

КОГЕРЕНТНЫЙ КОНТРОЛЬ ДИНАМИКИ РЕШЕТКИ ВИСМУТА ВБЛИЗИ ПРЕДЕЛА СТАБИЛЬНОСТИ ЛИНДЕМАНА

О. В. Мисочко^{*a}, *Р. Лу*^{**b,c}, *М. Хасе*^{**d}, *М. Китадзима*^{**c}

^a *Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

^b *Renmin University of China, Beijing, China*

^c *National Institute for Materials Science
305-0047 Tsukuba, Japan*

^d *Institute of Applied Physics, University of Tsukuba
305-8573, Tsukuba, Japan*

Поступила в редакцию 24 июля 2006 г.

С помощью метода когерентного контроля изучены относительные вклады ангармонизма решеточного потенциала и неравновесной концентрации носителей заряда в эффект зависимости от времени частоты когерентного A_{1g} -фонона висмута, возбуждаемого сверхкороткими лазерными импульсами большой энергии. Для разделения вкладов использован метод накачка-зондирование, в котором возбуждение осуществлялось двумя импульсами с контролируемой временной задержкой. Показано, что в зависимости от относительной задержки между импульсами накачки наблюдается как корреляция, так и антикорреляция между амплитудой и начальной частотой осцилляций, тогда как чирп и начальная частота когерентного фонона антикоррелированы. Кроме того, обнаружено, что вклады решетки и электронной подсистемы всегда антикоррелированы, что позволяет приписать электронному возбуждению определенную фазу и предположить, что зависимость от времени частоты фонона определяется не только мгновенными значениями амплитуд решеточного и электронного отклика, но и фазовыми соотношениями между ними.

PACS: 78.47.+p

1. ВВЕДЕНИЕ

Благодаря успехам лазерной технологии, позволившим сократить длительность лазерного импульса до фемтосекундного, а недавно и до субфемтосекундного диапазона, растет интерес к изучению отклика конденсированных сред на воздействие сверхкороткого импульса, в котором энергия сосредоточена в малых временном, пространственном и спектральном диапазонах. Доступ к исследованию сверхбыстрой динамики решетки был обеспечен наблюдением когерентных фононов, которые проявляются как осцилляции отражения (пропускания) света после воздействия на кристалл сверхкороткого лазерного импульса [1, 2]. Период осцилляций, отожд-

ествляемых с когерентными фононами, совпадает с обратной частотой комбинационно-активных фононов среды, что позволяет ассоциировать механизм их генерации и детектирования с неупругим рассеянием света [1]. Реализация стабильной фазы, служащей одним из оснований того, чтобы считать фононы когерентными, становится возможной, так как длительность Δt импульса накачки меньше обратной частоты фонона Ω^{-1} , $\Delta t < \Omega^{-1}$. Эта хорошо определенная фаза открывает возможность когерентного контроля решеточных смещений, что и было успешно продемонстрировано для полупроводников и полуметаллов [3–6]. Большинство экспериментов типа накачка-зондирование, включая эксперименты по когерентному контролю решеточных смещений, было осуществлено с использованием лазерных импульсов малой энергии, так что относительное изменение отражения, как правило, не превышает

*E-mail: misochko@issp.ac.ru, ntmisochko@netscape.net

**R. Lu, M. Hase, M. Kitajima

ло 10^{-6} – 10^{-5} , а амплитуды смещения атомов были порядка 10^{-4} нм. В этих условиях подбор временной задержки и интенсивностей двух последовательных импульсов накачки позволил реализовать как усиление (конструктивная интерференция), так и полное подавление (деструктивная интерференция) решеточных осцилляций, убедительно продемонстрировав возникновение когерентности первого порядка возбуждений решетки при воздействии сверхкоротких лазерных импульсов.

В последние годы начались исследования фотоиндуцированного решеточного отклика при помощи импульсов с большой энергией [7–18]. Это позволило достичь амплитуд решеточных смещений около 10^{-2} – 10^{-1} нм, приближающихся к пределу стабильности Линдемана [19], при которых реализуется нелинейный режим колебаний, порождающий качественно новые эффекты, многие из которых до сих пор не до конца поняты [9–11, 16, 18]. Эксперименты вблизи предела стабильности Линдемана выявили ряд интересных свойств времяразрешенных осцилляций отражения в висмуте. Среди этих свойств особо можно отметить «смягчение» (длинноволновый сдвиг) частоты осцилляций, возникающее непосредственно сразу после воздействия импульса накачки [7–9]. Этот длинноволновый сдвиг с течением времени исчезает, по мере того как частота осцилляций асимптотически приближается к частоте тепловых (равновесных) фононов. Величина сдвига частоты варьируется в различных экспериментах, достигая иногда двух третьих равновесной частоты фонона [12]. Такие осцилляции, мгновенная частота которых является функцией времени, уместно ассоциировать с чирпованными фононами. Определение «чирпованный» происходит от английского слова chirp, означающего чириканье или щебетание птиц и применяется к осцилляциям, частота которых зависит от времени. В первых исследованиях [8, 9], в которых наблюдалась зависимость частоты осцилляций от времени, это «смягчение» частоты и соответствующий фононный чирп были объяснены ангармоничностью решеточного потенциала, что подтверждалось зависимостью начальной частоты от амплитуды осцилляций, контролируемой плотностью энергии накачки (большей амплитуде соответствовала меньшая начальная частота). Обнаруженные позднее эффекты коллапса и возрождения когерентных осцилляций [11, 16], а также появления обертонов [9, 20] обеспечили определенную поддержку модели, основанной на ангармонизме кристаллической решетки. Тем не менее сразу после обнаружения «смягчения» частоты когерентных фононов в висму-

