

КОЛЛАПС И ВОЗРОЖДЕНИЕ ФОТОИНДУЦИРОВАННЫХ ОСЦИЛЛЯЦИЙ КОЭФФИЦИЕНТА ОПТИЧЕСКОГО ОТРАЖЕНИЯ ВИСМУТА

А. Л. Семенов*

Ульяновский государственный университет
432970, Ульяновск, Россия

Поступила в редакцию 29 июня 2015 г.

Проведен расчет усредненного коэффициента оптического отражения висмута в зависимости от времени t после облучения коротким лазерным импульсом. Показано, что при определенных условиях амплитуда A фотоиндуцированных осцилляций усредненного коэффициента оптического отражения имеет экстремумы. Вычислено время τ_j (j — натуральное число), при котором амплитуда A достигает j -го экстремума. Рассчитанные зависимости времени τ_1 и τ_2 достижения соответственно первого и второго экстремумов (первого минимума и первого максимума) амплитуды A от максимальной плотности энергии Q лазерного импульса согласуются с экспериментальными данными работы [8].

DOI: 10.7868/S0044451016020085

1. ВВЕДЕНИЕ

Из эксперимента [1] известно, что под действием короткого лазерного импульса в висмуте и ряде других материалов возбуждаются когерентные колебания атомов кристаллической решетки (фотоиндуцированные когерентные фононы) и, как следствие, осцилляции коэффициента оптического отражения. Линейная теория фотоиндуцированных когерентных фононов [1] хорошо согласуется с экспериментом по облучению Sb, Bi, Te, Ti_2O_3 коротким лазерным импульсом малой энергии. Нелинейная теория [2, 3] фотоиндуцированных когерентных колебаний кристаллической решетки объясняет асимметрию фоновой линии в фурье-спектре колебаний [4], нелинейное затухание фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения [5], зависимость частоты колебаний от плотности энергии лазерного импульса и времени [6, 7]. В линейном приближении теория [2, 3] переходит в теорию [1].

Благодаря ангармонизму кристаллической решетки частота фотоиндуцированных когерентных фононов зависит от концентрации фотовозбужденных электронов [2]. Фотовозбуждение электронов вблизи поверхности пространственно неоднородно вдоль и поперек направления движения лазерного

импульса. Если радиус r_0 зондирующего импульса существенно меньше радиуса r_e возбуждающего импульса, то поперечной неоднородностью возбуждения можно пренебречь. В этом случае дефазировка фотоиндуцированных когерентных фононов, имеющих разные частоты, ведет к монотонному неэкспоненциальному убыванию амплитуды $A(t)$ фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения [3].

Эксперимент [8–10] показал, что амплитуда фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута немонотонно зависит от времени, обращаясь почти в нуль и снова увеличиваясь (коллапс и возрождение фотоиндуцированных осцилляций). В работе [10] эффект коллапса и возрождения фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения объясняется поперечной пространственной неоднородностью оптического возбуждения поверхности висмута.

В настоящей работе теоретически исследуется влияние поперечной пространственной неоднородности оптического возбуждения и максимальной плотности энергии Q возбуждающего лазерного импульса на зависимость $A(t)$.

2. КОЭФФИЦИЕНТ ОПТИЧЕСКОГО ОТРАЖЕНИЯ

Пусть на поверхность висмута, занимающего область $z > 0$, вдоль оси z падает плоская квази-

* E-mail: smnv@mail.ru

нохроматическая линейно поляризованная световая волна. Векторы напряженности электрического \mathbf{E} и магнитного \mathbf{H} полей запишем в виде

$$\mathbf{E} = A \exp(-i\omega t) \mathbf{e}_x, \quad \mathbf{H} = B \exp(-i\omega t) \mathbf{e}_y,$$

где $A(z, t)$, $B(z, t)$ — медленноменяющиеся во времени амплитуды; ω — циклическая частота светового поля; \mathbf{e}_x , \mathbf{e}_y — орты соответственно осей x и y . Амплитуды $A(z, t)$, $B(z, t)$ описываются системой уравнений, следующей из уравнений Максвелла [11]:

$$\begin{aligned} \frac{dA}{dz} &= ik_0 B, \\ \frac{dB}{dz} &= ik_0 \varepsilon A, \end{aligned} \quad (1)$$

где $k_0 = \omega/c$, c — скорость света, $\varepsilon(z, t)$ — комплексная диэлектрическая проницаемость.

