конденсированных сред на воздействие сверхкороткого лазерного импульса, в котором энергия сконцентрирована в малом временном, пространственном и спектральном диапазонах [1]. Исследовательская активность в данном направлении во многом обусловлена успехом лазерной технологии, позволившим сократить длительность лазерного импульса до субпикосекундного диапазона и тем самым открывшим путь изучения в реальном времени многих процессов, отвечающих за свойства твердых тел. Одним из основных способов, обеспечивающих доступ к изучению быстрой динамики, является методика накачки – зондирования. При проведении измерений в методике накачки – зондирования среда возбуждается мощным коротким лазерным импульсом, после чего оптические свойства этой среды измеряются гораздо более слабым зондирующим импульсом, получающимся, как правило, в результате отщепления части света от основного лазерного пучка с помощью светоделительной пластинки и значительного

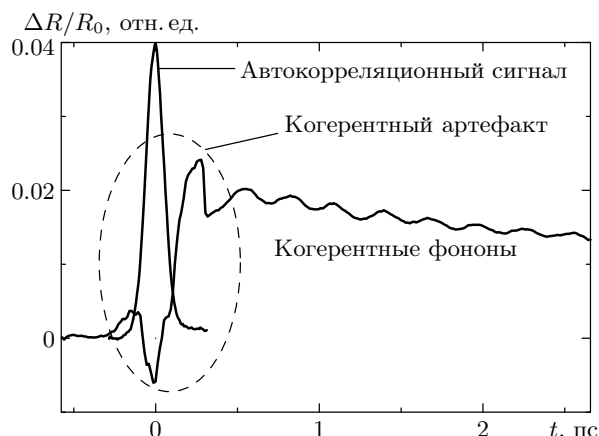


Рис. 1. Разрешенное во времени нормированное дифференциальное отражение  $\Delta R/R_0$  монокристалла Те, полученное с временным разрешением 6 фс при комнатной температуре и плотности энергии лазерного импульса  $0.1 \text{ мДж/см}^2$

его ослабления. Первый импульс фактически przygotowывает некоторое неравновесное состояние среды, а с помощью второго, зондирующего (пробного) импульса, который в силу своей малой интенсивности сам практически не изменяет состояния среды, происходит изучение процесса релаксации си-

\*E-mail: lebedev@issp.ac.ru

стемы к равновесному состоянию. Изложенные выше представления оказываются, однако, совершенно неадекватными экспериментальной ситуации в области нулевой задержки пробного импульса относительно накачивающего, т. е. там, где наблюдается временное перекрытие импульсов накачки и зондирования на образце. Здесь уже нельзя рассматривать один из импульсов как возбуждающий, а второй как зондирующий, поскольку возбуждение среды принципиально зависит от когерентной суперпозиции импульсов и малость интенсивности пробного импульса вовсе не означает, что его влияние окажется пренебрежимо малым. В эксперименте в области нулевых задержек часто наблюдаются необычные и плохо воспроизводимые отклонения от экстраполируемых к нулю измеряемых кривых, см. рис. 1. Все эти явления получили в литературе, посвященной когерентным фононам [2, 3], довольно неудачное, на наш взгляд, название «когерентный артефакт», отражающее, с одной стороны, его связь с временным перекрытием импульсов, а с другой — его нерегулярный и плохо контролируемый характер. Фононы, возбужденные ультракороткими световыми импульсами, обычно называются когерентными, поскольку длительность возбуждающего импульса меньше периода колебаний решетки, при этом возникновение осцилляций может быть с равным успехом описано в непрозрачных средах феноменологическими моделями механизма смещения и механизма, во многом сходного с неупругим рассеянием света [2, 3]. Обычно исследователи стараются минимизировать сигнал «когерентного артефакта», используя для этого ортогональные поляризации накачки и зонда, невырожденную схему методики накачка–зондирование и т. п. [2, 3]. Относительно природы «когерентного артефакта» имеется несколько точек зрения. Как правило, его возникновение связывают с нелинейно-оптическими эффектами (реализуемыми для коллинеарной поляризации накачки и зонда) четырехволнового смещения [4], при которых импульс накачки рассеивается в направлении зондирующего импульса за счет создания фазовой решетки. В данной работе приводятся результаты детального экспериментального и теоретического изучения «когерентного артефакта» с субфемтосекундным временным разрешением. Экспериментально показано, что «артефакт», возникающий при ортогональной ориентации поляризаций накачки и зонда, обладает регулярной во времени периодической структурой, является полностью воспроизводимым явлением и хорошо описывается в рамках простой феноменологической модели взаимодействия света со средой. Это откры-

вает возможность изучения отклика среды на предельно коротких временах и, как дополнительный бонус, позволяет установить естественный нуль отсчета времени в методике накачки–зондирования.

## 2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Схема экспериментальной установки показана на рис. 2. В экспериментах использовался перестраиваемый фемтосекундный лазер на титанате сапфира Tsunami фирмы Spectra Physics с накачкой на длине волны 532 нм, осуществлявшейся лазером Millennia Xs (Spectra Physics). Форма импульса оптимизировалась при помощи двухпризменного компрессора и контролировалась автокоррелятором. Перемещая одну из призм, мы подбирали фазовую модуляцию импульса (чирп) для оптимальной компенсации дисперсии групповых скоростей в делительных пластинках, линзах и других прозрачных элементах на пути накачивающего и зондирующего пучков, добиваясь минимальной длительности импульса непосредственно в плоскости образца. Эта длительность определялась по наблюдению нелинейного пропускания кристалла GaP и составляла 90 фс. Для контроля спектрального состава импульса использовался монохроматор с многоканальной системой регистрации. Форма импульса и его спектр отображались в реальном времени на мониторе автокоррелятора и на экране компьютера, так что мы имели возможность постоянно контролировать и при необходимости подстраивать необходимые параметры импульсов. В измерениях использовалась система быстрого сканирования AIXscan, состоящая из шейкера (углового ретрорефлектора, помещенного на управляемый прецизионным генератором электромагнитный вибратор), линии задержки с шаговым двигателем, быстрого двенадцатизрядного амплитудно-цифрового преобразователя (использовались скорости оцифровки 0.5 и 1.0 МГц) и специализированной управляющей программы на персональном компьютере. Применение шейкера позволяло сканировать и отображать на экране сразу целый диапазон временных задержек, в то время как начальная задержка этого диапазона устанавливалась линией задержки. Оцифровка сигнала проводилась только на прямом ходе шейкера. Измерения проводились при комнатной температуре. Исследуемый образец помещался в фокусе линзы  $L$  с фокусным расстоянием 90 мм, на которую параллельно ее оптиче-