те было предположено, что причиной длинноволнового сдвига частоты является не ангармонизм решетки, а изменение концентрации носителей, порожденное фотоиндуцированной электрон-дырочной плазмой (электронное смягчение) [14]. В рамках этой модели, которая изначально была успешно использована для объяснения «смягчения» частоты когерентного A_1 -фонона теллура [21], фотовозбуждение, переводя электроны из валентной зоны в зону проводимости, уменьшает жесткость межатомных связей и, соответственно, возвращающую силу, действующую на атомы. При этом «мгновенная» частота фонона обратно пропорциональна неравновесной концентрации носителей, экспоненциально уменьшающейся со временем. Для проверки модели электронного смягчения авторы провели один из первых экспериментов [17] по когерентному контролю вблизи предела стабильности Линдемана, который убедительно показал, что для некоторых значений управляющего параметра γ (время между двумя импульсами накачки) в висмуте действительно наблюдается корреляция между начальной амплитудой осцилляций и частотой, а не антикорреляция, предсказываемая моделью ангармонизма. Полученные экспериментальные результаты совместно с рядом теоретических оценок были интерпретированы как полное отсутствие вклада ангармонизма в «смягчение» частоты когерентного A_{1g} -фонона висмута. Несмотря на то что экспериментальный результат и теоретическое рассмотрение не вызывают особых нареканий, вывод о полном отсутствии вклада ангармоничности решеточного потенциала представляется сомнительным. Подобное утверждение базируется на анализе способа обработки экспериментальных данных и очень узком интервале, в пределах которого варьировался управляющий параметр в работе [17], а также на недавних теоретических расчетах [20]. Следует отметить, что попытки описать смягчение фонона исключительно вкладом решетки или только неравновесных носителей заряда вряд ли могут привести к детальному пониманию изучаемого явления, поскольку в каждой из них игнорируется взаимодействие между фононами и электронами. В этой связи хотелось бы отметить теоретическую модель, предложенную в работах Фальковского и Мищенко [22, 23] и объясняющую перенормировку энергии фонона в благородных металлах неравновесными носителями заряда за счет электрон-фононного взаимодействия «горячих» электронов и «холодной» решетки. Потенциальные возможности этой модели значительно шире моделей ангармонизма и электронного смягчения, так как в ней

рассмотрено не только смягчение фонона (действительная часть собственной энергии), но и изменение времени жизни (мнимая часть собственной энергии). Несмотря на то что время жизни фонона в висмуте вблизи предела Линдемана изменяется более чем в десять раз при гелиевых температурах, этот факт не получил адекватной трактовки до настоящего времени.

Для выяснения относительных вкладов ангармоничности и концентрации неравновесных носителей заряда в «смягчение» и чирп нами были проведены детальные эксперименты по когерентному контролю полносимметричных фононов висмута в условиях, близких к пределу стабильности Линдемана. При этом анализировались все параметры осцилляций (амплитуда, частота, время жизни и чирп) и релаксационного вклада (амплитуда и время жизни) в достаточно широком интервале изменений управляющего параметра.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Изучение когерентных фононов в висмуте проводилось для плоскости, перпендикулярной тригональной (0001) оси кристалла. Все измерения осуществлялись с использованием сверхкоротких световых импульсов с большой энергией при комнатной температуре. Для этого излучение лазера на титанате сапфира ($\lambda = 800$ нм) усиливалось регенеративным твердотельным усилителем, на выходе которого импульсы имели длительность $\Delta t \leq 100$ фс, следуя с частотой повторения $\nu = 1$ кГц. Накачивающий и зондирующий лазерные пучки фокусировались на поверхность кристалла линзой с фокусным расстоянием 10 см, а соотношение между их интенсивностями поддерживалось равным 10 : 1. Поляризации накачки и зондирования были ортогональны между собой и параллельны соответственно бинарной и бисекторной осям кристалла. Плотность энергии импульса накачки была выбрана равной $F = 0.45F_{th}$, где F_{th} — пороговая плотность энергии, при которой происходит видимое повреждение образца и сигнал отражения необратимо деградирует. Канал возбуждения модулировался оптическим прерывателем с частотой 2 кГц, а регистрация осуществлялась кремниевыми $p-i-n$ -фотодиодами при помощи синхронного детектирования. В экспериментах измерялось нормированное разностное отражение как функция времени t между накачкой и зондированием

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \frac{R(t) - R_0(t < 0)}{R_0(t < 0)} \quad (1)$$

в двухимпульсной схеме накачки, в которой первый импульс готовит когерентное состояние решетки, тогда как второй импульс усиливает или ослабляет когерентные осцилляции, созданные первым импульсом. Это отчасти похоже на то, как при интерференции двух световых волн с постоянной разностью фаз суммарная интенсивность света в одних местах увеличивается, а в других уменьшается, с той лишь разницей, что интерференция в нашем случае происходит во времени, а не в пространстве и интерферируют не световые волны, а волны упругой деформации. В двухимпульсной схеме эксперимента появляется новый управляющий параметр γ — время задержки между импульсами, поскольку кристалл возбуждают не одним, а двумя одинаковыми импульсами с контролируемой задержкой между ними. Для экспериментальной реализации когерентного контроля импульс накачки расщеплялся на два идентичных коллинеарных импульса одинаковой интенсивности и поляризации при помощи интерферометра Майкельсона. Варьированием одного из плеч интерферометра, в которое помещалась линия задержки, достигалось необходимое временное разделение импульсов накачки. Эта линия задержки состояла из глухого зеркала, расположенного на прецизионном микрометрическом столике, и обеспечивала временное разрешение с погрешностью меньшей 3 фс.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 показан типичный времяразрешенный сигнал отражения монокристалла Вi, наблюдаемый методом накачка-зондирование для случая малой плотности энергии ($F = 0.01$ мДж/см²) импульса накачки. На рисунке хорошо видно, что возбужденное состояние кристалла релаксирует к равновесному за времена порядка нескольких пикосекунд и на эту релаксацию наложены осцилляции. Анализ фурье-осциллирующего вклада свидетельствует, что эти осцилляции порождаются полносимметричным A_{1g} -фононом, так как спектр осцилляций, приведенный на рис. 2, совпадает с полносимметричным спектром комбинационного рассеяния света. При увеличении энергии импульса накачки сначала наблюдается линейный рост амплитуды осцилляций, при котором частота и время жизни осцилляций остаются неизменными. Однако при плотности энергии импульса большей 0.5 мДж/см² времяраз-