В области $z < 0$, где $\varepsilon = 1$, решение системы уравнений (1) имеет вид

$$\begin{aligned} A(z, t) &= A_1 \exp(ik_0 z) + A_2 \exp(-ik_0 z), \\ B(z, t) &= A_1 \exp(ik_0 z) - A_2 \exp(-ik_0 z), \end{aligned} \quad (2)$$

где A_1 , A_2 — константы, не зависящие от z . Из уравнений (2) с учетом условия непрерывности функций $A(z, t)$, $B(z, t)$ на границе $z = 0$ получаем

$$R = \left| \frac{A_2}{A_1} \right|^2 = \left| \frac{A(0, t) - B(0, t)}{A(0, t) + B(0, t)} \right|^2. \quad (3)$$

Формула (3) определяет коэффициент оптического отражения висмута.

3. УСРЕДНЕННЫЙ КОЭФФИЦИЕНТ ОПТИЧЕСКОГО ОТРАЖЕНИЯ

Пусть на поверхность висмута, занимающего область $z > 0$, вдоль оси z падают возбуждающий и зондирующий световые импульсы соответственно с интенсивностями

$$I(t, r) = \frac{2Q}{\sqrt{\pi} \tau_p} \exp \left(- \left(\frac{2t}{\tau_p} \right)^2 - \left(\frac{r}{r_e} \right)^2 \right), \quad (4)$$

$$I_0(t, r) = \frac{2Q_0}{\sqrt{\pi} \tau_p} \exp \left(- \left(\frac{2(t-\tau)}{\tau_p} \right)^2 - \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \right), \quad (5)$$

где Q , Q_0 — максимальная плотность энергии возбуждающего и зондирующего световых импульсов соответственно, τ_p — длительность импульсов, τ —

время задержки зондирующего импульса относительно возбуждающего, r — расстояние до оси z . Измеряемый в эксперименте усредненный коэффициент оптического отражения определяется соотношением

$$R_1(\tau) = W_1/W_0, \quad (6)$$

где

$$W_0 = \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_0^{\infty} I_0(t, r) 2\pi r dr, \quad (7)$$

$$W_1 = \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_0^{\infty} R(t, r) I_0(t, r) 2\pi r dr \quad (8)$$

— энергия соответственно зондирующего и отраженного световых импульсов, $R(t, r)$ — локальный коэффициент оптического отражения (3).

4. МАТЕРИАЛЬНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Кристаллическую решетку висмута можно получить из простой кубической решетки посредством малых смещений атомов. Для этого нужно сместить две гранецентрированные подрешетки висмута относительно друг друга вдоль одной из главных пространственных диагоналей (пайерлсовское искажение) и слегка растянуть решетку вдоль этой же диагонали [12]. При этом атомы висмута, расположенные в виде цепочек, параллельных тригональной оси кристалла (главной пространственной диагонали), попарно сближаются. Координата x_j j -го атома Bi в цепочке записывается в форме

$$x_j = ja + (-1)^j x, \quad (9)$$

где a — среднее межатомное расстояние в цепочке, x — смещения атомов из эквидистантного положения при их попарном сближении (пайерлсовском искажении). Эволюция параметра x во времени определяется уравнением [2, 3]

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} = \Omega_0^2 \left(x \ln \frac{x_0}{x} - x_0 \theta n \right), \quad (10)$$

где γ^{-1} — характерное время фононной релаксации, n — концентрация фотовозбужденных электронов, Ω_0 — циклическая частота когерентных фононов при $n = 0$, θ — константа, характеризующая взаимодействие когерентных фононов с фотовозбужденными электронами, x_0 — равновесное смещение атомов висмута из эквидистантного положения в отсутствие облучения.

Зависимость концентрации n фотовозбужденных электронов от времени подчиняется кинетическому уравнению [13]

$$\dot{n} = \frac{(1-R)\alpha I}{\hbar\omega} \exp(-\alpha z) - \frac{n}{\tau_0} + D\Delta n, \quad (11)$$

где α — коэффициент оптического поглощения, I — интенсивность падающего на поверхность возбуждающего светового импульса (4), τ_0 , D — характерное время жизни и коэффициент диффузии неравновесных электронов соответственно.

