

# ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАВИСИМОСТИ КОГЕРЕНТНОЙ ДИНАМИКИ РЕШЕТКИ ВИСМУТА ОТ СТЕПЕНИ ВОЗБУЖДЕНИЯ КРИСТАЛЛА

*О. В. Мисочко\*, М. В. Лебедев*

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

Поступила в редакцию 24 апреля 2009 г.

Методом накачки-зондирования фемтосекундными лазерными импульсами исследованы когерентные полносимметричные фононы висмута в широком диапазоне энергий возбуждающего импульса. Показано, что в линейном режиме, который реализуется только для слабого возбуждения, когерентная амплитуда пропорциональна накачке, тогда как скорость распада когерентного состояния и его частота остаются неизменными. В нелинейном режиме, который может быть разбит на суперлинейную и сублинейную области, скорость распада фотоиндуцированного решеточного состояния может быть аппроксимирована двухкомпонентным откликом, только одна из компонент которого сильно зависит от степени возбуждения. На базе анализа полученных данных обсуждается вопрос о природе когерентности фононной подсистемы, созданной сверхкоротким лазерным импульсом.

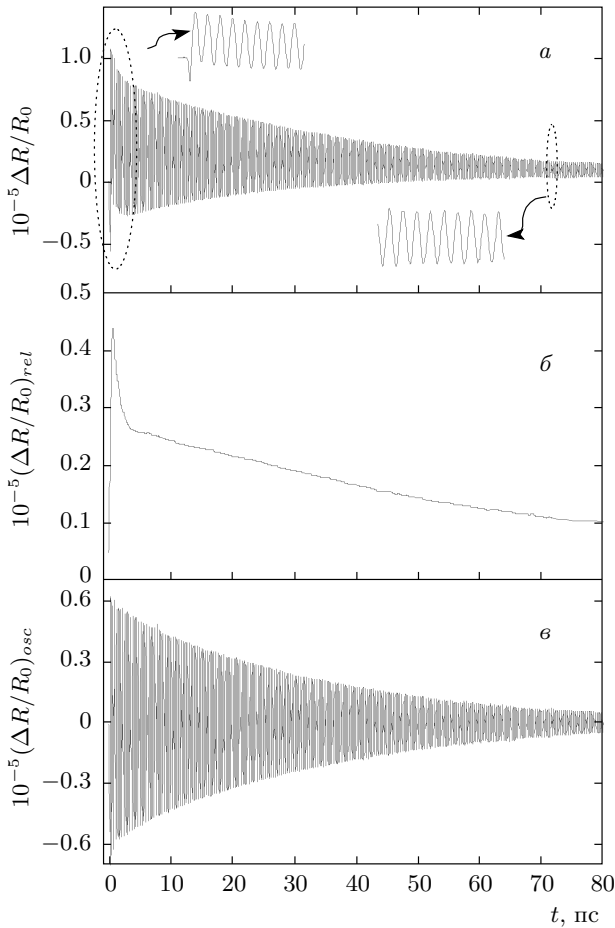
PACS: 78.47.J-, 78.47.-p

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Когерентность лежит в основе многих интересных физических явлений, таких как сверхтекучесть, сверхпроводимость, конденсация Бозе–Эйнштейна или лазерный эффект, каждое из которых является ярким физическим феноменом, в котором квантовые закономерности проявляются в макроскопическом масштабе. В большинстве этих явлений когерентность возникает спонтанно в результате фазового перехода и существует после этого в равновесных условиях. Другим достаточно распространенным случаем является создание когерентности в условиях неравновесности, реализуемой и поддерживаемой внешней накачкой, наиболее известным примером которого является лазер. Из этого краткого перечисления физически значимых ситуаций становится очевидной актуальность систематического исследования как способов создания, так и свойств когерентности в различных ансамблях элементарных возбуждений твердого тела, что в настоящее время и осуществляется для экситонов, поляритонов, магнонов и фононов [1, 2].

Изучение возбуждений кристаллической решетки в реальном времени, которое позволяет разделить когерентную и некогерентную динамики, стало возможным благодаря успехам технологии, сократившим длительность лазерного импульса до величины меньшей обратной частоты фононов. Такие сверхкороткие импульсы не только позволяют создавать когерентные суперпозиции решеточных состояний, но и являются эффективным средством контроля за их последующей эволюцией. Это убедительно подтверждается многочисленными исследованиями отклика конденсированной среды, подверженной воздействию сверхкоротких лазерных импульсов, которые выявили осциллирующее на субпикосекундной шкале поведение релаксации состояния кристалла, созданного импульсом накачки [3–6]. Эти осцилляции отражения/пропускания с периодом, совпадающим с обратной частотой комбинационно-активных решеточных мод, демонстрируют высокую степень временной и пространственной когерентности и связываются с когерентными фононами. При этом определение «когерентное» применяется в силу того, что осцилляции имеют достаточно хорошо определенную фазу, что доказывается экспе-

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



**Рис. 1.** Разрешенное во времени отражение  $\Delta R/R_0$  монокристалла висмута при гелиевой температуре и слабом возбуждении  $F = 19.2 \text{ мкДж/см}^2$  (а) и его разделение на некогерентную (б) и когерентную (в) составляющие

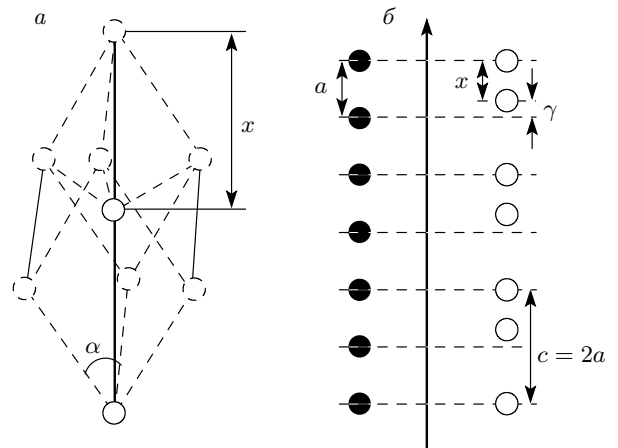
риментами по когерентному контролю [7]. При низких температурах эти осцилляции регистрируются на временах порядка наносекунд [8], т. е. решеточная когерентность является долгоживущей, что иллюстрирует для случая висмута рис. 1а.

Несмотря на достаточно долгую историю исследований когерентной динамики решетки и их несомненные успехи, целый ряд принципиальных вопросов до сих пор остается невыясненным. К ним относятся вопросы о природе когерентности ансамбля фононов и микроскопических механизмах создания решеточной когерентности. Несколько упрощая ситуацию, можно констатировать, что на данный момент мы не знаем, что когерентно в ансамбле фононов, созданных сверхкоротким лазерным импульсом, — имеем ли мы дело с макро-

пическим заполнением единственной фононной моды [9] или со сфазированными фононами различных мод [10] насколько (количественно) этот ансамбль когерентен, и какие элементарные процессы ответственны за создание решеточной когерентности. Решение первой из проблем имеет фундаментальное значение, поскольку при макроскопическом заполнении одной моды фононы тождественны и неразличимы и поэтому можно ожидать существенно квантово-механических эффектов, тогда как при фазировке различных мод фононный ансамбль может демонстрировать только классические эффекты. Можно надеяться, что исследование полностью симметричных когерентных фононов висмута при различных уровнях возбуждения позволит прояснить некоторые аспекты этих важных, но пока не до конца осмысленных свойств и характеристик.