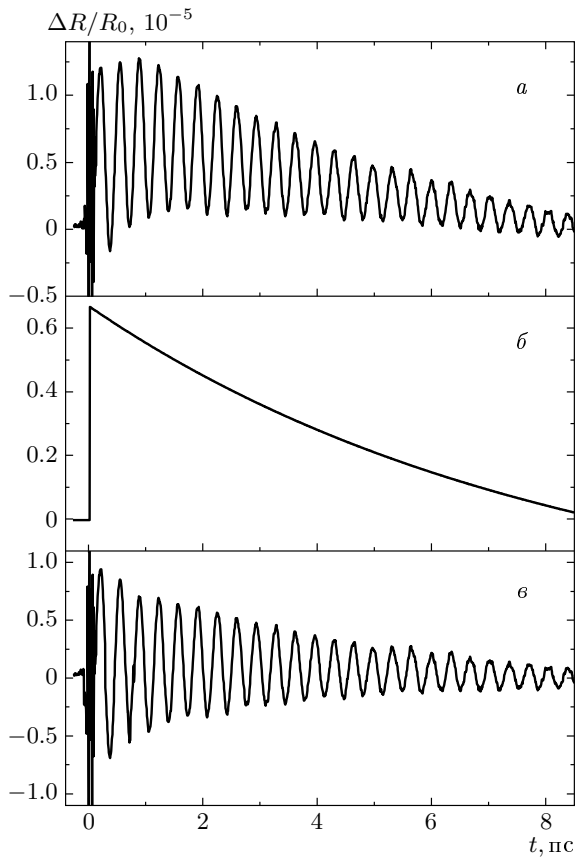


Рис. 1. а) Зависимость сигнала относительного разностного отражения $\Delta R/R$ зондирующего импульса для монокристалла Bi от времени задержки между импульсами накачки и зондирования при использовании импульсов накачки с малой плотностью энергии $F = 0.01$ мДж/см². б, в) Разложение сигнала $\Delta R/R$ с использованием уравнения (2) соответственно на релаксационную $A_{rel} = (\Delta R/R)_{rel}$ и осциллирующие $A_{osc} = (\Delta R/R)_{osc}$ компоненты

решенный отклик кристалла переходит в нелинейный режим, при котором все параметры становятся функцией энергии импульса накачки [7–9]. Это иллюстрируется рис. 3, на котором приведен времяразрешенный отклик висмута для случая большой плотности энергии импульса накачки. Сравнение данных при малой и большой плотностях накачки показывает, что в нелинейном режиме параметры сигнала отражения являются функциями энергии импульса и не совпадают с соответствующими параметрами, наблюдаемыми в спектральном диапазоне при помощи комбинационного рассеяния света. Действительно, хотя анализ фурье-осциллирующей части сигнала свидетельствует, что основной вклад в осцилляции

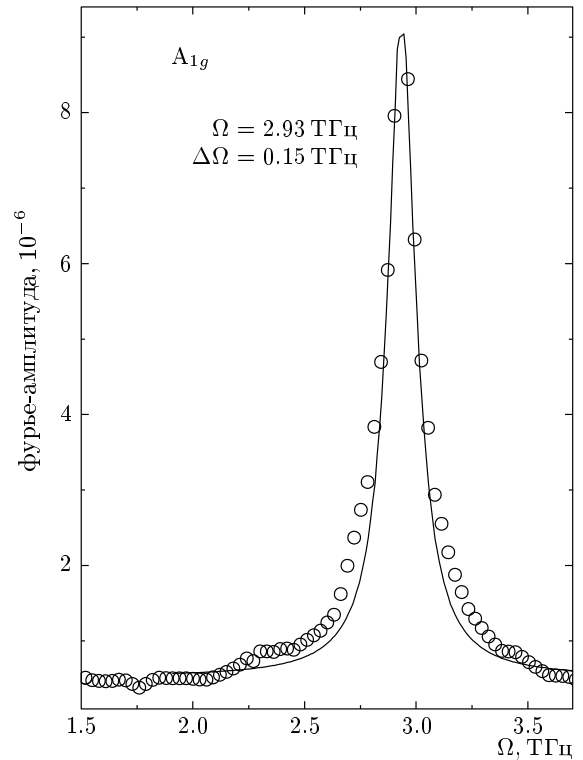


Рис. 2. Фурье-спектр осциллирующей части сигнала отражения Bi , приведенного на рис. 1. Сплошная линия — аппроксимация лоренцевой функцией с параметрами, указанными на рисунке

большой амплитуды по-прежнему дает A_{1g} -фонон, частота и время жизни осцилляций зависят как от энергии импульса накачки (что видно из сравнения рис. 2 и рис. 4), так и от времени, т. е. фонон является чирпованным [9, 11]. Последнее легко показать, варьируя временное окно фурье-преобразования и тем самым анализируя осцилляции для малых и больших времен задержки. Выбирая временное окно равное 5 пс, которое содержит больше 15 полных периодов осцилляций, и сдвигая это окно во времени, на рис. 4 легко увидеть, что частота, полуширина и форма фононного пика являются функциями интервала времен задержки t . Следует отметить, что фурье-анализ затухающего сигнала, частота которого зависит от времени, на достаточно коротком временном интервале сопряжен с рядом трудностей и требует разумного выбора как временного интервала, так и хорошего отношения сигнал/шум. Более эффективным способом извлечения параметров сигнала является подгонка в реальном времени. Однако попытка аппроксимировать времяразрешенный сиг-