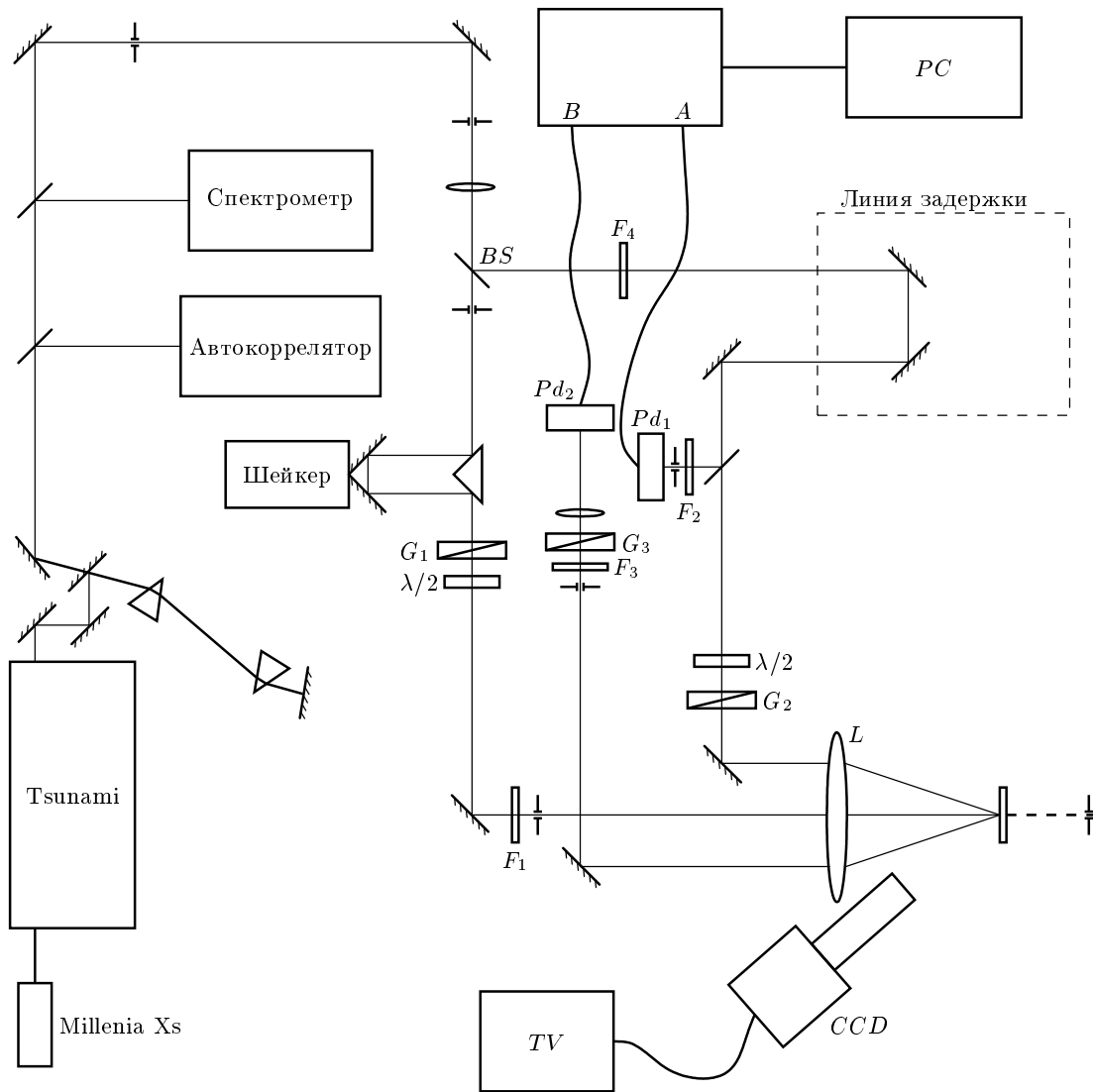


Рис. 2. Схема экспериментальной установки

ской оси направлялись накачивающий и зондирующий импульсы. Параллельность лазерных пучков перед линзой, необходимая для оптимального пространственного перекрытия накачивающего и зондирующего пучков, тщательно контролировалась при юстировке системы. Эти пучки фокусировались линзой в одно и то же пятно на поверхности кристалла. Система визуализации, состоявшая из объектива с переменным фокусным расстоянием, ССD-камеры и телевизионного монитора, позволяла производить острую фокусировку на поверхность кристалла и контролировать совмещение пятен накачивающего и зондирующего пучков. Накачивающий импульс попадал на кристалл через шейкер, после которо-

го была установлена призма Глана  $G_1$  (для устранения паразитной поляризации), полуволновая пластинка, позволявшая поворачивать плоскость поляризации накачивающего пучка, и нейтральный светофильтр переменной оптической плотности  $F_1$ , служивший для выставления требуемой интенсивности накачки. Пробный пучок получался в результате отщепления небольшой части накачивающего с помощью светоделительной пластинки  $BS$ . Он проходил через линию задержки, полуволновую пластинку и призму Глана  $G_2$ . Призма Глана задавала поляризацию пробного пучка, а требуемая интенсивность его выставлялась поворотом полуволновой пластинки, изменявшей величину проекции вектора элек-