## 2. СВОЙСТВА ВИСМУТА И ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Для понимания свойств когерентных фононов нам понадобится информация о симметрии и динамике решетки. Висмут кристаллизуется с двумя атомами в элементарной ячейке [11], рис. 2. Как было показано Абрикосовым и Фальковским [12, 13], реальный кристалл висмута (ромбоэдрическая ре-



**Рис. 2.** а) Ромбоэдрическая элементарная ячейка висмута: два атома примитивной ячейки показаны сплошными, а соседние атомы штриховыми кружками; тригональная ось выделена жирной линией, а тригональный угол  $\alpha = 57.35^\circ$ . б) Схема пайерлсовского перехода для плоскостей (111) кубической структуры в направлении тригональной оси (жирная линия со стрелкой)

сетка  $A7$  с точечной симметрией  $D_{3d}$ ) можно рассматривать как результат растяжения простой кубической решетки вдоль одной из пространственных диагоналей, сопровождаемого относительным сдвигом двух соседних ГЦК-подрешеток. Подобная деформация может быть представлена как сумма внутреннего  $\gamma$  и тригонального  $\alpha$  сдвигов, первый из которых смещает через одну плоскости (111) кубической структуры в направлении [111], а второй соответствует проскальзыванию плоскостей относительно друг друга, приводя к уменьшению тригонального угла  $\alpha$ , равного  $60^\circ$  в кубической структуре [12, 13]. При этом малая концентрация носителей и низкая симметрия решетки, ответственные за свойства висмута, промежуточные между металлом и диэлектриком, обусловлены спецификой увеличения объема элементарной ячейки [13]. Поверхность Ферми состоит из трех электронных и одного дырочного эллипсоидов, при этом экстремумы зоны проводимости находятся в точке  $L$ , а валентной зоны — в точке  $T$  зоны Бриллюэна, что делает висмут полуметаллом [13, 14]. Поскольку эксперименты проводились с использованием фотонов с энергией 1.55 эВ, в возбуждение когерентных фононов основной вклад дает оптический переход  $L_s(3) \rightarrow L_a(4)$ , однако, возможно, необходимо учитывать и вклад менее резонансного перехода  $L_a(2) \rightarrow L_s(3)$  [14], каждый из которых имеет начальным или конечным состоянием электронный экстремум зоны проводимости. Из шести фононов висмута оптические моды  $A_{1g}$  и  $E_g$  являются комбинационно-активными и могут быть когерентно возбуждены сверхкороткими лазерными импульсами [15, 16]. Полносимметричные  $A_{1g}$ -фононы, которые являются целью настоящего исследования, образуются противофазными смещениями атомов элементарной ячейки вдоль диагонали, относительно которой происходит деформация, т. е. эти фононы модулируют внутренний сдвиг  $\gamma$  и тем самым параметр порядка фазового перехода металл-полуметалл. Их частота, определяемая из спектров спонтанного комбинационного рассеяния, при комнатной температуре равняется  $\Omega \approx 2.9$  ТГц  $\approx 97$  см $^{-1}$  [17], незначительно увеличиваясь до  $\Omega \approx 3.0$  ТГц  $\approx 100$  см $^{-1}$  при понижении до гелиевой температуры [18].

В данной работе исследование когерентных фононов проводилось для плоскости, содержащей тригональную ось висмута, при гелиевой ( $T = 5$  К) температуре. При этом в основной серии экспериментов поляризация импульса накачки совпадала с тригональной осью кристалла, а поляризация зондирования была ей ортогональна. Такая геометрия

эксперимента позволила возбуждать только полносимметричные фононы, так как для дважды вырожденных мод  $zz$ -компонента рамановского тензора равна нулю. Для исследования использовалась фемтосекундная лазерная установка, состоящая из генератора фемтосекундных импульсов на титанате сапфира и регенеративного усилителя (длина волны  $\lambda = 800$  нм, длительность импульса  $t_p = 45$  фс). Измерения осуществлялись с использованием сверхкоротких импульсов малой и большой энергий в вырожденной схеме накачки-зондирования. Экспериментальная информация получалась в виде набора нормированных разностных сигналов отражения кристалла, снятых в различные моменты времени до и после возбуждения кристалла. Оба пучка (накачка и зондирование) фокусировались ахроматической линзой с фокусным расстоянием  $f = 50$  мм в пятна диаметром 0.1 мм и 0.05 мм, т. е. пятно зонда меньше размера области возбуждения. Для варьирования длительности лазерного импульса использовался формиратель, позволяющий модулировать амплитуду и фазу спектра импульса возбуждения. Для более полного описания деталей эксперимента см. работы [6, 16, 19, 20].

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Висмут, наряду с другим полуметаллом сурьмой и полупроводником теллуrom, является модельной системой для исследований когерентной динамики решетки поглощающих (непрозрачных) материалов [4–6]. При гелиевой температуре и плотности энергии  $F$  возбуждающего импульса, не превышающей 0.15 мДж/см $^2$ , амплитуда полносимметричных осцилляций в висмуте мала и линейно возрастает с ростом возбуждения, рис. 3 (следует отметить, что здесь и в дальнейшем мы приводим плотность энергии падающего, а не поглощенного излучения). В этом диапазоне энергий накачки частота (примерно 3.02 ТГц) и время жизни (около 32 пс) осцилляций, совпадающие со значениями данных спонтанного комбинационного рассеяния [18], от степени возбуждения не зависят, что позволяет аппроксимировать осцилляции коэффициента отражения экспоненциально затухающей гармонической функцией [16]:

$$A = A_0 \exp(-t/\tau) \cos(\Omega t), \quad (1)$$

где  $\Omega$  и  $\tau$  — частота и время жизни осцилляций (здесь и в дальнейшем мы рассматриваем только осциллирующую (когерентную) часть  $(\Delta R/R_0)_{osc} \equiv$

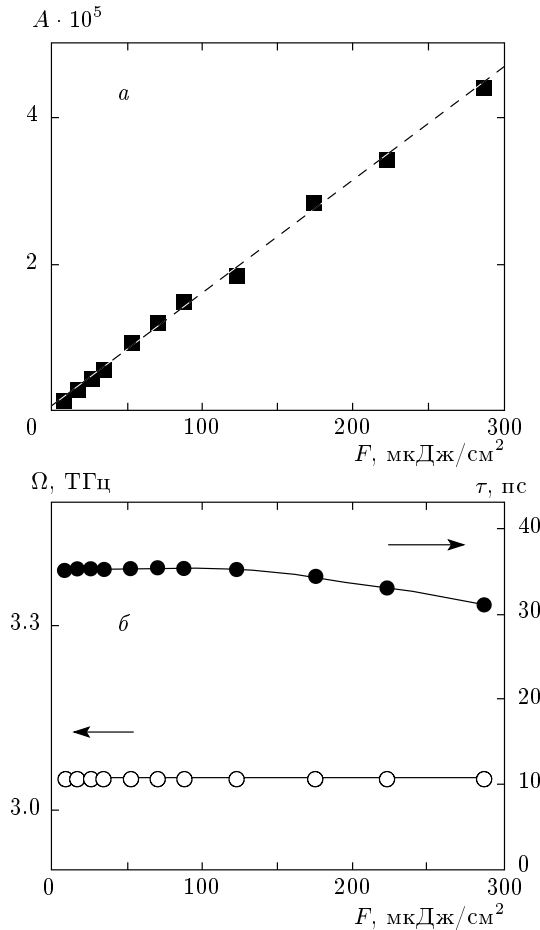


Рис. 3. Зависимость амплитуды (а), частоты и времени жизни (б) когерентных фононов от плотности энергии  $F$  лазерного импульса при слабом возбуждении и гелиевой температуре. Штриховая линия на рис. 3а соответствует линейной подгонке экспериментальных данных