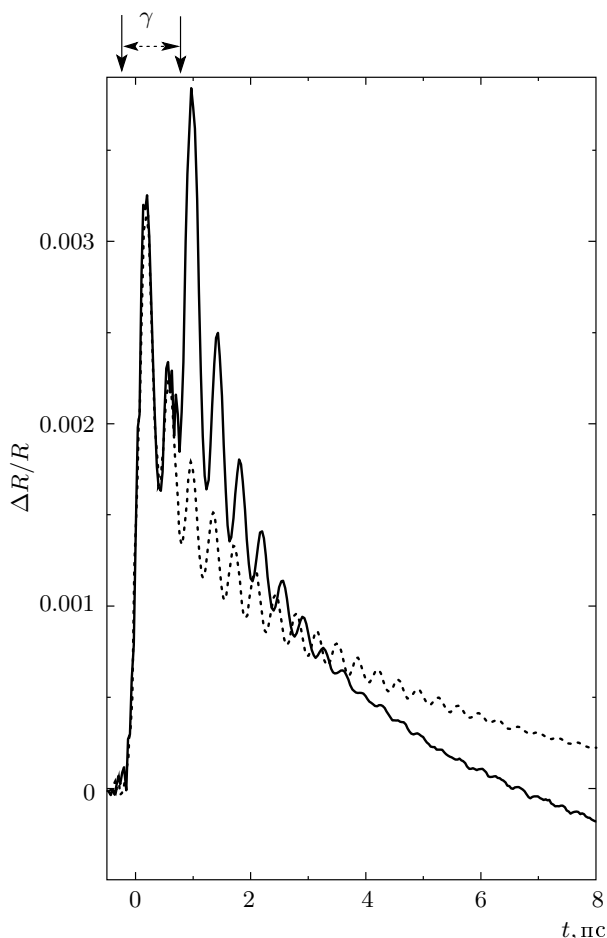


Рис. 3. Зависимость сигнала относительного разностного отражения $\Delta R/R$ зондирующего импульса от времени задержки между импульсами накачки и зондирования при использовании импульсов накачки с большой плотностью энергии. Штриховая и сплошная линии — моноимпульсная и двухимпульсная схемы накачки. Стрелки вверху рисунка указывают моменты времени воздействия первого и второго импульсов накачки

нал большой амплитуды выражением

$$\frac{\Delta R}{R} = H(t) [A_{rel} \exp(-t/\tau_{rel}) + A_{osc} \exp(-t/\tau_{osc}) \cos(\Omega t + \varphi)] \quad (2)$$

($H(t)$ — функция Хэвисайда, свернутая с автокорреляционной функцией импульса накачки, A_{rel} и τ_{rel} — амплитуда и время жизни релаксационного отклика, A_{osc} , τ_{osc} , Ω , φ — амплитуда, время жизни, частота и начальная фаза осциллирующего отклика) приводит к удовлетворительному результату лишь для первых периодов осцилляций [8, 9]. Та-

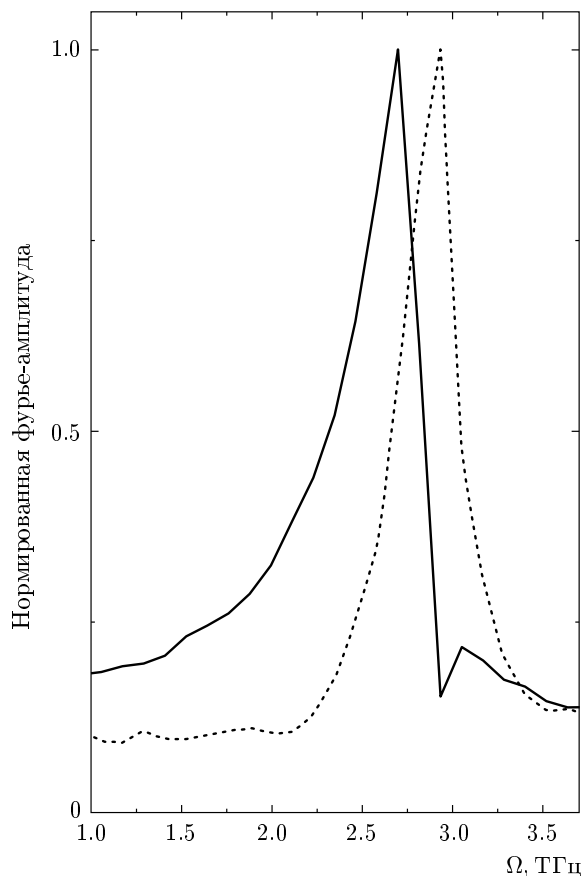


Рис. 4. Фурье-спектры осциллирующей части сигнала моноимпульсной схемы накачки, приведенного на рис. 3 для малых ($t = 0-5$ пс, сплошная линия) и больших ($t = 5-10$ пс, штриховая линия) временных задержек t

ким образом, данная аппроксимация, которая хорошо работает для осцилляций малой амплитуды в области линейности, для нелинейного режима применима только для малых времен задержки, тогда как для больших времен подгоночная функция и экспериментальные данные не совпадают. Это расхождение свидетельствует об изменении частоты осцилляций со временем, которое может быть в первом приближении аппроксимировано линейным чирпом

$$\Omega = \Omega_0 + \alpha t. \quad (3)$$

Более того, при дальнейшем увеличении плотности энергии импульса моноэкспоненциальное затухание осцилляций, наблюдаемое в линейном режиме, сменяется биэкспоненциальным и при гелиевых температурах возникает эффект коллапса и возрождения осцилляций [11], сопровождаемый появлением обертонов в спектре [9]. В фурье-преобразованном сиг-

нале проявлением чирпа, по-видимому, можно считать асимметрию фоновой линии. Однако, поскольку связь между интерференцией Фано (позволяющей описать асимметрию) и чирпованными осцилляциями теоретически на данный момент не изучена, мы в дальнейшем будем извлекать параметры осцилляций из подгонки времяразрешенного сигнала функцией (2), в которой частота задана уравнением (3). Чирпованная частота, неэкспоненциальное затухание и эффект коллапса-возрождения осцилляций большой амплитуды указывают на немарковский характер исследуемого процесса, в котором фазовая «память» играет существенную роль.