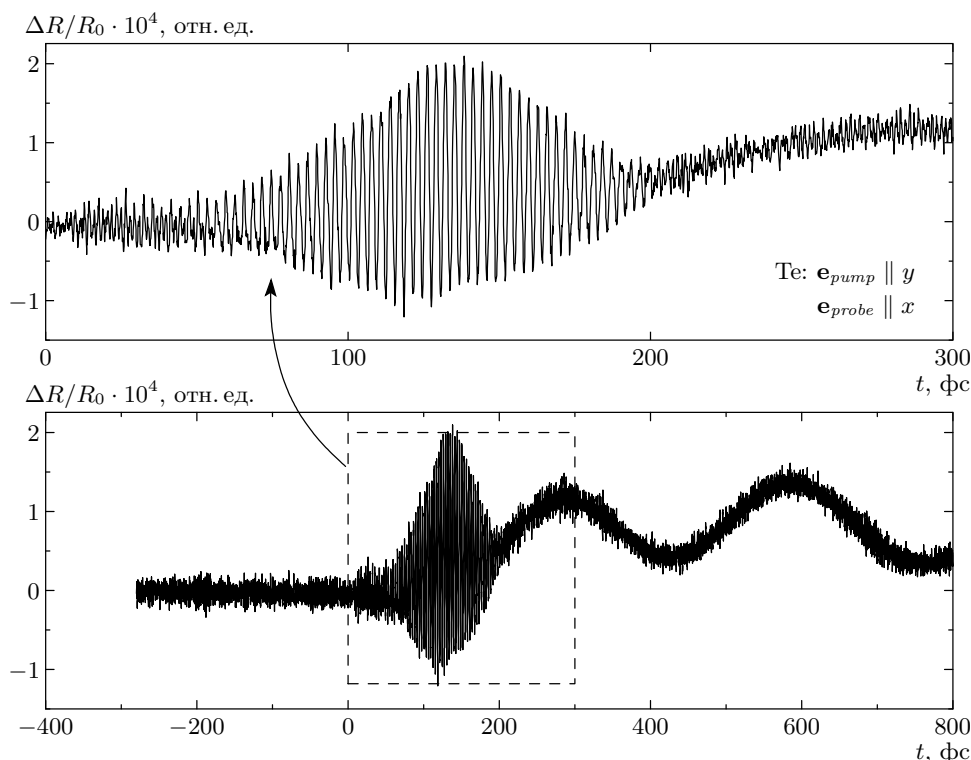
трического поля на выбранное направление поляризации. Пучки возбуждающего и зондирующего импульсов разделялись посредством пространственной фильтрации при помощи диафрагмы, расположенной перед нейтральным светофильтром  $F_3$ . За счет колебаний вибратора шейкера осуществлялось сканирование определенного интервала временных задержек пробного и накачивающего импульсов, при этом с помощью быстрого аналого-цифрового преобразователя велось накопление данных в памяти компьютера. Линия задержки служила для грубого выравнивания оптических путей пробного и накачивающего импульсов, а также для калибровки развертки шейкера. Для повышения скорости накопления данных и расширения рабочего диапазона временных задержек, обеспечиваемого шейкером, предпочтительнее работать с большими амплитудами перемещения уголкового отражателя и на относительно высокой частоте колебаний шейкера. Нетрудно видеть, что для обеспечения максимального временного разрешения установки требуется как раз обратная ситуация — наименее быстрое перемещение уголкового отражателя, что достигается уменьшением амплитуды и частоты колебаний шейкера. Мы работали обычно с амплитудами колебаний шейкера в 2–3 раза меньше максимальной и на частоте около 40 Гц. Стабильность частоты шейкера была на уровне  $\pm 10^{-3}$  Гц, что позволяло оцифровывать диапазон задержек около 4 пс с шагом примерно 0.1 фс на точку. При этом ошибка из-за нестабильности частоты была сравнима с дискретностью оцифровки. Уменьшение сканируемого диапазона и частоты колебаний шейкера при прочих равных условиях приводит, очевидно, к повышению точности оцифровки, однако это сопровождалось в нашем случае ухудшением условий для работы программы автоматической калибровки временной шкалы. Эта программа задавала при помощи линии задержки ряд известных временных сдвигов между накачивающим и зондирующим импульсами и затем, сравнивая данные временные сдвиги со сдвигом импульса, отраженного от шейкера, находила коэффициенты калибровки временной шкалы, учитывая таким образом нелинейность развертки. Наименьшие параметры, при которых программа еще успешно работала — частота шейкера 34.76 Гц, диапазон калибровки около 4 пс. Отметим, что в стандартном эксперименте накачка–зондирование, в котором регистрация сигнала происходит при помощи синхронного детектирования, дискретность оцифровки определяется шагом линии задержки и не превышает, как правило, 6.6 фс на точку [2,3].

В наших экспериментах измерялась релаксация вызванного накачивающим импульсом изменения коэффициента отражения или (в случае прозрачного кристалла GaP, применявшегося для калибровки установки) коэффициента пропускания кристалла. Эти изменения невелики, и для повышения точности измерений использовалась следующая дифференциальная методика. Часть пробного пучка до попадания его на кристалл отщеплялась делительной пластинкой и направлялась на фотодиод  $Pd_1$ . Отраженный от кристалла пробный пучок регистрировался фотодиодом  $Pd_2$ . Сигналы с фотодиодов подавались на входы  $A$  и  $B$  дифференциального усилителя, разность  $A - B$  усиливалась и измерялась с помощью быстрого АЦП системы AIXscan. Каналы  $A$  и  $B$  тщательно балансировались (сигналы фотодиодов уравнивались с помощью нейтрального фильтра  $F_2$  с переменной оптической плотностью перед фотодиодом  $Pd_1$ ) при отсутствии накачивающего импульса. В результате мы регистрировали сигнал, пропорциональный изменению коэффициента отражения на уровне  $10^{-3}$ – $10^{-5}$  от самого коэффициента отражения. Дифференциальный усилитель имел встроенный частотный фильтр, что позволяло регистрировать сигнал только в ограниченной полосе частот и повышать за счет этого отношение сигнал–шум. Для изучения когерентных фононов оказалось вполне достаточно полосы частот 1 Гц–3 кГц, поскольку при этом искажений отвечающих им осцилляций (с периодом около 300 фс) практически не происходит. При изучении когерентного артефакта период изменения сигнала составлял, однако, около 3 фс, что потребовало расширения частотного диапазона, который был в наших измерениях обычно 1 Гц–300 кГц.

Все измерения проводились на базисной плоскости монокристалла теллура, который кристаллизуется при комнатной температуре в гексагональной решетке пространственной группы  $D_3^6$ .

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

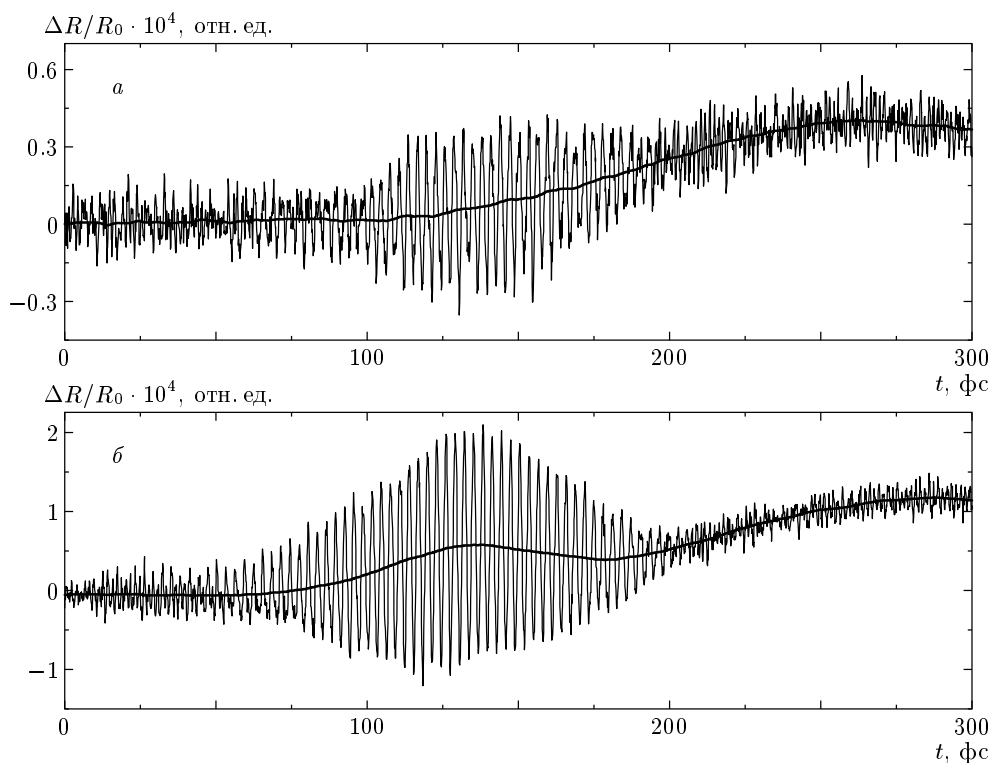
При изучении когерентных фононов когерентный артефакт обычно проявляется как некоторая особая область в начале осциллирующих с частотой фононной моды релаксационных кривых [2, 3]. Это хорошо видно в нижней части рис. 3, где артефакт показан вместе с двумя начальными осцилляциями коэффициента отражения, вызванными воз-