$\equiv A$  фотоиндуцированного отклика, которая получалась вычитанием неосциллирующего вклада из измеряемого сигнала, см. рис. 1). При дальнейшем увеличении возбуждения  $F$  время жизни осцилляций начинает несколько уменьшаться, тогда как частота остается неизменной в пределах экспериментальной ошибки. При переходе к импульсам регенеративного усилителя рост амплитуды довольно быстро становится нелинейным, а частота и время жизни осцилляций начинают зависеть от времени [17–31].

Для того чтобы исследовать, как изменяется когерентный отклик при переходе от линейного к нелинейному режиму, мы аппроксимировали распад когерентного фотоиндуцированного состояния биэкспоненциальной функцией

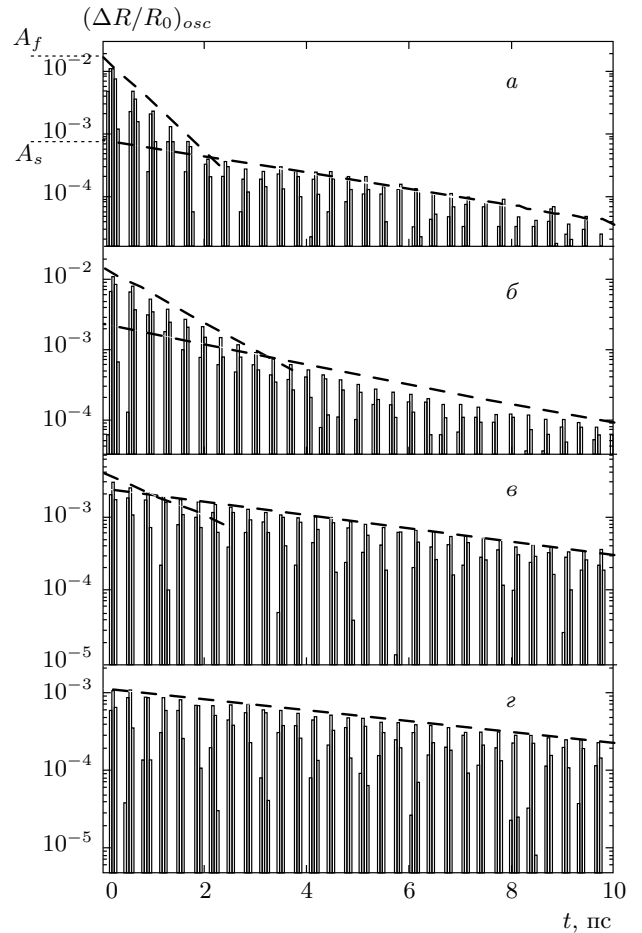


Рис. 4. Когерентные компоненты отклика для случая регенеративного усилителя при  $F$  [мДж/см<sup>2</sup>] = 13.6 (а), 9.1 (б), 2.3 (в), 0.45 (г). На верхнем графике схематически показан способ определения амплитуд уравнения (2); штриховые линии дают представление о временах жизни обеих компонент

$$A = A_f \exp\left(-\frac{t}{\tau_f}\right) \cos(\Omega_f t) + A_s \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) \cos(\Omega_s t) \quad (2)$$

и проследили, как меняются параметры этой модельной функции при варьировании степени возбуждения. В иллюстративных целях на рис. 4 приведены когерентные компоненты отклика в логарифмическом масштабе для ряда значений плотности возбуждения и схематически показан способ определения параметров уравнения (2). Из этого рисунка видно, что с ростом возбуждения однокомпонентный экспоненциально затухающий отклик пороговым образом сменяется откликом двухкомпонентным. Новая компонента, которая возникает выше

порога  $F_{th}$ , довольно быстро растет и становится доминирующей в когерентном отклике, поскольку амплитуда «старой» компоненты (генетически связанной с однокомпонентным откликом при малом возбуждении) выходит на плато и даже несколько убывает, рис. 5а. Времена жизни  $\tau_s$  и  $\tau_f$  обеих компонент при увеличении степени возбуждения уменьшаются, что иллюстрируется рис. 5б, причем, начиная с момента появления двухкомпонентного отклика, скорость распада возникшей компоненты почти на порядок превосходит скорость распада компоненты «старой», которая с ростом возбуждения демонстрирует тенденцию к насыщению. Поэтому в дальнейшем мы будем классифицировать вклады двухкомпонентного отклика как «быстрый» и «медленный». На рис. 5в приведены зависимости частот обеих компонент при варьировании плотности возбуждения от 0.5 до 28 мДж/см<sup>2</sup>, из которых следует, что частота  $\Omega_s$  медленной компоненты очень слабо зависит от степени возбуждения, тогда как частота  $\Omega_f$  быстрой компоненты сильно уменьшается.

В первых исследованиях [22, 23], в которых наблюдалась зависимость частоты полносимметричных осцилляций висмута от времени, «смягчение» частоты было приписано ангармоничности решеточного потенциала, что подтверждалось зависимостью начальной частоты от амплитуды осцилляций, контролируемой плотностью энергии накачки. Обнаруженные позднее эффекты коллапса и возрождения когерентных осцилляций [2, 32], а также появления обертонов [23, 33] в разрешенном по времени отклике обеспечили определенную поддержку этой модели. Тем не менее сразу после обнаружения смягчения частоты когерентных фононов в висмуте было предположено, что причиной длинноволнового сдвига частоты является не ангармонизм решетки, а изменение концентрации носителей, порожденное фотоиндуцированной электрон-дырочной плазмой (электронное смягчение) [24, 34]. Следует отметить, что попытки описать смягчение частоты фонона исключительно вкладом решетки или только неравновесных носителей заряда вряд ли могут привести к детальному пониманию явления, поскольку в каждой из них в той или иной степени игнорируется взаимодействие между фононами и электронами. В этой связи хотелось бы отметить теоретическую модель, предложенную в работах Фальковского и Мищенко [35, 36] и объясняющую перенормировку энергии фонона в благородных металлах неравновесными носителями заряда за счет электрон-фононного взаимодействия «горячих» электронов и «холодной» решетки. Потенциальные возмож-