Использование двухимпульсной накачки (временная задержка между двумя импульсами накачки равной интенсивности варьировалась от 0.75 пс до 1.70 пс, что соответствовало примерно трем полным периодам осцилляций) существенно модифицирует как релаксационный, так и осциллирующий вклады. Первое очевидно из сравнения сигналов моноимпульсной и двухимпульсной накачки, показанных на рис. 3. Действительно, в случае последней неосциллирующая часть сигнала релаксирует значительно быстрее ($\tau_{rel} = 1.7$ пс вместо $\tau_{rel} = 3.2$ пс для моноимпульсной накачки), более того, при задержке около 6 пс сигнал отражения меняет полярность. Параметры осцилляций, детально обсуждаемые ниже, также изменяются, что видно на рис. 5. Отметим, что общей чертой всех анализируемых переменных является осциллирующая (периодическая) зависимость от величины управляющего параметра γ .

4. АНАЛИЗ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Прежде всего отметим, что сопоставление наших результатов с результатами предшествующих исследований [7, 17], посвященных когерентному контролю вблизи предела стабильности Линдемана в висмуте, показывает, что времена электронной релаксации при двухимпульсном возбуждении примерно совпадают. Это следует из прямого сравнения времен релаксации ($\tau_{rel} = 1.7$ пс и $\tau_{rel} = 1.78$ пс в [7]) и из того факта, что смена полярности в нашем и предшествующем исследовании [17] происходит при одних и тех же временах задержки порядка 6 пс. Однако ключевое утверждение работы [17] о том, что когерентная амплитуда A_{osc} и начальная частота Ω_0 пропорциональны друг другу (т.е. коррелированы), оказывается справедливым только для некоторых значений управляющего параметра γ , см.

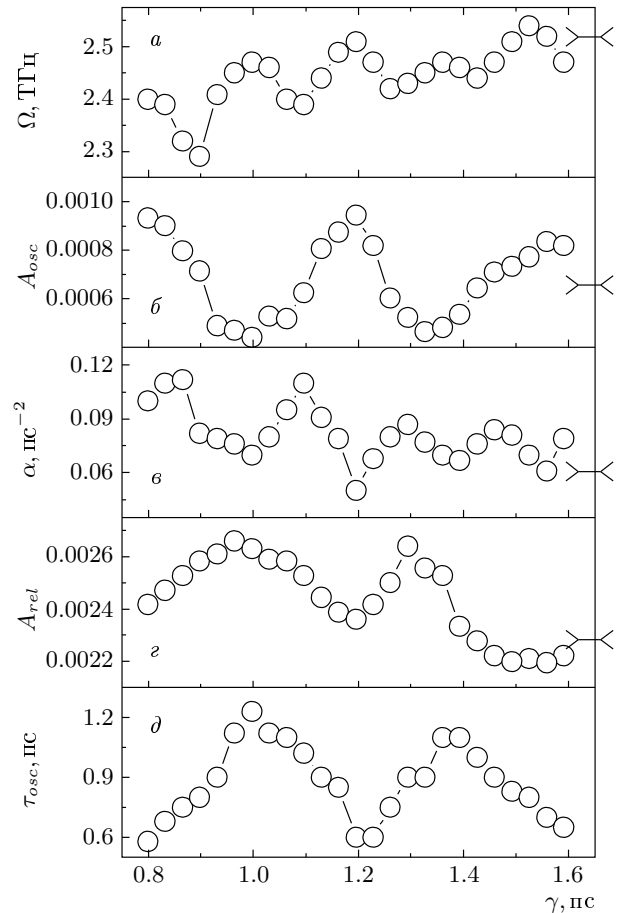


Рис. 5. Зависимость начальной частоты Ω_0 (а), амплитуды A_{osc} (б), чирпа α (в), релаксационного отклика A_{rel} (г) и времени жизни τ_{osc} осцилляций (д) от управляющего параметра γ . На правой вертикальной шкале стрелками показаны значения соответствующей величины при моноимпульсной накачке (время жизни осцилляций на рис. д при моноимпульсной накачке $\tau_{osc} = 1.76$ пс). Параметры осцилляций и релаксационного вклада получены из подгонки сигнала в реальном времени функцией (2), в которой частота задана уравнением (3)

рис. 5а,б. Прежде чем делать выводы о связи между когерентной амплитудой A_{osc} и начальной частотой Ω_0 осцилляций, оценим ошибку определения этих параметров. Точность определения частоты лимитируется частотой Найквиста, которая для наших экспериментов не превышала 0.07 ТГц и была значительно меньше, чем глубина модуляции частоты, равная примерно 0.2 ТГц, или максимальный длинноволновый сдвиг частоты около 0.7 ТГц. Отметим, что в работе [17] частота Найквиста была порядка 0.5 ТГц (частота фона определялась как среднее

по 5 периодам осцилляций), что сравнимо с величиной длинноволнового сдвига частоты. Ошибка в измерении амплитуды осцилляций в наших экспериментах не превышала 10 %, что, по-видимому, совпадает с точностью определения амплитуды в работе [17] и лимитируется стабильностью регенеративного усилителя.

На рис. 5а,б видно, что поскольку значения начальной частоты Ω_0 как функции управляющего параметра промодулированы с удвоенной частотой по отношению к модуляции результирующей когерентной амплитуды A_{osc} , для разных задержек между импульсами накачки наблюдается как корреляция, так и антикорреляция между значениями амплитуды A_{osc} и начальной частоты Ω_0 осцилляций. Очевидно, что вывод о полном отсутствии вклада ангармонизма решетки в длинноволновый сдвиг частоты фонона, сделанный в работе [17] и основанный на корреляции частоты и амплитуды, теряет свою экспериментальную поддержку. Более того, отметим, что недавние теоретические расчеты [20] указывают на важность вклада ангармонизма решетки при описании экспериментов типа накачка-зондирование в висмуте. Однако следует обратить внимание и на тот факт, что с увеличением управляющего параметра γ начальная частота Ω_0 демонстрирует слабый линейный рост при практически одинаковом значении амплитуды осцилляций A_{osc} . Это указывает на то, что максимальные значения длинноволнового сдвига реализуются при минимальных значениях управляющего параметра, для которых концентрация неравновесных носителей, созданных первым импульсом накачки, максимальна. Последнее свидетельствует о том, что вклад электронного «смягчения» существен и его нельзя игнорировать. Тем не менее представляется весьма сомнительным, что простое суммирование электронного и решеточного вкладов позволит описать эффект длинноволнового сдвига частоты. Как будет показано далее, эти вклады не аддитивны, поскольку связаны общей фазой.