**Рис. 3.** Вид «когерентного артефакта» с высоким временным разрешением. Хорошо видна его регулярная структура. На нижнем графике показаны две первые осцилляции коэффициента отражения, связанные с возбуждением в кристалле Te полносимметричных  $A_1$  когерентных фононов. Мощность пучка накачки 37 мВт, зондирующего пучка 3.2 мВт, количество накоплений 100,  $e_{pump} \parallel y$ ,  $e_{probe} \parallel x$

буждением когерентных полносимметричных фононов в кристалле теллура [5]. Сравнивая рис. 1 и 3, можно видеть, что при повышении временного разрешения проявляется регулярная периодическая структура артефакта, как показано в верхней части рис. 3. С первого взгляда бросается в глаза, что быстрые осцилляции происходят не относительно нулевой линии, а относительно некоторой медленно в данном масштабе времен меняющейся функции, которую нетрудно выделить из осциллирующей кривой путем усреднения последней по периоду осцилляций. Результаты такого выделения при различных соотношениях интенсивностей накачивающего и зондирующего импульсов показаны на рис. 4. Видно, что при равенстве интенсивностей накачивающего и зондирующего пучков быстрые осцилляции происходят практически симметрично относительно нулевого уровня, в то время как при значительном превышении интенсивности накачивающего импульса интенсивности зондирующего появляется медленно меняющаяся положительная по знаку добавка к коэффициенту отражения. Величина этой добавки су-

щественно зависит от ориентации поляризаций пучков по отношению к кристаллографическим осям. Соотношение между медленной добавкой и быстро осциллирующей частью отклика изменяется, в частности, при замене роли пучков, т. е. когда пучок, бывший пробным, становится накачивающим и наоборот (для этого необходимо перенести фотодиоды из пробного пучка в накачивающий, оставив поляризации пучков неизменными). На рис. 5 показано изменение артефакта при последовательном повышении интенсивности пробного пучка для случая, когда поляризации обоих пучков повернуты на  $90^\circ$  по отношению к их ориентации на рис. 4. Хорошо видно изменение соотношения между осциллирующей и медленно меняющейся частями отклика, аналогичное показанному на рис. 4. В данной геометрии, однако, вклад медленной части больше, чем на рис. 4, что специально проверялось при одинаковом количестве накоплений кривых. Последнее условие является существенным, поскольку оказалось, что вид артефакта изменяется при изменении количества накоплений. Из этой зависимости, показанной

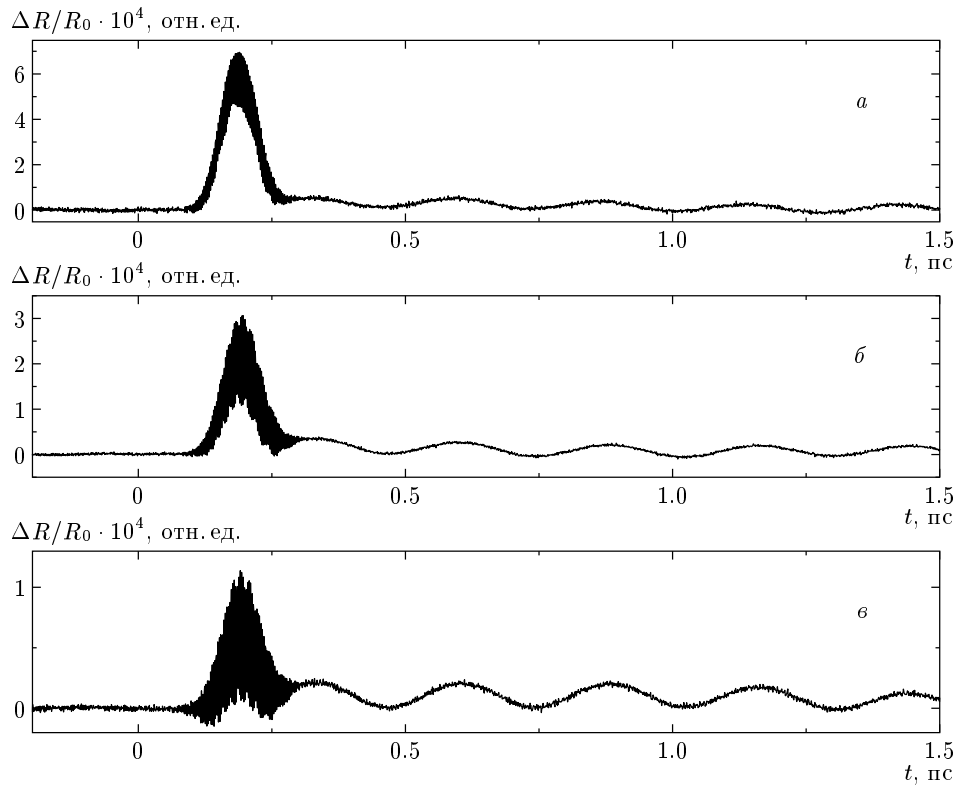


**Рис. 4.** Влияние соотношения интенсивностей накачивающего и зондирующего пучков. При равных интенсивностях осцилляции происходят симметрично относительно нулевой линии. С ростом интенсивности накачки появляется положительная медленно меняющаяся добавка. Плавно меняющиеся кривые получены сглаживанием по периоду артефакта. Количество накоплений 1000,  $e_{pump} \parallel y$ ,  $e_{probe} \parallel x$ . *a* — Интенсивность накачки 7.2 мВт, интенсивность зонда 7 мВт, *б* — интенсивность накачки 37 мВт, интенсивность зонда 3.2 мВт

на рис. 6, следует, что с увеличением количества накоплений относительный вклад осциллирующей части отклика становится меньше. Причиной этого является усреднение кривой со временем вследствие неконтролируемых флуктуаций фазы, возникающих, по-видимому, из-за несовершенства (отсутствие интерферометрической точности) экспериментальной установки. На рис. 7 представлены кривые, полученные в двух последовательно проведенных экспериментах с одинаковым количеством накоплений и с одними и теми же остальными контролируемыми параметрами измерений. Если на одной из кривых наблюдается картина осцилляций с четко выраженным периодом 2.67 фс, то на второй размах осцилляций сильно уменьшен и в промежутках между основными максимумами появляются дополнительные максимумы. Наиболее вероятной причиной этого является, по-видимому, спонтанная флуктуация фазы колебаний шейкера. Период осциллирующей части отклика 2.67 фс с точностью 4.8% совпадает с периодом несущей волны светового им-

пульса 2.80 фс, который, в свою очередь, определен с точностью до 1.3% (длина волны возбуждения  $841 \pm 11$  нм).