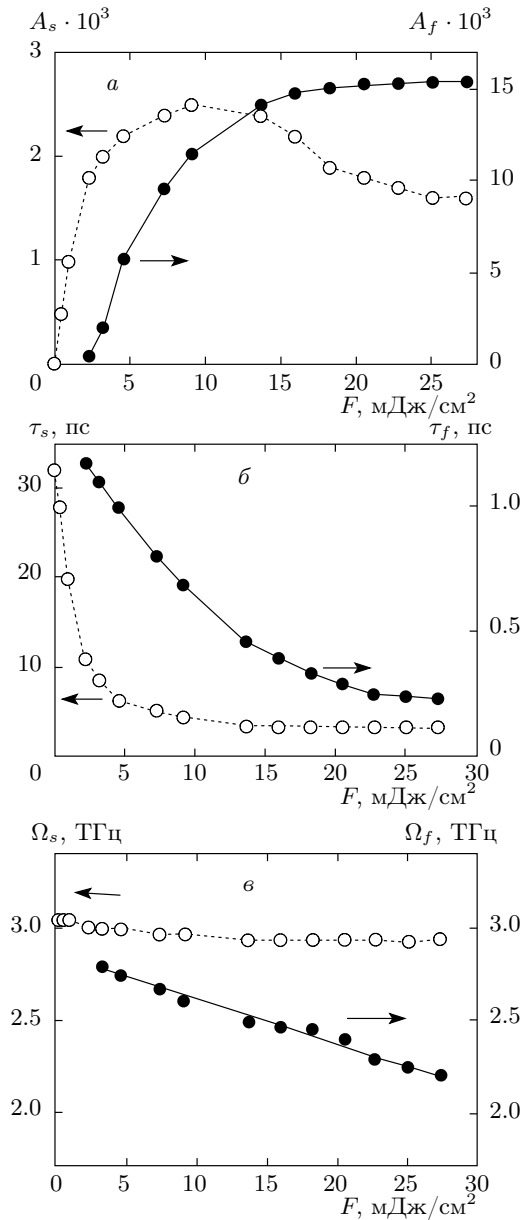


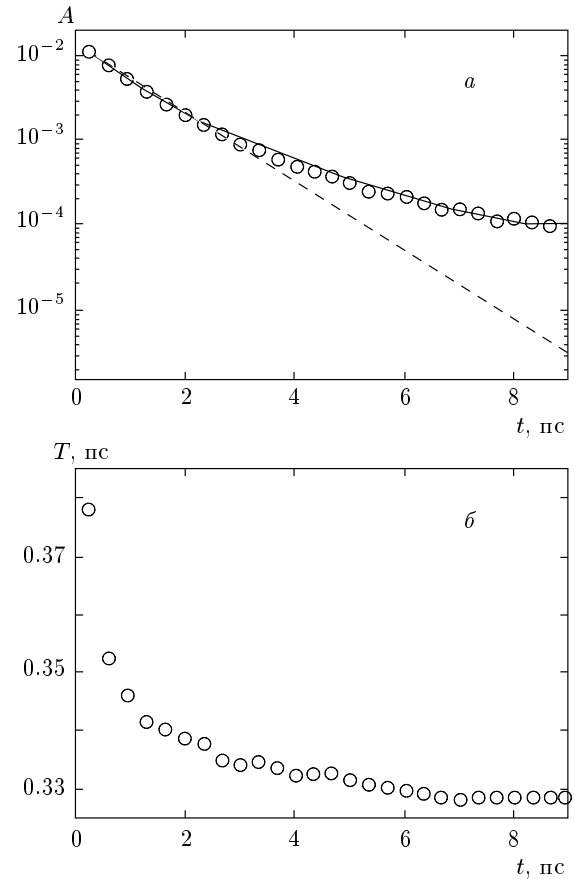
Рис. 5. Зависимости амплитуд  $A_s$ ,  $A_f$  (а), времен жизни  $\tau_s$ ,  $\tau_f$  (б) и частот  $\Omega_s$ ,  $\Omega_f$  (в) двухкомпонентного когерентного отклика от плотности энергии лазерного импульса  $F$  при сильном возбуждении (шкалы  $A_s$  и  $A_f$  различны; сплошная линия на рис. 5в — результат линейного приближения  $\Omega_f = 2.85 - 0.22F$ )

ности этой модели 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). Тем не менее модель горячих электронов и холодной решетки

предсказывает значительную перенормировку акустических ветвей фононов [35, 36], что противоречит результатам расчета на основе модели электронного смягчения, в которой для висмута перенормируются только оптические ветви [34].

Следует специально отметить, что изменение всех параметров быстрой компоненты при использовании лазерных импульсов большой энергии значительно превышает изменение параметров медленной компоненты, каждый из которых демонстрирует в той или иной степени тенденцию к насыщению. Также обращает на себя внимание то, что время жизни  $\tau_f$  быстрой компоненты убывает с ростом возбуждения значительно быстрее, чем ее частота  $\Omega_f$ : если последняя уменьшается по линейному закону  $\Omega_f = a - bF$  (см. рис. 5 в), то первое спадает экспоненциально, а при линейной подгонке скорость изменения времени жизни в два раза больше скорости спада частоты.

Заслуживает внимания и тот факт, что время жизни  $\tau_s$  медленной компоненты даже при приближении к порогу разрушения кристалла остается достаточно большим. Это полностью исключает неравновесный перегрев [26, 28] решеточной системы до температур, значительно превышающих температуру плавления. Несмотря на абсолютно корректное замечание о том, что состояние кристалла при таких уровнях накачки является весьма необычным, вывод о возможности перегрева кристаллической решетки уводит поиск истинного состояния кристалла в тупиковое направление. Действительно, фононная система в перегретом состоянии расфазирована практически мгновенно [31], тогда как мы наблюдаем весьма долгоживущую когерентность даже при весьма интенсивном возбуждении вблизи порога разрушения кристалла. Поиск причины необычных свойств следует сосредоточить на исследовании когерентности, а не на специфике неравновесности, игнорирующей сам факт наличия фазовых соотношений в системе решеточных возбуждений. Тем не менее следует отметить, что время жизни  $\tau_s$  медленной компоненты существенно отличается от времени жизни при слабом возбуждении, что позволяет предположить возникновение дополнительных каналов расфазировки при использовании импульсов большой энергии, связанных либо с наличием фотовозбужденных носителей [37], либо с необратимой модификацией кристалла. По нашим оценкам, последние каналы возникают при плотностях энергии больших  $F = 20$  мДж/см<sup>2</sup> и скорее всего обусловлены возникновением дефектов кристаллической структуры вблизи предела стабильности кристалла.