Анализируя зависимость начальной частоты Ω_0 от управляющего параметра γ , легко увидеть, что минимальные значения Ω_0 , соответствующие максимальному «смягчению», реализуются для случаев, когда амплитуда осцилляций, порожденных первым импульсом накачки, близка к нулю. Максимальные значения Ω_0 (и минимальный длинноволновый сдвиг) возникают, когда эта амплитуда экстремальна, т. е. когда интерференция либо полностью конструктивна, либо деструктивна. Если, следуя Глауберу [24], представить когерентный фонon [25] как волновой пакет, то из упомянутых выше наблюде-

ний следует, что максимальное «смягчение» возникает, когда второй импульс накачки воздействует на волновой пакет, локализованный вблизи минимума потенциала, т. е. когда волновой пакет составлен из нечетных гармоник. Соответственно, минимальный длинноволновый сдвиг соответствует ситуации, в которой волновой пакет до взаимодействия со вторым импульсом накачки локализован вблизи точек классического поворота и содержит только четные гармоники.

Чтобы сравнить наши результаты по динамике решетки с данными работы [17], в которой изучались меньшие значения управляющего параметра γ , мы аппроксимировали зависимости Ω_0 и A_{osc} от управляющего параметра функцией

$$y = a + bt + \cos(\nu\gamma + \varphi) \quad (4)$$

и экстраполировали функцию $y(\gamma)$ в область малых значений γ . Результаты этой экстраполяции приведены на рис. 6 вместе с двумя из трех значений γ , использованных в работе [17], которые показаны вертикальными штрихпунктирными линиями. Из рисунка следует, что значения управляющего параметра γ работы [17] попадают в интервал антикорреляции амплитуды и начальной частоты осцилляций. Учитывая, что для меньших значений γ период начальных осцилляций больше из-за фононного чирпа, можно смело предположить, что все три значения γ в работе [17] (случайно или сознательно) были выбраны в том интервале, для которого Ω_0 и A_{osc} антикоррелированы.

Как и следовало ожидать, значения начальной частоты Ω_0 и фононного чирпа α антикоррелированы во всем диапазоне изменений управляющего параметра γ , см. рис. 5а,в. Обусловлено это тем, что конечное (равновесное) значение частоты фонона фиксировано и большее отклонение частоты (меньшая начальная частота) предполагает большую скорость ее изменения. Таким образом, большее «смягчение» частоты фонона ведет и к большему чирпу. Также следует отметить, что значения фононного чирпа α для двухимпульсной накачки всегда больше чирпа, реализуемого в случае моноимпульсной накачки.

Достаточно неожиданным фактом является показанная на рис. 5б,г антикорреляция между амплитудами осцилляций и релаксационного (электронного) отклика. Видно, что амплитуда осцилляций A_{osc} и амплитуда релаксационного вклада A_{rel} достаточно точно повторяют друг друга за исключением того, что график амплитуды осцилляций оказывается сдвинут примерно на полпериода, т. е. максимуму амплитуды осцилляций соответствует минимум

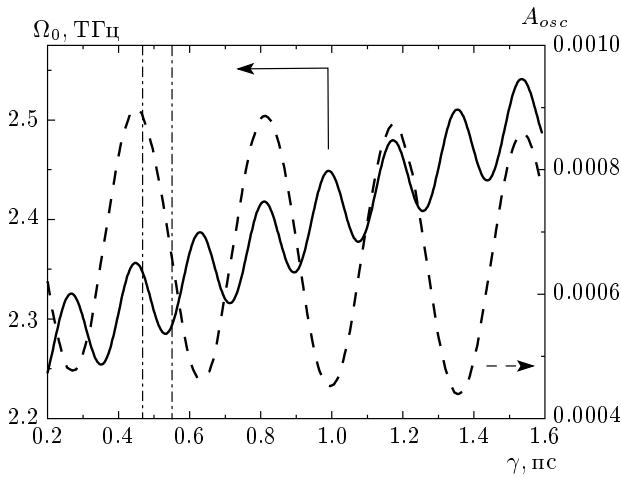


Рис. 6. Зависимости амплитуды A_{osc} (штриховая кривая, правая шкала) и начальной частоты Ω_0 (сплошная линия, левая шкала) осцилляций от управляющего параметра γ , полученные в результате аппроксимации экспериментальных данных уравнением (4) и экстраполированные в область малых значений γ . Вертикальные штрихпунктирные линии показывают значения управляющего параметра γ , использованные в работе [17]

амплитуды релаксационного сигнала. Эта антикорреляция позволяет предположить, что электронный вклад имеет достаточно хорошо определенную фазу даже при временных задержках, достигающих нескольких пикосекунд. Обычно принято считать, что фазовая память электронной подсистемы быстро теряется в результате электрон-электронного взаимодействия, и по истечении 10–100 фс электронная подсистема термализуется, что позволяет приписать электронам определенную температуру и ввести понятие квазичастиц, число которых уменьшается со временем. Наличие долгоживущей фазы у электронной подсистемы в случае импульсов большой энергии ставит под сомнение использование золотого правила Ферми и скоростных уравнений для электронного вклада, подразумевая наличие процессов, которые переносят решеточную когерентность на электронную подсистему. Поскольку релаксационный вклад содержит осциллирующую (скорее всего передемпфированную) компоненту, необходимо идентифицировать соответствующее возбуждение электронной подсистемы. На данном этапе исследований можно только предположить, что этим возбуждением является волна зарядовой плотности, которая встроена в кристалл висмута и согласно механизму Пайерлса делает его полуме-