Приведенные экспериментальные данные проясняют причину, по которой артефакт проявлялся ранее в виде нерегулярного и плохо воспроизводимого поведения релаксационных кривых в области нулевых задержек. Прежде всего, стандартное временное разрешение (не превышающее 6.6 фс) не позволяло получить осцилляции, период которых меньше 3 фс. Кроме того, для обеспечения высокого отношения сигнал-шум при изучении особенностей кинетики релаксации требуются большие времена накопления, выбор достаточно высокой частоты шейкера и оптимальная фильтрация сигнала. Все это приводит к эффективному усреднению осциллирующей части артефакта и сильному искажению его вида, чувствительному вдобавок к малым неконтролируемым флуктуациям фазы. Чувствительность к интенсивностям пучков и к ориентации их поляризации по отношению к осям кристалла еще более

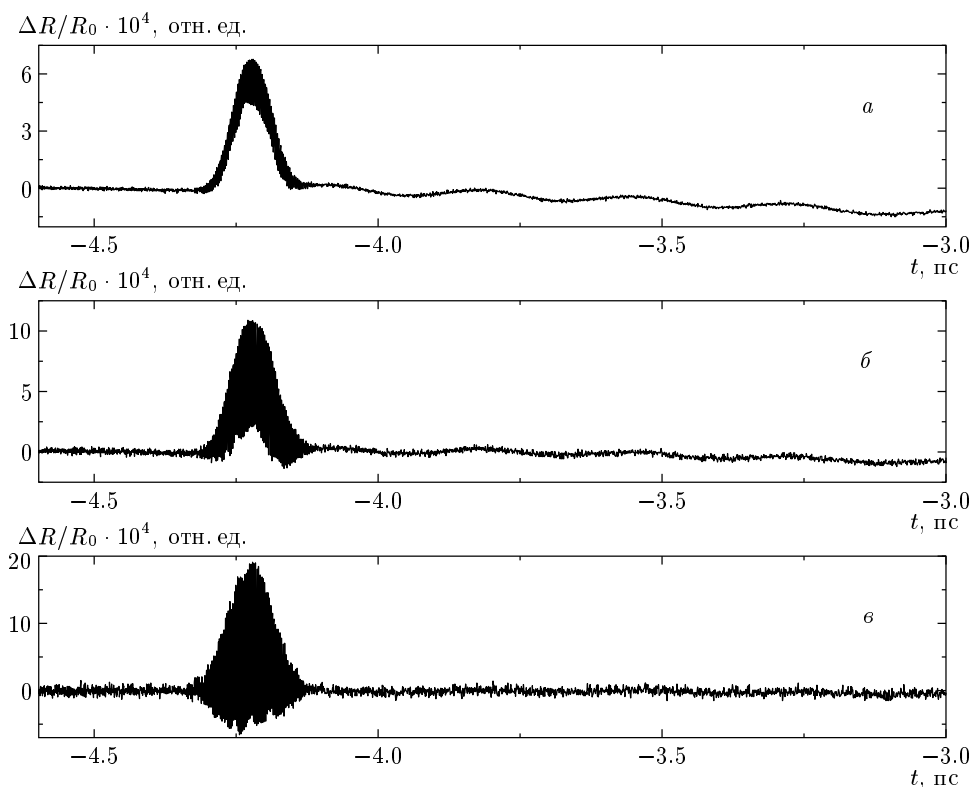


**Рис. 5.** Зависимость вида артефакта от соотношения интенсивностей пучков при другой, чем на рис. 4, ориентации поляризаций относительно кристаллографических осей:  $e_{pump} \parallel x$ ,  $e_{probe} \parallel y$ . Количество накоплений 10000, интенсивность накачки 28.4 мВт, интенсивность зонда 7.2 (а), 18.2 (б), 28.7 (в) мВт

усложняет картину.

Все обсуждавшиеся до сих пор экспериментальные результаты относились, как было сказано выше, к дифференциальным измерениям релаксации изменения коэффициента отражения монокристалла теллура, вызванного мощным фемтосекундным лазерным импульсом. Отметим, что во многом аналогичный набор данных был получен, когда кристалл теллура был заменен на кристалл высокотемпературного сверхпроводника или манганита. Однако в целях краткости изложения мы ограничимся в данной статье обсуждением только случая кристалла Те. При изучении всех упомянутых выше непрозрачных (сильно поглощающих) кристаллов калибровка временной развертки шейкера проводилась нами по стандартной методике. Вместо исследуемого кристалла в фокус линзы помещался прозрачный в данном диапазоне длин волн кристалл GaP (непрямозонный полупроводник с шириной запрещенной зоны в Г-точке 2.8 эВ,  $n = 3.24$  на длине волны 850 нм [6]), стоявший в отраженном пучке фотодиод переносился в прошедший луч и дифференци-

альным методом регистрировалось изменение пропускания пробного пучка, вызванное возбуждением кристалла GaP накачивающим импульсом. Принято считать, что уменьшение пропускания пробного пучка, наблюдающееся в момент наложения в кристалле пробного и накачивающего импульсов, связано с двухфотонным поглощением и форма детектируемого сигнала пропорциональна автокорреляционной функции интенсивностей лазерного импульса. Это дает простой и удобный метод оптимизации длительности возбуждающего импульса прямо в том месте, где впоследствии будет установлен образец, а довольно значительная амплитуда сигнала позволяет проводить с помощью него калибровку временной развертки шейкера. Процесс двухфотонного поглощения не является чувствительным к фазе световой волны. Интерференция между накачивающим и зондирующим пучком исключалась из-за ортогонального направления их поляризаций. Несмотря на это, изучение нелинейного пропускания кристалла GaP с высоким временным разрешением выявило и в его временном отклике наличие осциллирующей



**Рис. 6.** Вид когерентного артефакта при различном количестве накоплений (10000 (а), 1000 (б), 100 (в)). Увеличение количества накоплений приводит к уменьшению относительного вклада осциллирующей части артефакта,  $e_{pump} \parallel x, e_{probe} \parallel y$ . Интенсивность накачки 28.4 мВт, интенсивность зонда 7.2

составляющей, вполне аналогичной по виду представленной на рис. 4, с периодом, близким к периоду несущей волны. Дальнейшее изучение показало, что в определенных условиях возможно наблюдение изменения знака дифференциального пропускания, когда под действием накачки происходит не уменьшение, а увеличение пропускания кристалла. Более того, отклик кристалла GaP оказался чувствительным не только к разности фаз накачивающего и пробного пучков, но и к фазовой модуляции лазерного импульса, которую мы могли изменять при помощи призмного компрессора. Все это трудно объяснить в простой модели двухфотонного поглощения, хотя не исключено, что последнее все же играет определенную роль в наблюдаемых явлениях. Последовательное теоретическое рассмотрение распространения мощного фемтосекундного лазерного импульса в нелинейной среде весьма сложно, и на эту тему имеется огромное количество работ. Что же касается задачи о нелинейном отражении короткого мощного лазерного импульса, то она допускает простое решение в рамках феноменологической мо-