**Рис. 6.** Временная зависимость амплитуды (а) и периода (б) когерентных осцилляций при гелиевой температуре и сильном возбуждении  $F = 13.6$  мДж/см<sup>2</sup>: точки — эксперимент; штриховая и сплошная линии — результаты подгонки соответственно экспоненциальной и степенной функциями

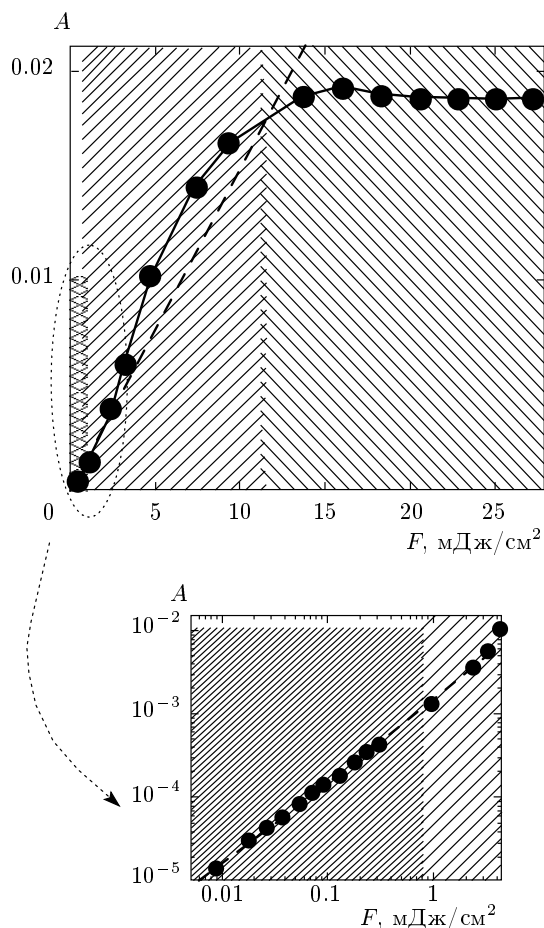
Приведенный выше анализ релаксационной динамики когерентного возбуждения висмута позволяет достаточно четко описать количественные и качественные изменения режима релаксации когерентных фононов при повышении уровня возбуждения, однако более детальное рассмотрение показывает, что затухание колебаний при сильном возбуждении происходит скорее по степенному закону, чем экспоненциально. Следует отметить, что если факт смягчения частоты когерентных фононов в висмуте широко обсуждался в целом ряде работ [20–34], то временная зависимость затухания, как правило, игнорировалась, поскольку при анализе данные аппроксимировались затухающей экспоненциальной функцией, которая содержит одну константу затухания. При подобном способе обработки эксперименталь-

ных данных заметить зависимость константы затухания от времени невозможно, и единственное, что отмечалось в некоторых из упомянутых работ, это зависимость константы затухания от степени возбуждения. Однако если представить данные в полупологарифмическом масштабе, то отклонение от экспоненциального затухания при сильном возбуждении становится очевидным. Для того чтобы проиллюстрировать такое поведение, на рис. 6 приведены временные зависимости амплитуды (в логарифмической шкале) и периода (полученного как разность абсцисс соседних максимумов) осцилляций для плотности возбуждения  $F = 13.6$  мДж/см<sup>2</sup> вместе с подгонкой амплитуды экспоненциальной и степенной функциями. Очевидно, что при высоком уровне возбуждения осцилляции демпфируются не экспоненциально, а так, что скорость их затухания замедляется во времени, а мгновенная частота (равная обратному периоду) является функцией времени.

Мы завершим экспериментальную часть представлением полученных результатов в виде зависимости суммарной когерентной амплитуды  $A = A_s + A_f$  от степени возбуждения  $F$ , изменение которой в нашем исследовании превышает четыре порядка величины  $F$  (рис. 7). Если экстраполировать линейную зависимость (наблюдаемую при слабом возбуждении) в диапазон больших плотностей энергии, то наблюдаемая зависимость  $A = f(F)$  естественным образом разбивается на три части: линейную (0–0.8 мДж/см<sup>2</sup>), суперлинейную (0.8–12 мДж/см<sup>2</sup>) и сублинейную (более 12 мДж/см<sup>2</sup>), каждая из которых демонстрирует свою характерную динамику. В данном исследовании мы сосредоточимся в основном на обсуждении линейной и нелинейной частей, сравнивая их сходства и различия в отношении времени жизни когерентных осцилляций. Неоднородность этих частей, проявляющаяся, к примеру, в эффекте коллапса и возрождения осцилляций [2, 32], который начинается в суперлинейной и продолжается в сублинейной области, а также следующая за ней область пластической деформации, требуют отдельного рассмотрения.

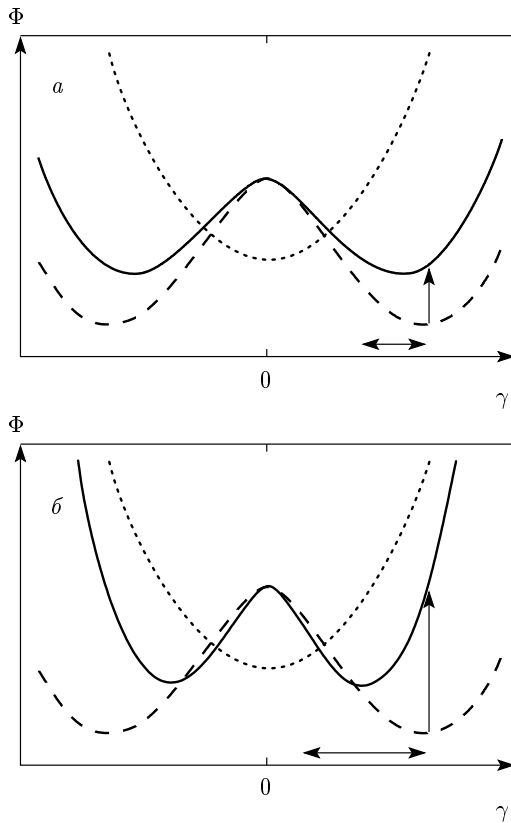
#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Согласно модели смещения [38], которая объясняет генерацию полносимметричных когерентных фононов, сверхкороткий лазерный импульс возбуждает электроны из валентной и более глубоких зон в зону проводимости и вышележащие зоны. Появле-



**Рис. 7.** Зависимость суммарной амплитуды когерентного отклика от плотности энергии лазерного импульса во всем исследованном диапазоне накачек. Штриховая линия — экстраполяция линейного режима, показанного внизу в логарифмическом масштабе, в область больших возбуждений. Зависимость  $A(F)$  разбивается на линейную (0–0.8 мДж/см<sup>2</sup>), суперлинейную (0.8–12 мДж/см<sup>2</sup>) и сублинейную (более 12 мДж/см<sup>2</sup>) области, которые выделены различными штриховками

ние фотовозбужденных мобильных электронов имеет своим следствием изменение равновесных межъядерных расстояний, которые реализуются в результате модифицированной экранировки ионов решетки. В результате атомы начинают движение к новому, смещенному положению равновесия и, вследствие своей инерции, продолжают движение и после его достижения, что и приводит к осцилляциям отражения. Новое положение равновесия в висмуте характеризуется большим расстоянием  $x$  между атомами ячейки [39], т. е. меньшим внутренним сдвигом  $\gamma = 0.5 - x$  (в единицах размера элементарной ячей-



**Рис. 8.** Термодинамические потенциалы металлической (пунктирная линия), равновесной (штриховая) и неравновесной (сплошная) «диэлектрической» фаз в случаях слабого возбуждения (*a*), при котором кристалл остается в полуметаллическом состоянии, и сильного возбуждения (*b*), когда совместное действие неравновесных носителей и когерентных фононов может привести к фазовому переходу полуметалл–металл (вертикальная стрелка соответствует переходу в возбужденное состояние, горизонтальная стрелка показывает сдвиг равновесных позиций атома)

ки), см. рис. 2. Таким образом, фотовозбуждение в некоторой степени восстанавливает спонтанно нарушенную кубическую симметрию, смещая минимум свободной энергии кристалла ближе к точке  $\gamma = 0$  пайерлсовской неустойчивости (рис. 8).