Диэлектрическая проницаемость фотовозбужденного висмута приближенно может быть записана в виде

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \left(1 + g \frac{x - x_0}{x_0} \right) + \varepsilon_1, \quad (12)$$

где ε_0 — диэлектрическая проницаемость в отсутствие фотовозбуждения,

$$g = \frac{x_0}{\varepsilon_0} \left. \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} \right|_{x=x_0}, \quad (13)$$

$\varepsilon_1(n)$ — добавка, связанная с изменением степени заполнения электронных состояний при фотовозбуждении. Слагаемое $\varepsilon_1(n)$ не вносит вклада в осциллирующую часть коэффициента оптического отражения и в дальнейшем не рассматривается.

5. УСЛОВИЯ ЧИСЛЕННОГО АНАЛИЗА

Численный анализ проводился для следующих значений параметров при низких температурах: частота когерентного фонона при малом уровне фотовозбуждения $\nu_0 = \Omega_0/2\pi \approx 3.02$ ТГц [5]; равновесное смещение атомов Вi из эквидистантного положения в отсутствие фотовозбуждения $x_0 \approx 0.019$ нм [14] ($x_0 = (a_2 - a_1)/4$, где $a_1 \approx 0.552$ нм, $a_2 \approx 0.628$ нм — соответственно минимальное и максимальное расстояния между атомами Вi вдоль тригональной оси); время жизни когерентного фонона при малом уровне фотовозбуждения $1/\gamma \approx 35$ пс [5]; коэффициент $\theta \approx 3.25 \cdot 10^{-23}$ см³; коэффициент оптического отражения $R \approx 0.7$ [1], коэффициент оптического поглощения $\alpha \approx 6 \cdot 10^5$ см⁻¹ [4], энергия фотонов $\hbar\omega \approx 1.55$ эВ [5]; характерное время жизни неравновесных электронов $\tau_0 \sim 10^{-8}$ с [15] (по данным затухания фотопроводимости); коэффициент диффузии $D = 1.4$ см²/с [16]; коэффициент $g = -0.4$ (определялся из условия $dR/dQ \approx 10^{-3}$ см²/мДж [5]); диэлектрическая проницаемость в отсутствие фотовозбуждения $\varepsilon_0 = (1.6 + 3.82i)^2$ [4]; длительность светового импульса $\tau_p = 130$ фс [8].

Уравнения (1), (10), (11) в области $z > 0$ решались с учетом следующих начальных и граничных условий:

$$n(t = -\infty) = 0, \quad n(z \rightarrow \infty) = 0, \quad \left. \frac{\partial n}{\partial z} \right|_{z=0} = 0, \quad (14)$$

$$x(t = -\infty) = x_0, \quad \left. \frac{\partial x}{\partial t} \right|_{t=-\infty} = 0, \quad (15)$$

$$A(z \rightarrow \infty) \rightarrow \exp(i\sqrt{\varepsilon_0} k_0 z), \quad B(z \rightarrow \infty) \rightarrow \sqrt{\varepsilon_0} \exp(i\sqrt{\varepsilon_0} k_0 z). \quad (16)$$

Уравнения (16) описывают затухающую волну, бегущую в направлении оси z . Усредненный коэффициент оптического отражения R_1 вычислялся по формуле (6).

6. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показан полученный численным методом график зависимости относительного изменения $(R_1 - R_0)/R_0$ среднего коэффициента оптического отражения R_1 (6) висмута от времени t после

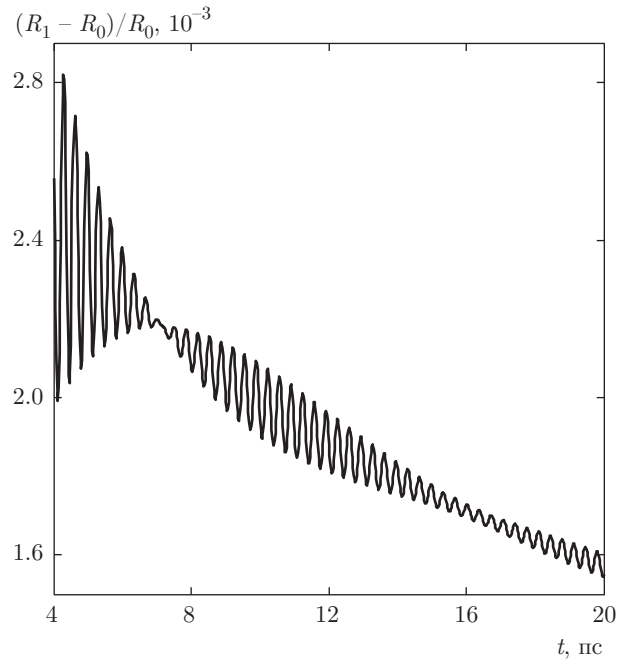


Рис. 1. Зависимость относительного изменения $(R_1 - R_0)/R_0$ среднего коэффициента оптического отражения R_1 (6) висмута от времени t после облучения коротким лазерным импульсом с интенсивностью (4) и максимальной плотностью энергии $Q = 12$ мДж/см² в случае $r_e = r_0$