таллом [26]. С учетом модели смещения [27], широко используемой при интерпретации экспериментов типа накачка-зондирование и являющейся частным (резонансным) случаем модели, основанной на вынужденном комбинационном рассеянии [1], сверхкороткий лазерный импульс возбуждает электроны из валентной зоны в зону проводимости, что приводит к изменению равновесных межатомных состояний. Атомы начинают движение к новому смещенному положению равновесия и вследствие своей инерции продолжают движение и после его достижения. При этом движение смещенного положения равновесия к первоначальному (равновесному) предполагается релаксационным. Однако после воздействия сверхкороткого импульса накачки большой энергии не только атомы решетки колеблются относительно положения равновесия, но и само положение равновесия осциллирует во времени, т. е. движение атомов модифицирует электронную плотность, что можно интерпретировать как колебательное движение «точки подвеса» атомного осциллятора. Косвенным указанием на подобный сценарий является отмеченный в работе [15] факт, что полностью деструктивная интерференция при когерентном контроле A_1 -фона большой амплитуды в теллуре реализуется не для классических точек поворота волнового пакета, а несколько раньше. Это предполагает, что минимум потенциала, соответствующий положению равновесия волнового пакета, зависит от времени. Отметим, что подобный факт деструктивной интерференции, реализуемый не для классических точек поворота, был также зарегистрирован и в висмуте при когерентном контроле вблизи предела стабильности Линдемана [7].

Сравнивая параметры осцилляций при двухимпульсной накачке, следует также отметить антикорреляцию между амплитудой осцилляций A_{osc} и временем жизни τ_{osc} когерентного фона, т. е. чем меньше амплитуда решеточных смещений, тем дольше решеточное возбуждение живет, см. рис. 5б,д. При этом время жизни когерентного фона всегда меньше времени жизни при моноимпульсной накачке, для которой $\tau_{osc} = 1.76$ пс. Эта антикорреляция, на первый взгляд, противоречит результатам моноимпульсной накачки с варьируемой энергией импульса, согласно которым осцилляции большей амплитуды имеют меньшее время жизни. Однако время жизни, которое определяется энергетической релаксацией, и чирп, зависящий от расфазировки и также ведущий к уменьшению амплитуды осцилляций, могут быть в зависимости от величины управляющего параметра как коррелированы, так и анти-

коррелированы, см. рис. 5*в,д*. Более того, осцилляции меньшей амплитуды при двухимпульсной накачке характеризуются меньшим чирпом, что, по-видимому, и ведет к антикорреляции между когерентной амплитудой A_{osc} и временем жизни τ_{osc} .

Анализируя зависимость параметров осциллирующего отклика от величины управляющего параметра γ , легко заметить, что амплитуда A_{osc} и время жизни τ_{osc} промодулированы с частотой ν , близкой к частоте когерентного фонона, тогда как начальная частота Ω_0 и чирп α промодулированы с удвоенной частотой 2ν . Первое является очевидным результатом интерференции, свидетельствуя о том, что результирующая амплитуда зависит от фазы осцилляций, т. е. от того, положительна или отрицательна амплитуда осцилляций, созданных первым импульсом, или, что то же самое, является ли интерференция деструктивной или конструктивной. Второе означает, что частота и чирп осцилляций определяются квадратом (или модулем) решеточных смещений. Отметим, что с удвоенной частотой 2ν промодулированы параметры осцилляций, определяющие фазу (аргумент косинуса в формуле (2)), тогда как с частотой ν промодулированы параметры, на которые умножена гармоническая функция. Таким образом, модуляция амплитуды в двухимпульсной схеме обусловлена линейной интерференцией, тогда как модуляция начальной частоты осцилляций является нелинейным эффектом, возникающим вблизи предела стабильности кристалла. Из факта антикорреляции между амплитудами решеточного и электронного отклика следует, что и начальная частота Ω_0 и чирп α осцилляций могут также определяться относительной фазой решеточного и электронного вкладов.

Осцилляции во времяразрешенных экспериментах возникают вследствие индуцированной светом когерентности кристаллической решетки, т. е. в результате установления определенных фазовых соотношений между различными фононными (и, скорее всего, электронными) состояниями, которые не сводятся к изменению населенностей решеточных (и зарядовых) мод. Для времен, меньших времен декогеренции индуцированной поляризации (как решетки, так и носителей заряда), описание динамики системы с помощью Больцмановской кинетики и золотого правила Ферми становится неприменимым, требуя квантовомеханического рассмотрения [28]. В рамках квантовой механики взаимодействия квазичастиц не являются мгновенными, как при классическом рассмотрении. Это отсутствие мгновенности взаимодействия формально проявляется в различии

структуры особенностей (нулей и полюсов) вынуждающей силы, которую используют при описании комбинационного рассеяния света и генерации когерентных фононов [29]. В первом случае (комбинационное рассеяние) особенности вынуждающей силы расположены в нижней части комплексной полуплоскости, тогда как во втором случае (генерация когерентных фононов) они находятся в верхней полуплоскости. По мере увеличения плотности энергии накачки и приближения к порогу стабильности кристалла особенности вынуждающей силы удаляются от действительной оси и описание становится акаузальным. Можно предположить, что причиной различия тензоров, используемых для описания генерации когерентных фононов и комбинационного рассеяния [29], является связь между поляризацией и населенностью, реализуемая во времяразрешенных экспериментах. Пожалуй, в этом случае более уместно говорить не о различных тензорах, а о различных процессах, определяющих сигнал в комбинационном рассеянии и времяразрешенных экспериментах. Процесс неупругого рассеяния света, ответственный за передачу энергии от поля к решетке, определяется мнимой частью нелинейной восприимчивости $\text{Im} \chi_{klmn}^{(3)}$, тогда как процесс, определяющий возникновение когерентности и перенос энергии от поля к решетке во времяразрешенных экспериментах, обусловлен модулем восприимчивости $|\chi_{klmn}^{(3)}|$. Последний зависит как от действительной, так и от мнимой части восприимчивости (стационарным аналогом данного процесса является динамическая спектроскопия, в которой важны как мнимая, так и действительная части восприимчивости $\chi_{klmn}^{(3)}$ [30]). Поэтому для прозрачных сред, в которых мнимая часть равна нулю, эти процессы идентичны и сводятся к «ударному» вынужденному комбинационному рассеянию, тогда как для непрозрачных сред эта идентичность нарушается.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При помощи метода двухимпульсной накачки фемтосекундными лазерными импульсами с большой энергией с последующим зондированием определены относительные вклады электронной и решеточной подсистем в эффект «смягчения» частоты осцилляций полносимметричного A_{1g} -фонона висмута. Анализ данных, полученных при разных значениях контролирующего параметра, выявил осциллирующее поведение всех параметров времяразрешенного отклика, при котором результирующая амплитуда A_{osc} и время жизни τ_{osc} осцилляций про-