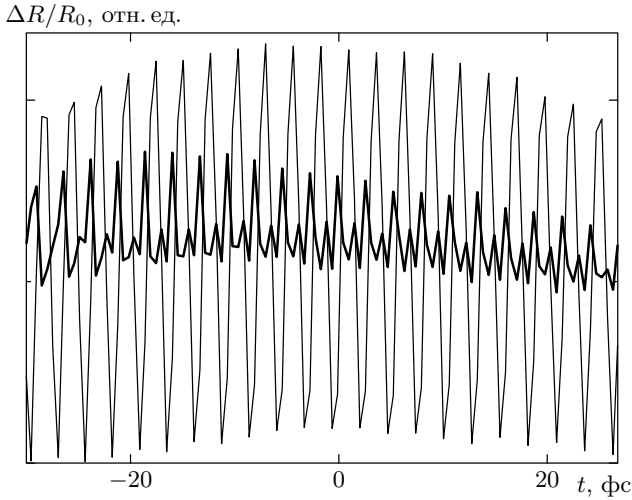
дели, которое будет рассмотрено ниже.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Заметим, прежде всего, что наблюдаемые явления не могут быть объяснены простой интерференцией накачивающего и зондирующего световых пучков. В самом деле, поляризации этих пучков во всех экспериментах были ортогональны, а регистрация отраженного сигнала осуществлялась в области пространства, удаленной от места перекрытия пучков, так что в месте расположения детектора отсутствовало наложение двух световых волн.

Возбуждаемые в кристалле теллура накачивающим лазерным импульсом когерентные фононы проявляются в экспериментальных кривых в виде периодического изменения во времени коэффициента отражения кристалла (см. рис. 3). Естественно предположить, что и наблюдаемая периодическая во времени структура когерентного артефакта также связана с периодическим изменением во времени ко-





**Рис. 7.** Две записи когерентного артефакта при фиксированных параметрах эксперимента. Резкое уменьшение размаха осцилляций и появление промежуточных максимумов в одной из кривых связано, по-видимому, со спонтанной флуктуацией фазы колебаний шейкера. Параметры эксперимента: 300 накоплений, накачка 28 мВт, зондирование 18 мВт,  $e_{pump} \parallel x$ ,  $e_{probe} \parallel y$

ээффициента отражения под действием электромагнитного поля накачивающего импульса. Такое предположение позволяет получить феноменологическое описание наблюдаемых в эксперименте свойств когерентного артефакта.

#### 4.1. Феноменологическая модель

Будем описывать лазерный импульс на границе кристалла волновым пакетом вида

$$\Phi(t) = A(t) \exp[-i(\omega_0 t + \psi(t))], \quad (1)$$

где  $\omega_0$  — несущая частота, а  $A(t)$  и  $\psi(t)$  — медленно меняющиеся амплитуда и фаза. Поскольку вклад в коэффициент отражения дает только приповерхностный слой кристалла, толщина которого гораздо меньше длины волны света, мы можем не интересоваться характером распространения света в кристалле и решать по существу локальную задачу, что делает возможным простое описание эксперимента. Для упрощения формул не будем пока принимать во внимание векторный характер электромагнитных полей. Вид зависимостей  $A(t)$  и  $\psi(t)$  может быть при необходимости конкретизирован, поскольку он достаточно жестко задан условием генерации фемтосекундных импульсов за счет синхронизации мод

титан-сапфирового лазера. Несущая частота является, в частности, высокой гармоникой фундаментальной частоты резонатора лазера,  $A(t)$  непосредственно связана с количеством синхронизованных мод, а  $\psi(t)$  включает линейный и квадратичный члены, последний из которых задает величину фазовой модуляции импульса (так называемый чирп). Несущую частоту и спектральную ширину импульса мы непосредственно измеряем в эксперименте, а величину чирпа, которая наряду с медленно меняющейся амплитудой определяет спектральную ширину импульса, мы можем изменять при помощи призмного компрессора.

Предположим, что действие лазерного импульса вызывает соответствующее изменение коэффициента отражения света от поверхности кристалла:

$$R(t) = R_0 + r(t), \quad (2)$$

где  $R_0$  — фоновый коэффициент отражения. Таким образом, амплитуда отраженного импульса может быть записана в виде

$$\tilde{\Phi}(t) = \Phi(t)R(t) = R(t)A(t) \exp[-i(\omega_0 t + \psi(t))]. \quad (3)$$

Пусть

$$r(t) = a(\mathbf{e}) \Phi(t), \quad (4)$$

где коэффициент  $a(\mathbf{e})$  учитывает зависимость добавки к коэффициенту отражения от направления поляризации импульса относительно кристаллографических осей. Этот коэффициент является, вообще говоря, комплексным числом, модуль которого определяет величину добавки, а аргумент — возможный фазовый сдвиг наведенного изменения коэффициента отражения по отношению к вызывающему его электрическому полю лазерного импульса

$$a(\mathbf{e}) = |a|e^{i\varphi}. \quad (5)$$

В условиях наложения накачивающего и зондирующего импульсов добавка к коэффициенту отражения принимает вид

$$r(t) = a_{pump} \Phi_{pump}(t + \tau) + a_{probe} \Phi_{probe}(t), \quad (6)$$

где  $\tau$  — временная задержка между накачивающим  $\Phi_{pump}$  и зондирующим  $\Phi_{probe}$  импульсами. Тогда отраженный от кристалла пробный импульс имеет вид

$$\tilde{\Phi}_{probe}(t) = \Phi_{probe}(t) (R_0 + a_{pump} \Phi_{pump}(t + \tau) + a_{probe} \Phi_{probe}(t)). \quad (7)$$

Поскольку фотодиоды измеряют (усредненную по времени их отклика) интенсивность света, чтобы

найти измеряемый нами дифференциальный сигнал  $S$ , необходимо умножить выражение (7) на комплексно-сопряженное, усреднить по постоянной времени диодов и отбросить все члены, не содержащие  $\Phi_{pump}$ , так как они будут скомпенсированы балансировкой дифференциальной схемы. В результате получим

$$S \propto \langle a_{pump}^2 A_{pump}^2(t + \tau) A_{probe}^2(t) \rangle + 2 \langle a_{pump} A_{pump}(t + \tau) a_{probe} A_{probe}^3(t) \rangle \times \cos(\omega_0 \tau + \Delta\psi + \Delta\varphi), \quad (8)$$