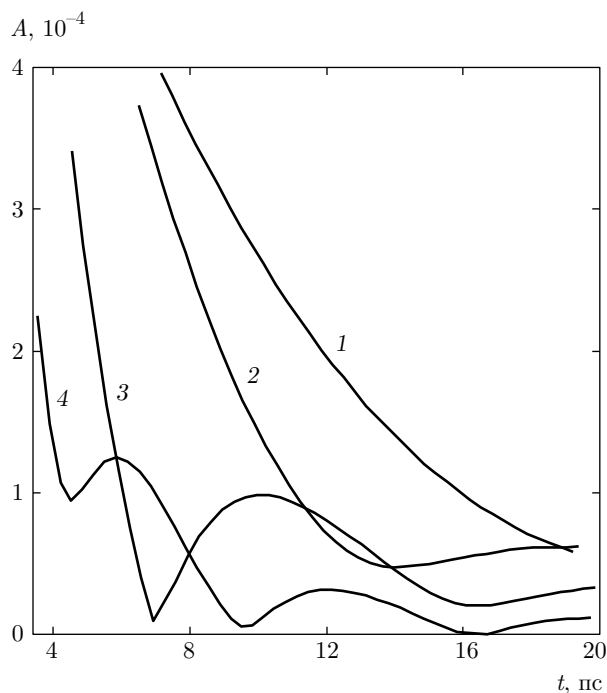


Рис. 2. Зависимость амплитуды $A(t)$ фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения (см. формулу (17)) для значений максимальной плотности энергии лазерного импульса $Q = 6, 8, 12, 16$ мДж/см² в случае $r_e = r_0$ (соответственно кривые 1–4)

облучения коротким лазерным импульсом с интенсивностью (4) и максимальной плотностью энергии $Q = 12$ мДж/см² в случае $r_e = r_0$. Здесь R_0 — коэффициент оптического отражения висмута в отсутствие фотовозбуждения. Видно, что при $t \approx 7$ пс наблюдаются коллапс и возрождение фотоиндуцированных осцилляций среднего коэффициента оптического отражения висмута. Эволюция коэффициента оптического отражения приближенно описывается уравнением

$$\frac{R_1(t) - R_0}{R_0} = B(t) + A(t) \cos(\Omega t + \varphi), \quad (17)$$

где Ω, φ — соответственно циклическая частота и начальная фаза осцилляций; $A(t), B(t)$ — теперь некоторые медленноменяющиеся функции времени.

Зависимость амплитуды $A(t)$ фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута для различных значений максимальной плотности энергии Q лазерного импульса в случае $r_e = r_0$ показана на рис. 2. Видно, что при $Q = 6$ мДж/см² зависимость $A(t)$ монотонно убывает, а при $Q \geq 8$ мДж/см² имеет экстремумы. Обозначим через τ_j момент времени, в который достигается j -й экстремум амплитуды $A(t)$, считая слева