модулированы с частотой когерентного фонона, тогда как их начальная частота Ω_0 и чирп α промодулированы с удвоенной частотой. Полученные данные свидетельствуют, что утверждение работы [17] о том, что при двухимпульсной накачке амплитуда и частота осцилляций коррелированы, справедливо только для некоторых значений управляющего параметра γ . Расширение интервала γ с неизбежностью приводит к реализации антикорреляции этих параметров, причем области корреляции и антикорреляции чередуются. Такое поведение указывает на то, что вывод о полном отсутствии вклада ангармоничности решетки в длинноволновый сдвиг частоты когерентного A_{1g} -фонона в висмуте [17] является слишком сильным и должен быть пересмотрен. В то же время линейный рост начальной частоты Ω_0 с увеличением управляющего параметра γ свидетельствует, что электронный механизм смягчения нельзя игнорировать и его вклад так же важен, как и вклад ангармонизма. Обнаруженная осциллирующая зависимость релаксационного вклада A_{rel} от управляющего параметра γ позволяет предположить наличие фазы у электронной подсистемы и предположить, что «смягчение» частоты фонона определяется не только аддитивными вкладами решеточной и электронной подсистем, но и фазовыми соотношениями между ними.

Дальнейшие исследования предполагается посвятить двухимпульсной накачке с различной интенсивностью импульсов накачки, позволяющей полностью подавить осцилляционный вклад и более детально изучить область малых и больших величин контролирующего параметра γ , что позволит выяснить степень когерентности электронной подсистемы. Мы надеемся, что полученная информация может быть использована при создании решеточных состояний с заранее заданными свойствами.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 04-02-97204), а также совместного гранта № 05-02-19910-ЯФ РФФИ и Японского общества продвижения науки (JSPS).

ЛИТЕРАТУРА

1. R. Merlin, Sol. St. Comm. **102**, 207 (1997).
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. T. Dekorsy, W. A. Kütt, T. Pfeifer, and H. Kurz, Europhys. Lett. **23**, 223 (1993).
4. M. W. Wefers, H. Kawashima, and K. A. Nelson, J. Phys. Chem. Sol. **57**, 1425 (1995).
5. M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, S. Nakashima, M. Tani, K. Sakai, and M. Hangyo, Appl. Phys. Lett. **69**(17), 2474 (1996).
6. A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, and K. Köhler, Appl. Phys. Lett. **72**, 2844 (1998).
7. M. F. DeCamp, D. A. Reis, P. H. Bucksbaum, and R. Merlin, Phys. Rev. B **64**, 092301 (2001).
8. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, Phys. Rev. Lett. **88**, 067401 (2002).
9. О. В. Мисочко, М. Хасе, М. Китаджима, Письма ЖЭТФ **78**, 85 (2003).
10. K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, J. Blums, A. Cavalleri, C. Dietrich, A. Tarasevitch, I. Uschmann, E. Förster, M. Kammler, M. Horn-von-Hoegen, and D. von der Linde, Nature (London) **422**, 287 (2003).
11. О. В. Мисочко, М. Хасе, К. Ишиока, и М. Китаджима, Phys. Rev. Lett. **92**, 197401 (2004).
12. K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde, J. Phys.: Condens. Matter **16**, R1517 (2004).
13. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, Phys. Rev. Lett. **93**, 109702 (2004).
14. S. Fahy and D. A. Reis, Phys. Rev. Lett. **93**, 109701 (2004).
15. C. A. D. Roeser, M. Kandyla, A. Mendioroz, and E. Mazur, Phys. Rev. B **70**, 212302 (2004).
16. О. В. Мисочко, М. Хасе, К. Ишиока, и М. Китаджима, Phys. Lett. A **321**, 381 (2004).
17. É. D. Murray, D. M. Fritz, J. K. Wahlstrand, S. Fahy, and D. A. Reis, Phys. Rev. B **72**, 060301(R) (2005).
18. О. В. Мисочко, М. Хасе, К. Ишиока, М. Китаджима, Письма в ЖЭТФ **82**, 478 (2005).
19. В. П. Скрипов, В. П. Коверда, *Спонтанная кристаллизация переохлажденных жидкостей: зарождение кристаллов в жидкостях и аморфных твердых телах*, Наука, Москва (1984).
20. E. S. Zijlstra, L. L. Tatarinova, and M. E. Garcia, submitted to Phys. Rev. Lett.
21. P. Tangney and S. Fahy, Phys. Rev. B **65**, 054302 (2002).
22. L. A. Falkovsky and E. G. Mishenko, Письма в ЖЭТФ **66**, 195 (1997).

23. L. A. Falkovsky and E. G. Mishenko, *ЖЭТФ* **115**, 149 (1999).
24. Р. Глаубер, в сб. *Квантовая оптика и квантовая радиофизика*, Мир, Москва (1966), с. 91.
25. A. V. Kuznetsov, C. J. Stanton, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3243 (1994).
26. X. Gonze, J.-P. Michenaud, and J.-P. Vigneron, *Phys. Rev. B* **41**, 11827 (1990).
27. H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
28. D. S. Chemla and J. Shah, *Nature* **411**, 549 (2001).
29. T. E. Stevens, J. Kuhl, and R. Merlin, *Phys. Rev. B* **65**, 144304 (2002).
30. Н. И. Коротеев, И. Л. Шумай, *Физика мощного лазерного излучения*, Наука, Москва (1991), с. 226.