где угловые скобки означают усреднение по времени, величины  $a_i$  и  $A_i$  считаются положительными (все знаки включены в фазовые множители), а величины  $\Delta\psi$  и  $\Delta\varphi$  определены равенствами

$$\begin{aligned} \Delta\psi &= \psi_{pump}(t + \tau) - \psi_{probe}(t), \\ \Delta\varphi &= \varphi_{pump}(t + \tau) - \varphi_{probe}(t). \end{aligned} \quad (9)$$

Линейный член в изменении фазы импульсов, связанный с различием оптических путей накачивающего и пробного пучков, учтен в явном виде за счет введения временной задержки  $\tau$ , поэтому  $\Delta\psi$  определяется целиком квадратичным членом, т. е. чирпом. Положим для простоты фазовую модуляцию импульсов (чирп) в плоскости расположения образца равной нулю. Второе из равенств (9) подразумевает зависимость запаздывания наведенного изменения коэффициента отражения от медленно меняющихся амплитуды и фазы импульса. Разумно предположить, что эта зависимость будет слабой и в первом приближении пренебречь ей. После этого формула (8) приобретает следующий вид:

$$S \propto \langle a_{pump}^2 A_{pump}^2(t + \tau) A_{probe}^2(t) \rangle + 2 \langle a_{pump} A_{pump}(t + \tau) a_{probe} A_{probe}^3(t) \rangle \cos \omega_0 \tau. \quad (10)$$

Выражение (10) описывает качественно все основные свойства когерентного артефакта, наблюдаемые экспериментально. Прежде всего оно дает быстро осциллирующую часть отклика, изменяющуюся с периодом несущей волны. Медленно меняющаяся часть сигнала всегда положительна, как это и есть в эксперименте, и, с точностью до множителя  $a_{pump}^2$ , совпадает с корреляционной функцией интенсивностей лазерного импульса. Множитель  $a_{pump}^2$  объясняет, почему вклад медленной части меняется при изменении ориентации поляризации накачивающего импульса относительно кристаллографических осей. Отношение второго члена к первому в (10) пропорционально

$$2 \frac{a_{probe} A_{probe}}{a_{pump} A_{pump}},$$

т. е. вклад быстро осциллирующего члена возрастает с ростом амплитуды зондирующего импульса, причем величина этого отношения также зависит от взаимной ориентации поляризаций и кристаллических осей.

Несмотря на вполне удовлетворительное описание эксперимента феноменологической моделью, необходимо последовательное микроскопическое рассмотрение наблюдаемых явлений. Дело в том, что феноменологическая модель является внутренне противоречивой. В самом деле, коэффициент отражения выражается, как известно, однозначно через восприимчивость среды  $\chi(\omega)$ . Восприимчивость характеризует оптические свойства вещества и является, по определению, коэффициентом пропорциональности между фурье-компонентами электрического поля и поляризации среды на одной и той же частоте  $\omega$ . То есть  $\chi(\omega)$ , а следовательно, и коэффициент отражения, не могут зависеть от времени явно, как было предположено при построении феноменологической модели. Отметим, что в случае возбуждения когерентных фононов восприимчивость зависит от времени неявно, благодаря нестационарному возбуждению упругих колебаний среды [2, 3].

#### 4.2. Обсуждение адекватности феноменологической модели

Физической причиной адекватности феноменологической модели является, на наш взгляд, сохранение полной вероятности обнаружить электронную систему кристалла в основном либо в возбужденном состоянии на временах порядка длительности лазерного импульса. Это является, в свою очередь, следствием малости длительности импульса по сравнению с временами энергетической и фазовой релаксации электронной подсистемы кристалла. Сказанное можно проиллюстрировать на простом примере двухуровневой модели среды, которая, разумеется, является весьма большой идеализацией и не претендует на детальное описание реального эксперимента.

Рассмотрим среду, состоящую из идентичных двухуровневых систем с частотой перехода  $\omega_{21}$ , распределенных в объеме с плотностью  $N$ . Как известно, восприимчивость такой среды, находившейся до действия электромагнитного поля в невозбужденном состоянии, имеет в квазистационарном случае

вид [7]:

$$\begin{aligned}\chi'(\omega) &= \frac{d^2 N}{\hbar} \frac{\Delta}{\Delta^2 + \Gamma_2^2 + \frac{\Gamma_2}{\Gamma_1} \Omega^2}, \\ \chi''(\omega) &= \frac{d^2 N}{\hbar} \frac{\Gamma_2}{\Delta^2 + \Gamma_2^2 + \frac{\Gamma_2}{\Gamma_1} \Omega^2},\end{aligned}\quad (11)$$

где  $\chi'(\omega)$  и  $\chi''(\omega)$  — действительная и мнимая части восприимчивости,  $d$  — величина матричного элемента дипольного момента перехода,  $\Delta = \omega_{21} - \omega$  — расстройка,  $\Gamma_2$  и  $\Gamma_1$  — константы поперечной и продольной релаксации,  $\Omega$  — частота Раби. Эти формулы для действительной и мнимой частей восприимчивости получены в предположении, что между уровнями двухуровневой системы разрешен дипольный переход. При  $\Gamma_2 = \Gamma_1 \rightarrow 0$  из соотношений (11) получаются правильные выражения для восприимчивости в отсутствие релаксации:

$$\begin{aligned}\chi'(\omega) &= \frac{d^2 N}{\hbar} \frac{\Delta}{\Delta^2 + \Omega^2}, \\ \chi''(\omega) &= 0.\end{aligned}\quad (12)$$

Данные выражения могут быть также получены непосредственно в результате решения нестационарного уравнения Шредингера с гармонически зависящим от времени возмущением:

$$\begin{aligned}i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} &= [H_0 + V(t)] \Psi, \\ V(t) &= V \cos \omega t.\end{aligned}\quad (13)$$

Рассмотрим несколько более общий случай этой задачи с возмущением вида

$$V(t) = V_1 \cos \omega t + V_2 \cos(\omega t + \phi). \quad (14)$$

Нетрудно видеть, что при вещественных  $V_1$  и  $V_2$  возмущение (14) приводится к виду (13) заменой

$$\begin{aligned}V &= \sqrt{V_1^2 + 2V_1 V_2 \cos \phi + V_2^2}, \\ \omega t &\rightarrow \omega t + \theta, \\ \sin \theta &= -\frac{V_2 \sin \phi}{\sqrt{V_1^2 + 2V_1 V_2 \cos \phi + V_2^2}}.\end{aligned}\quad (15)$$

Это означает, что решение задачи с возмущением (14) сводится к решению задачи (13) с некоторой эффективной частотой Раби

$$\tilde{\Omega} = \sqrt{\Omega_1^2 + 2\Omega_1 \Omega_2 \cos \phi + \Omega_2^2}, \quad (16)$$

где  $\Omega_i = V_i/\hbar$ . Поскольку мы не конкретизировали вид оператора взаимодействия электромагнитного