В модели смещения [38] амплитуда когерентных решеточных осцилляций не может превышать разницы позиций минимумов свободной энергии возбужденного и невозбужденного кристаллов (см. рис. 8), которая определяется числом фотовозбужденных носителей. Поэтому, оставаясь в рамках этой модели, естественно предположить, что пока оптические свойства кристалла остаются неизменными

(коэффициент поглощения не зависит от интенсивности накачки), мы наблюдаем линейный рост амплитуды, поскольку с ростом степени возбуждения число носителей и, следовательно, разница позиций минимумов линейно возрастают. Для выяснения вопроса, что же когерентно в когерентных фононах и с каким типом когерентности (внутримодовым или межмодовым) мы имеем дело, интересным является сравнение времени жизни когерентных осцилляций с временем жизни равновесных (тепловых) фононов, определяемым из ширины спектральной линии спонтанного комбинационного рассеяния. В оптическом отклике осцилляции присутствуют до тех пор пока существует когерентность. Обратное время жизни этой решеточной когерентности определяется как сумма обратных времен расфазировки  $T_2$  и жизни  $T_1$  фононов:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_1}. \quad (3)$$

Сравнение, проведенное в работе [18] для широкого диапазона температур, показало, что в висмуте времена жизни когерентных и тепловых фононов при комнатной температуре совпадают. Несмотря на то что эти времена имеют сходные температурные зависимости, свидетельствующие о том, что основным каналом распада фонона является ангармонический распад, при низких температурах наблюдается малое, но систематическое превышение времени жизни когерентных фононов над временем жизни тепловых фононов [18], т. е. в когерентном состоянии некоторые из каналов распада оказываются подавленными. Поскольку измерения в частотном и временном диапазонах проводились с использованием одной и той же длины волны, это означает, что диапазоны волновых векторов фононов, зондируемых в частотном и временном экспериментах, совпадали. Другое весьма интересное исследование времени жизни когерентных фононов в висмуте было проведено при контролируемом введении беспорядка [40], который приводил к сокращению времени жизни осцилляций. Это означает, что уменьшение времени жизни каждой из фононных мод ведет к уменьшению времени жизни суперпозиционного (когерентного) состояния. Упомянутые выше эксперименты позволяют предположить, что в формировании когерентного состояния при слабом возбуждении участвуют сфазированные фононные моды с волновыми векторами, определяемыми обратной глубиной проникновения света, каждая из которых находится в суперпозиционном состоянии. При этом линейный рост когерентной амплитуды с накачкой происходит



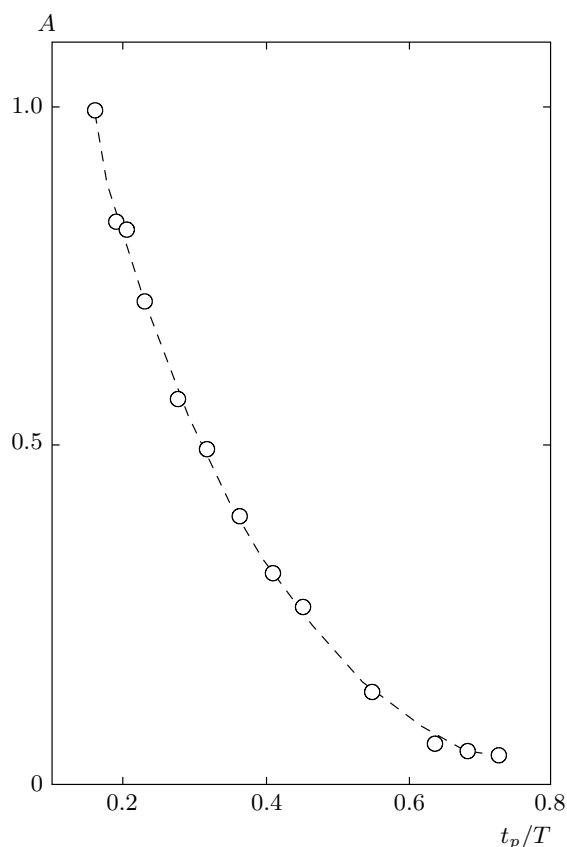


Рис. 9. Зависимость амплитуды когерентных полносимметричных  $A_{1g}$ -фононов висмута при слабом возбуждении от отношения длительности импульса возбуждения к периоду когерентных фононов. Штриховой линией показан результат подгонки экспоненциальной функцией

за счет увеличения когерентности каждой из мод, а не за счет увеличения их числа.

Чтобы проверить это предположение, мы измерили зависимость когерентной амплитуды от длительности импульса накачки, зафиксировав его энергию. С увеличением длительности возбуждения амплитуда осцилляций уменьшается экспоненциально (при этом релаксационный отклик, пропорциональный числу фотоиндуцированных носителей, остается постоянным), что следует из рис. 9, на котором показан спад амплитуды в зависимости от приведенной длительности импульса  $t_p/T$ , где  $T$  — период когерентных осцилляций. Отметим, что измеренная зависимость амплитуды опровергает теоретические основания модели генерации когерентных фононов, предложенной в работах [26, 28] и предсказывающей квадратичный рост амплитуды с увеличением длительности лазерного импульса. Спад с ростом дли-

тельности возбуждения свидетельствует о том, что амплитуда когерентных фононов определяется не только величиной сдвига минимума термодинамического потенциала, которая пропорциональна плотности фотовозбужденных носителей, но и зависит от эволюции атомов решетки в этом потенциале за время импульса накачки. Поскольку варьирование длительности возбуждения не меняет глубины проникновения света, число сфазированных фононных мод остается неизменным и единственной причиной роста амплитуды когерентных фононов при уменьшении длительности возбуждения остается увеличение степени когерентности каждой из мод.