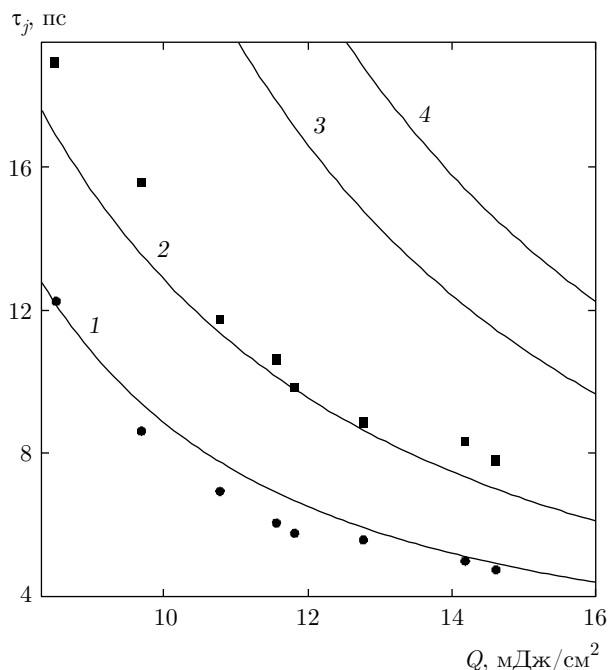


Рис. 3. Зависимость τ_j ($j = 1-4$) j -го экстремума амплитуды $A(t)$ фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения от максимальной плотности энергии Q возбуждающего лазерного импульса в случае $r_e = r_0$ (соответственно кривые 1–4). Кружки и квадраты — экспериментальные данные [8] соответственно для первого минимума и первого максимума (первого и второго экстремумов) амплитуды $A(t)$

направо ($\tau_j < \tau_{j+1}$). Зависимости τ_j от максимальной плотности энергии Q возбуждающего лазерного импульса показаны на рис. 3. Точки $\tau_{1,3}$ соответствуют минимумам амплитуды $A(t)$, а точки $\tau_{2,4}$ — максимумам. Символами на рис. 3 отмечены экспериментальные данные работы [8]. Видно, что теория и эксперимент достаточно хорошо согласуются.

На рис. 4 показан график зависимости амплитуды $A(t)$ фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута для различных значений параметра $\chi = r_0/r_e$ в случае максимальной плотности энергии лазерного импульса $Q = 12$ мДж/см². Параметр χ характеризует поперечную пространственную неоднородность концентрации фотовозбужденных электронов в области оптического зондирования. При $\chi \rightarrow 0$ поперечная пространственная неоднородность в области оптического зондирования отсутствует. На рис. 4 видно, что при отклонении χ от единицы эффект коллапса и возрождения осцилляций становится менее выраженным, а при $\chi = 0.6$ отсутствует.

Для количественной характеристики эффекта коллапса и возрождения фотоиндуцированных ос-

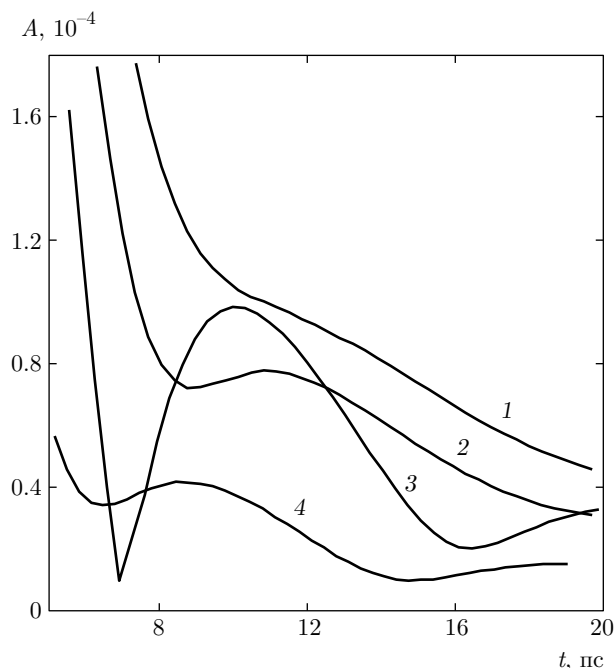


Рис. 4. Зависимость амплитуды $A(t)$ фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения для значений параметра $\chi = r_0/r_e = 0.6, 0.7, 1, 2$ (соответственно кривые 1–4) в случае максимальной плотности энергии лазерного импульса $Q = 12 \text{ мДж/см}^2$

цилляций коэффициента оптического отражения введем величину

$$s = \sum_{j=1,2,\dots} (A(\tau_{2j}) - A(\tau_{2j-1})), \quad (18)$$

где суммирование идет по всем точкам экстремума зависимости $A(t)$. Параметр $s \geq 0$, причем $s = 0$ только в отсутствие эффекта коллапса и возрождения. Показатель s показывает суммарное нарастание функции $A(t)$.