поля и двухуровневой системы, формулы (14)–(16) справедливы не только для электродипольного, но, например, и для квадрупольного взаимодействия. В случае электродипольного взаимодействия для восприимчивости без учета релаксации имеем

$$\begin{aligned}\chi'(\omega) &= \frac{d^2 N}{\hbar} \frac{\Delta}{\Delta^2 + \Omega_1^2 + 2\Omega_1 \Omega_2 \cos \phi + \Omega_2^2}, \\ \chi''(\omega) &= 0.\end{aligned}\quad (17)$$

Вещественность восприимчивости позволяет нам воспользоваться связью между восприимчивостью и показателем преломления, справедливой для прозрачных сред:

$$n = \sqrt{1 + 4\pi\chi'(\omega)} = \sqrt{1 + 4\pi \frac{d^2 N}{\hbar} \frac{\Delta}{\Delta^2 + \tilde{\Omega}^2}}. \quad (18)$$

Для коэффициента отражения при  $\tilde{\Omega} \ll \Delta$  получим

$$\begin{aligned}R(\omega) &= \frac{1-n}{1+n} = \frac{\pi d^2 N}{\hbar} \times \\ &\times \left[ -\frac{1}{\Delta} + \frac{\Omega_1^2}{\Delta^3} + \frac{\Omega_2^2}{\Delta^3} + \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \cos \phi}{\Delta^3} \right].\end{aligned}\quad (19)$$

Сравнение выражения (19) с феноменологическими формулами (2), (6) обнаруживает их близкое сходство. При квазистационарном возбуждении  $\Omega_1$  и  $\Omega_2$  будут зависеть от медленно меняющихся амплитуды и фазы, т. е. будут медленно меняющимися функциями времени. Если фазовая модуляция отсутствует, то

$$\Omega_i = \frac{V_i}{\hbar} = \frac{d}{\hbar} A_i(t),$$

где  $A_i(t)$  — медленно меняющиеся амплитуды импульсов. Первый член в квадратных скобках выражения (19) соответствует фоновому коэффициенту отражения  $R_0$ , второй и третий члены отвечают изменениям отражения, вызванным накачивающим и зондирующим импульсами по отдельности. Последний член, который отсутствует в феноменологической формуле, описывает взаимное влияние импульсов. Формула (19) не содержит явной зависимости коэффициента отражения от времени с периодом несущей волны, вместо этого естественным образом появляется зависимость от относительной фазы двух волн  $\phi = \omega_0 \tau$ , таким образом, внутренние противоречия феноменологического подхода снимаются. Выражение (19) показывает, что при когерентном взаимодействии двух импульсов со средой коэффициент отражения не может быть независимо определен для каждой из волн, а имеет смысл только для обеих волн вместе. Небольшое изменение амплитуды одной из волн приведет к изменению отражения

также и для другой волны. Используя соотношение (19), нетрудно найти выражение для сигнала отражения в нашей дифференциальной методике:

$$S = -\frac{2\pi^2 d^6 N^2}{\hbar^4 \Delta^4} [\langle A_{pump}^2(t + \tau) A_{probe}^2(t) \rangle + 2\langle A_{pump}(t + \tau) A_{probe}^3(t) \rangle \cos \omega_0 \tau]. \quad (20)$$

Это выражение совпадает по виду с выражением (10), получаемым в рамках феноменологической модели. Отметим, что зависимость сигнала от ориентации поляризации пучков по отношению к кристаллографическим осям можно было бы также получить, учтя тензорный характер дипольного момента перехода. Мы, однако, не стали этого делать, чтобы не усложнять формул. Единственное существенное отличие формулы (20) от выражения (10) заключается в знаке. Из двухуровневой модели следует, что нелинейная добавка к коэффициенту отражения должна всегда приводить к уменьшению отражения пробного пучка, в то время как в эксперименте наблюдается обратная ситуация<sup>1)</sup>.

Итак, простая двухуровневая модель неожиданно дает неплохое качественное описание наблюдаемых свойств «когерентного артефакта». Физическая причина взаимного влияния импульсов в этой модели совершенно прозрачна и связана с сохранением полной вероятности. Взаимодействие двухуровневой системы с внешним гармоническим полем приводит, как известно, к периодическим осцилляциям вероятности найти систему в возбужденном состоянии, поэтому приходящий с задержкой по времени пробный импульс находит систему в суперпозиционном состоянии с определенной фазой, от значения которой зависит его взаимодействие с системой.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Приведенные в данной работе результаты показывают, что так называемый «когерентный артефакт» обладает регулярной структурой и воспроизводимым характером и возникает в результате сохранения полной вероятности найти систему в одном из двух возможных состояний (в основном

<sup>1)</sup> Мы признательны рецензенту, обратившему наше внимание на то, что расхождение с экспериментом в знаке эффекта для двухуровневой модели вполне закономерно, поскольку уменьшение в среднем разности населенностей в двухуровневой системе под действием поля всегда приводит к уменьшению величины резонансной добавки диэлектрической проницаемости, а следовательно, и к уменьшению коэффициента отражения.

либо в возбужденном) при когерентном взаимодействии со средой перекрывающихся в пространстве импульсов накачки и зондирования. Хорошее качественное описание экспериментально наблюдаемых свойств когерентного артефакта при помощи простой феноменологической модели дает возможность использовать артефакт в качестве естественного репера, определяющего нулевую точку релаксационной кривой. Такой метод определения нулевой точки обладает большими преимуществами перед другими известными методами (обращение оси времени за счет изменения роли пучков при переносе фотодиодов из пробного пучка в накачивающий, использование вспомогательного кристалла, помещаемого вместо образца) [2], поскольку позволяет определять положение нуля отсчета задержки прямо в процессе основных измерений и без дополнительных изменений в экспериментальной установке. Медленная составляющая когерентного артефакта пропорциональна корреляционной функции интенсивностей лазерных импульсов и может служить для оптимизации последних непосредственно в процессе измерений.

Работа выполнялась при поддержке программой НАТО для проведения совместных научных исследований (грант № PST.GLG.978935), Национального Немецкого Исследовательского Общества (грант № DE 567/9), а также при частичной поддержке РФФИ (гранты №№ 02-02-17074, 04-02-97204).

## ЛИТЕРАТУРА

1. J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, Springer Series in Solid State Sciences, Springer, New York (1996), Vol. 115.
2. T. Dekorsy, G. C. Cho, and H. Kurz, in *Light Scattering in Solids VIII*, ed. by M. Cardona and G. Güntherodt, Springer, Berlin (2000), p. 169.
3. О. В. Мисочко, ЖЭТФ **119**, 285 (2001).
4. P. Borri et al., *Optics Express* **7**, 107 (2000).
5. H. Z. Zeiger et al., *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
6. В. И. Гавриленко, А. М. Грехов, Д. В. Корбутяк, В. Г. Литовченко, *Оптические свойства полупроводников*, Наукова думка, Киев (1987).
7. Д. Н. Клышко, *Физические основы квантовой электроники*, Наука, Москва (1986).