Обратимся теперь к возникновению нелинейного режима, который реализуется выше пороговой плотности энергии  $F_{th} = 0.8$  мДж/см<sup>2</sup>, и рассмотрим диапазон накачек, в котором реализуется суперлинейная зависимость (см. рис. 7). В этом диапазоне концентрация  $n$  фотоиндуцированных носителей превышает 1% от концентрации носителей в валентной зоне, что приводит к значительным смещениям минимума термодинамического потенциала. Действительно, пренебрегая диффузией носителей и изменением оптических констант, ответственных за поглощение и глубину проникновения света при сильном возбуждении, приходим к значению плотности носителей  $n = 2 \cdot 10^{21}$  см<sup>-3</sup>. Далее, используя рассчитанную зависимость изменения внутреннего сдвига  $\gamma$  от плотности фотовозбужденных носителей [24, 34], получаем  $\Delta\gamma \approx 0.25$  Å. Такое большое искажение кристаллической структуры не позволяет описывать смещения атомов решетки с использованием невозмущенного базиса. Другими словами, диапазон неопределенности волновых векторов когерентных фононов при этом возбуждении начинает определяться не глубиной проникновения света, а размером пространственной неоднородности межатомных расстояний, который значительно меньше. Это эквивалентно «раскрытию» большей части дисперсионной кривой, т. е. включению коротковолновых фононных мод в разрешенный по времени отклик. Нарастание амплитуды осцилляций с ростом плотности энергии в этой области возбуждений может быть связано с включением все более и более коротковолновых фононных компонент в когерентную суперпозицию. Поскольку время расфазировки фононных компонент пропорционально ширине их спектра, определяемого законом дисперсии, в начальный момент, когда спектр максимально широк, это время мало и увеличивается по мере сужения спектра. Таким образом, если в линейном режиме время потери когерентности лимитиру-

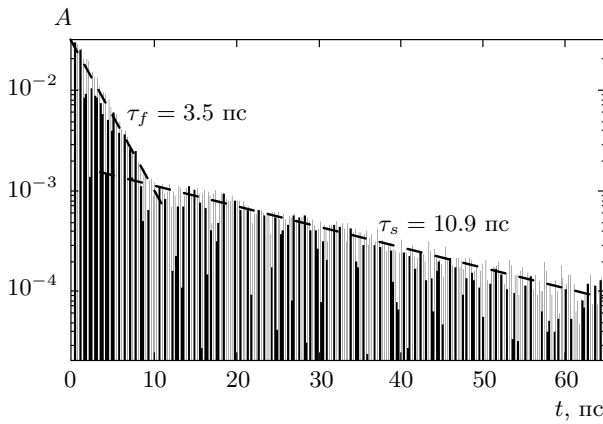


Рис. 10. Когерентная часть отклика для базисной плоскости кристалла,  $F = 14.1$  мДж/см<sup>2</sup>

ется временем жизни фононных компонент, включенных в суперпозицию, т. е. временем  $T_1$  в соотношении (3), а число этих компонент определяется глубиной проникновения света, то при переходе в нелинейный режим, в котором смещения атомов велики, это время начинает контролироваться временем  $T_2$ , т. е. расфазировкой фононных компонент, число которых определяется размером неоднородности области эффективного взаимодействия. Легко показать, что этот размер значительно меньше глубины проникновения, поскольку он определяется неоднородностью переданной решетке энергии, пропорциональной квадрату когерентной амплитуды.

Для проверки предлагаемой гипотезы были проведены эксперименты по возбуждению и детектированию когерентных фононов в базисной плоскости монокристалла, для которой глубина проникновения несколько меньше, чем при поляризации электрического вектора  $\mathbf{E}$  вдоль тригональной оси  $c$  [41]. Результат возбуждения базисной плоскости при гелиевой температуре приведен на рис. 10, и его сравнение с рис. 4 делает очевидным тот факт, что для базисной плоскости время жизни быстрой и медленной компонент увеличивается по сравнению со случаем плоскости, содержащей тригональную ось, т. е. времена обеих компонент контролируются глубиной проникновения и размером ее пространственной неоднородности. Если гипотеза о сосуществовании длинноволновых и коротковолновых фононных мод в разрешенном по времени отклике при сильном возбуждении подтвердится, то это может позволить по-новому интерпретировать эффект коллапса и возрождения когерентных фононов [32], который ранее был объяснен квантовой интерференцией фо-

нонных состояний одной моды. Действительно, коллапс осцилляций и их возрождение могут быть обусловлены интерференцией длинноволновых и коротковолновых фононных мод, что позволит рассматривать эффект как поляризационные, а не квантовые биения [42].

Следует отметить, что линейная, суперлинейная и сублинейные области, выделенные на рис. 7, не являются однородными. Как уже отмечалось, в линейной области существуют как режим, при котором время жизни осцилляций не зависит от степени возбуждения, так и режим, для которого время жизни начинает уменьшаться, хотя амплитуда осцилляций продолжает быть пропорциональной накачке. Эта неоднородность линейной области обусловлена скорее всего влиянием фотоиндуцированных носителей, которые модифицируют время жизни фононов в результате электрон-фононного взаимодействия. Примерно в середине суперлинейной области возникает режим коллапса и возрождения осцилляций [32], который продолжается и в сублинейную область. При росте накачки в нелинейном режиме, особенно в области, где происходит насыщение быстрой компоненты, т. е. при сублинейной зависимости амплитуды от накачки (см. рис. 7), нельзя исключать и возможность неравновесного фазового перехода, вызванного фотоиндуцированными носителями и согласованными смещениями атомов, участвующих в формировании когерентных фононов, при котором в полуметалле вершина валентной зоны, двигаясь вниз, выходит из области перекрытия зон [23]. Действительно, термодинамический потенциал фазы полуметалла в зависимости от внутреннего сдвига  $\gamma$  имеет вид [12]

$$\Phi_s(\gamma) = \Phi_s(0) + \sigma\gamma^2 - \chi\gamma^2 \ln(\rho/\gamma), \quad (4)$$

где  $\sigma$ ,  $\chi$  и  $\rho$  — положительные числа, тогда как для металла он может быть аппроксимирован выражением

$$\Phi(\gamma) = \Phi_m(0) + \beta\gamma^2, \quad \beta > 0.$$

Эта зависимость термодинамических потенциалов обеих фаз от внутреннего сдвига показана схематически на рис. 8. Минимизируя выражение (4) по внутреннему сдвигу, Абрикосов и Фальковский [12] показали, что позиция минимума соответствует значению

$$\gamma_{min} = \rho \exp\left(-\frac{2\sigma + \chi}{2\chi}\right).$$

Поскольку в невозбужденном кристалле минимум термодинамического потенциала для фазы полуметалла лежит ниже, чем для металлической фазы,

первая из них является равновесной, а вторая — метастабильной.

Фотовозбуждение меняет экранировку, модифицируя как константу  $\sigma$ , ответственную за взаимодействие ядер, так и константу  $\chi$ , соответствующую взаимодействию носителей с измененным потенциалом, что имеет своим следствием изменение  $\gamma_{min}$  и может привести к сосуществованию полуметаллической и металлической фаз (см. рис. 8). Кроме того, сверхбыстрое фотовозбуждение генерирует полностью симметричные когерентные фононы, которые модулируют внутренний сдвиг. Именно благодаря когерентным фононам кристалл висмута в определенные моменты времени оказывается в состояниях, для которых термодинамический потенциал металлической фазы меньше потенциала фазы полуметалла, даже если минимум потенциала полуметалла ниже минимума потенциала металлической фазы. По мере того как фотовозбужденные носители релаксируют, уходя из зоны проводимости, величина  $\gamma_{min}$  фазы полуметалла смещается в область больших значений внутреннего сдвига и эта ситуация исключается. Следует отметить, что эта гипотеза о неравновесном фазовом переходе базируется на весьма упрощенном рассмотрении. В общем случае (в зависимости от поляризации импульса накачки) сверхкороткие импульсы генерируют не только полностью симметричные, но и дважды вырожденные когерентные фононы [16]. Если первые, модулирующие энергетический зазор между минимумами металлической и полуметаллической фаз, способствуют переходу металл–полуметалл, то вторые, модулирующие тригональный сдвиг и вместе с ним зазор между  $\Phi_s(0)$  и  $\Phi_s(\gamma_{min})$ , могут привести к переходу полуметалл–диэлектрик [43]. Обычно считается, что сдвиг минимума фазы полуметалла происходит за счет фотоиндуцированных носителей, которые, как известно, могут быть ответственны за неравновесный фазовый переход в полуметаллах V группы [44]. Очевидно, что подобный сдвиг индуцируется и дважды вырожденными когерентными фононами, поскольку симметрии тригонального сдвига и данных возбуждений решетки совпадают. Поэтому детальное описание фотоиндуцированного фазового перехода в висмуте требует, по всей вероятности, учета вклада когерентных фононов  $E_g$ -симметрии.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, методом накачки-зондирования фемтосекундными импульсами исследованы свой-