График зависимости функции $s(\chi)$ для различных значений максимальной плотности энергии лазерного импульса Q показан на рис. 5. Видно, что эффект коллапса и возрождения осцилляций (когда $s(\chi) > 0$) имеет пороговый характер, т. е. наблюдается только при $\chi > \chi_1$, где $\chi_1(Q)$ — некоторое критическое значение параметра χ . Наиболее сильно эффект проявляется в точке χ_2 , где функция $s(\chi)$ достигает максимума. Графики зависимостей $\chi_1(Q)$ и $\chi_2(Q)$ показаны на рис. 6. Видно, что эти зависимости являются монотонно убывающими. Для $Q = 12 \text{ мДж/см}^2$ эволюция кривой $A(t)$ при переходе χ через $\chi_1 \approx 0.65$ и $\chi_2 \approx 1.04$ прослеживается на рис. 4.

На рис. 7 показан график зависимости $s_m(Q) = s(Q, \chi = \chi_2(Q))$. Видно, что при $Q < 5.9 \text{ мДж/см}^2$

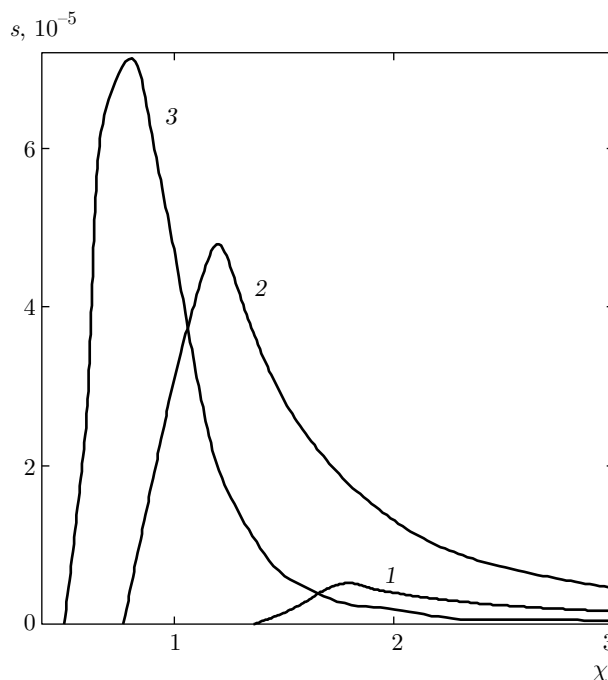


Рис. 5. Зависимость параметра $s(\chi)$ для значений максимальной плотности энергии лазерного импульса $Q = 6, 10, 16 \text{ мДж/см}^2$ (соответственно кривые 1–3)

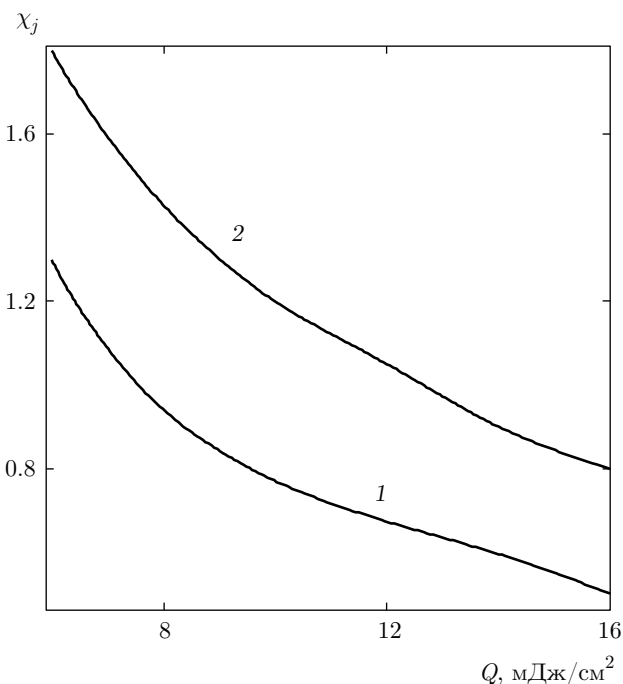


Рис. 6. Зависимости порогового значения $\chi_1(Q)$ и значения $\chi_2(Q)$, при котором эффект коллапса и возрождения осцилляций проявляется наиболее сильно (соответственно кривые 1, 2)

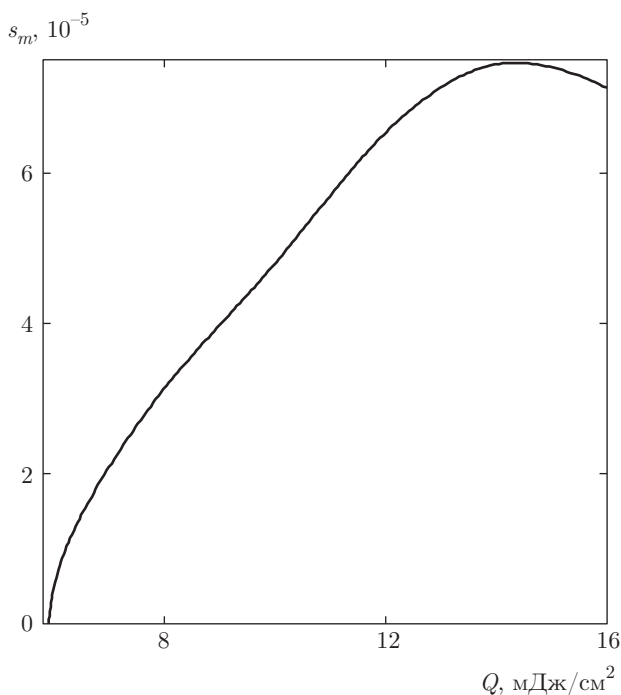


Рис. 7. Зависимость параметра $s_m(Q) = s(Q, \chi = \chi_2(Q))$ от максимальной плотности энергии Q возбуждающего лазерного импульса

параметр $s_m = 0$, т. е. эффект коллапса и возрождения фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута отсутствует при любом χ . С ростом Q (при $5.9 < Q < 14$ мДж/см²) величина s_m увеличивается, что свидетельствует о нарастании эффекта коллапса и возрождения осцилляций. При $Q \approx 14$ мДж/см² параметр $s_m(Q)$ достигает максимума. Причиной уменьшения $s_m(Q)$ при $Q > 14$ мДж/см² является быстрый рост первого минимума $A(\tau_1)$ (ситуация аналогична переходу от кривой 3 к кривой 4 на рис. 2).

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Эффект коллапса и возрождения фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута возможен при максимальной плотности энергии возбуждающего лазерного импульса $Q > 5.9$ мДж/см² (см. рис. 7). При этом параметр поперечной неоднородности χ должен превышать критическое значение $\chi_1(Q)$ (см. рис. 6). Наиболее сильно эффект проявляется при $Q \approx 14$ мДж/см², $\chi \approx 0.9$ (см. рис. 6, 7), когда параметр $s(Q, \chi)$ максимален. При $\chi > 2$ эффект коллапса и возрождения фотоиндуцированных осцилляций выражен менее сильно (см. рис. 5),

поскольку большая часть зондируемого участка поверхности висмута слабо возбуждена. Причиной эффекта коллапса и возрождения фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута является поперечная пространственная неоднородность фотовозбуждения электронов вблизи поверхности и зависимость частоты фотоиндуцированных когерентных фононов от концентрации фотовозбужденных электронов.

Работа выполнена в рамках задания Министерства образования и науки РФ (№ 3.175.2014К от 18 июля 2014 г.).

ЛИТЕРАТУРА

1. H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
2. А. Л. Семенов, *ФТТ* **53**, 11, 2222 (2011).
3. А. Л. Семенов, *ЖЭТФ* **144**, 104 (2013).
4. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067401 (2002).
5. О. В. Мисочко, М. В. Лебедев, *ЖЭТФ* **136**, 931 (2009).
6. О. В. Мисочко, М. В. Лебедев, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 148 (2009).
7. А. А. Мельников, О. В. Мисочко, В. О. Компанец, А. Л. Добряков, С. В. Чекалин, *ЖЭТФ* **138**, 486 (2010).
8. O. V. Misochko, Muneaki Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 197401 (2004).
9. О. В. Мисочко, *ЖЭТФ* **145**, 262 (2014).
10. O. V. Misochko, M. V. Lebedev, and E. V. Lebedeva, *Phys. Rev. B* **90**, 014301 (2014).
11. М. Б. Виноградова, О. В. Руденко, А. П. Сухорук, *Теория волн*, Наука, Москва (1990).
12. Л. А. Фальковский, *УФН* **94**, 3 (1968).
13. С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, *УФН* **147**, 675 (1985).
14. E. D. Murray, D. M. Fritz, J. K. Wahlstrand, S. Fahy, and D. A. Reis, *Phys. Rev. B* **72**, 060301(R) (2005).
15. J. C. G. de Sande, M. S. Balmaseda, and J. M. G. Perez, *Phys. Rev. B* **50**, 1861 (1994).
16. M. Hase, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 109702 (2004).