ства полностью симметричных когерентных фононов в висмуте при гелиевой температуре в зависимости от их амплитуды, которая контролировалась интенсивностью накачки, варьирувавшейся в широком диапазоне, охватывающем четыре порядка плотности энергии импульса возбуждения. Показано, что зависимость амплитуды от степени возбуждения имеет линейный и нелинейный режимы, причем последний разбивается на суперлинейную и сублинейную области. В линейном режиме рост когерентной амплитуды обусловлен увеличением степени когерентности каждой из фононных мод с волновыми векторами, определяемыми глубиной проникновения света. В этом режиме когерентная амплитуда является мерой когерентности фононного ансамбля, поскольку ее рост не сопровождается изменением числа фононных мод. В нелинейном режиме скорость распада когерентных фононов имеет степенную, а не экспоненциальную зависимость и может быть аппроксимирована двухкомпонентным откликом, только одна из компонент которого связана с линейным режимом. При переходе в нелинейный режим рост амплитуды осцилляций происходит за счет увеличения числа фононных мод, вызванного возникновением пространственной неоднородности области возбуждения.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 07-02-00148).

## ЛИТЕРАТУРА

1. D. Snoke, *Nature* **443**, 403 (2006).
2. O. V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, *Phys. Lett. A* **321**, 381 (2004).
3. L. Dhar, J. A. Rogers, and K. A. Nelson, *Chem. Rev.* **94**, 157 (1994).
4. R. Merlin, *Sol. St. Comm.* **102**, 207 (1997).
5. 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.
6. О. В. Мисочко, *ЖЭТФ* **119**, 285 (2001).
7. M. W. Wefers, H. Kawashima, and K. A. Nelson, *J. Phys. Chem. Sol.* **57**, 1425 (1995).
8. C. Aku-Leh, J. Zhao, R. Merlin, J. Menéndez, and M. Cardona, *Phys. Rev. B* **71**, 205211 (2005).
9. A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3243 (1994).

10. T. Pfeifer, W. Kütt, and H. Kurz, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3248 (1992).
11. H. Jones, *Proc. Roy. Soc. London A* **147**, 396 (1934).
12. А. А. Абрикосов, Л. А. Фальковский, *ЖЭТФ* **43**, 1089 (1962).
13. Л. А. Фальковский, *УФН* **94**, 3 (1968).
14. В. С. Эдельман, *УФН* **123**, 257 (1977).
15. T. K. Cheng, J. Vidal, H. J. Zeiger, G. Dresselhaus, M. S. Dresselhaus, and E. P. Ippen, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1923 (1991).
16. K. Ishioka, M. Kitajima, and O. V. Misochko, *J. Appl. Phys.* **100**, 093501 (2006).
17. J. B. Renucci, W. Richter, M. Cardona, and E. Schonherr, *Phys. Stat. Sol. (a)* **60**, 299 (1973).
18. M. Hase, K. Mizoguchi, H. Narima, S. Nakashima, and K. Sakai, *Phys. Rev. B* **58**, 5448 (1998).
19. М. В. Лебедев, О. В. Мисочко, *ФТТ* **51**, 1735 (2009).
20. O. V. Misochko, K. Ishioka, M. Hase, and M. Kitajima, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 10571 (2006).
21. M. F. DeCamp, D. A. Reis, P. H. Bucksbaum, and R. Merlin, *Phys. Rev. B* **64**, 092301 (2001).
22. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067401 (2002).
23. О. В. Мисочко, М. Хасе, М. Китажима, *Письма в ЖЭТФ* **78**, 85 (2003).
24. E. D. Murray, D. M. Fritz, J. K. Wahlstrand, S. Fahy, and D. A. Reis, *Phys. Rev. B* **72**, 060301(R) (2005).
25. A. Q. Wu and X. Xu, *Appl. Surf. Sci.* **253**, 6301 (2007).
26. D. Boschetto, E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, D. Glijer, T. Garl, O. Albert, A. Rouse, and J. Etchepare, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 027404 (2008).
27. A. A. Kolomenskii, S. N. Jerebtsov, H. Liu, H. Zhang, Z. Ye, Z. Luo, W. Wu, and H. A. Schuessler, *J. Appl. Phys.* **104**, 103110 (2008).
28. T. Garl, E. G. Gamaly, D. Boschetto, A. V. Rode, B. Luther-Davies, and A. Rouse, *Phys. Rev. B* **78**, 134302 (2008).
29. А. А. Мельников, О. В. Мисочко, С. В. Чекалин, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 148 (2009).
30. A. V. Rode, D. Boschetto, T. Garl, and A. Rouse, in *OSA Technical Digest*, Optical Society of America (2008), paper QFN6.
31. O. V. Misochko, M. Kitajima, and K. Ishioka, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 029701 (2009).
32. O. V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 197401 (2004).
33. E. S. Zijlstra, L. L. Tatarinova, and M. E. Garcia, *Phys. Rev. B* **74**, 220301(R) (2006).
34. É. D. Murray, S. Fahy, D. Prendergast, T. Ogitsu, D. M. Fritz, and D. A. Reis, *Phys. Rev. B* **75**, 184301 (2007).
35. L. A. Falkovsky and E. G. Mishenko, *Письма в ЖЭТФ* **66**, 195 (1997).
36. L. A. Falkovsky and E. G. Mishenko, *ЖЭТФ* **115**, 149 (1999).
37. G. O. Smith, T. Juhasz, W. E. Bron, and Y. B. Levinson, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 2366 (1992).
38. H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
39. K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde, *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, R1517 (2004).
40. M. Hase, K. Ishioka, M. Kitajima, K. Ushida, and S. Hishita, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1258 (2000).
41. A. P. Lenham, D. M. Treherne, and A. J. Metcalfe, *J. Opt. Soc. Amer.* **55**, 1072 (1965).
42. M. S. Diakhate, E. S. Zijlstra, and M. E. Garcia, *Appl. Phys. A* **96**, 5 (2009).
43. A. B. Shick, J. B. Ketterson, D. L. Novikov, and A. J. Freeman, *Phys. Rev. B* **60**, 15484 (1999).
44. D. Faust, O. V. Misochko, and P. H. M. van Loosdrecht, submitted to *Phys. Rev. Lett.* (2009).