

Интерференция Фано со знакопеременным параметром асимметрии во времяразрешенных экспериментах

О. В. Мисочко¹⁾, М. Хасе⁺²⁾, К. Ишиока⁺²⁾, М. Китажима⁺²⁾

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

⁺National Institute for Materials Science 305-0047 Tsukuba, Japan

Поступила в редакцию 5 августа 2005 г.

Обнаружено, что времяразрешенный сигнал отражения, возникающий после возбуждения сверхкоротким лазерным импульсом монокристалла висмута, находящегося при гелиевой температуре, демонстрирует интерференцию Фано при взаимодействии решеточных и зарядовых степеней свободы. Это проявляется в характерной форме спектральной линии Фурье преобразованного сигнала, параметр асимметрии которой является периодической функцией времени задержки τ между возбуждающим и зондирующим импульсами. Наиболее интересным является факт смены знака параметра асимметрии в зависимости от τ , что свидетельствует о нарушении симметрии обращения времени. Обсуждаются различные причины наблюдаемого впервые эффекта.

PACS: 42.25.Kb, 63.20.-e, 78.47.+p

Интерференция Фано является одной из парадигм современной физики, позволяющей исследовать внутреннюю структуру квантовых объектов. В своей основополагающей работе [1], которая является одной из наиболее часто цитируемых в физике статей, Фано, рассмотрев многочастичную задачу взаимодействия состояний континуума с дискретным уровнем, показал, что в этом случае возможна интерференция, приводящая к искажению исходных спектральных характеристик как дискретного уровня, так и континуума. Эта интерференция наблюдается во всех видах спектроскопии, изучающих возбуждения различной природы [2], и проявляется в характерно асимметричном профиле спектральной линии, возникающем при перекрытии дискретных и сплошных спектров и свидетельствующем об их взаимодействии. Формализм Фано позволяет полностью описать это взаимодействие при помощи ограниченного числа (всего лишь трех) величин [1]. Поскольку модель Фано хорошо известна, позволим себе лишь бегло охарактеризовать ее. Рассмотрим систему, состоящую из перекрывающихся континуума и дискретного уровня, см. рис.1. Вероятность перехода (пропорциональная сечению поглощения или рассеяния) из произвольного начального в конечное состояние имеет в этом случае характерную зависимость, которая для дискретного уровня ε может быть записана как

$$I(\varepsilon) = (\varepsilon + q)^2 / (1 + \varepsilon^2), \quad (1)$$

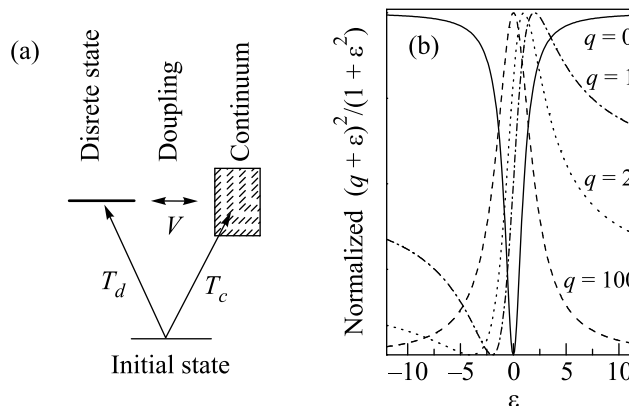


Рис.1. (а) Энергетическая схема, схематично представляющая интерференцию Фано. (б) Нормированная интенсивность в зависимости от энергии для нескольких положительных значений параметра асимметрии q . Кривые для отрицательных значений q получаются инвертированием оси абсцисс

где ε – безразмерная энергия перехода дискретного спектра в единицах величины затухания Γ , а q – величина, пропорциональная отношению амплитуд переходов между состояниями дискретного спектра T_d и состояниями сплошного спектра T_c . Последняя называется параметром асимметрии Фано, поскольку именно этой переменной q контролируется форма результирующей спектральной линии $I(\varepsilon)$ в зависимости от силы взаимодействия V . Если возбуждение континуума отсутствует ($T_d = 0$, $|q| \rightarrow \infty$), то спектральная линия имеет симметричную (лоренцевскую) форму с полушириной, обусловленной време-

¹⁾e-mail: misochko@issp.ac.ru

²⁾M. Hase, K. Ishioka, M. Kitajima.

нем жизни дискретного уровня Γ^{-1} . Если отсутствует возбуждение дискретного уровня ($T_c = 0$, $q = 0$), в спектре наблюдается симметричный провал (антирезонанс). Когда обе амплитуды отличны от нуля, в результате конструктивной и деструктивной интерференции для энергий, больших и меньших энергии дискретного состояния, соответственно, возникает асимметричная спектральная линия с антирезонансом при $\varepsilon = -q$. Очевидно, что изменить позицию антирезонанса можно только изменением знака параметра асимметрии q . В основополагающей работе Фано q – действительное число, что обусловлено тем, что амплитуды T_d и T_c , определяющие q , считались вещественными (последнее определяется использованием стоячих, вместо бегущих, волн [2]). Однако эксперименты на квантовой точке, помещенной в одно из плеч интерферометра Ааронова–Бома [3], свидетельствуют, что подобное предположение справедливо только для систем с симметрией обращения времени. В случае нарушенной симметрии обращения времени амплитуды T_d и T_c являются комплексными и, как результат этого, знак (и величину) q можно контролировать внешним воздействием [3, 4]. До недавнего времени интерференция Фано изучалась только в стационарных условиях (спектральная область) [2], но растущий интерес к изучению отклика конденсированных сред на воздействие сверхкороткого лазерного импульса позволил проводить исследования и во временной области. В частности, доступ к сверхбыстрой динамике решетки, обеспеченный наблюдением когерентных фононов, которые проявляются как осцилляции отражения [5], показал, что интерференция Фано существует и может быть исследована во временном диапазоне [6]. Эта квантовая интерференция проявляется в асимметрии спектральной линии фонона, полученной фурье-преобразованием осциллирующего во времени сигнала, и указывает на когерентное взаимодействие решеточных и зарядовых степеней свободы во время разрешенных экспериментах. Более того, использование импульсов длительностью 10 фс, позволило недавно наблюдать [7] рождение фононов и эволюцию электрон-фононного взаимодействия, ответственного за интерференцию Фано, в реальном времени. В данной работе мы сконцентрируем свое внимание на динамике взаимодействия носителей заряда и фононов, определяющей распад возбужденного сверхкоротким лазерным импульсом состояния кристалла висмута при гелиевой температуре, в условиях коллапса и возрождения когерентных фононов [8].

Изучение оптического отклика монокристалла Вi проводилось для плоскости, перпендикулярной три-

гональной оси (0001). Все измерения когерентных фононов произведены с использованием сверхкоротких световых импульсов с большой энергией при $T = 7$ К. Для этого излучение лазера на титанате сапфира ($\lambda = 800$ нм) преобразовывалось регенеративным твердотельным усилителем, на выходе которого импульсы имели длительность $\Delta t \leq 140$ фс, следуя с частотой повторения $\nu = 100$ кГц. Возбуждающий и зондирующий лазерные пучки фокусировались на поверхность кристалла линзой с фокусным расстоянием $f = 10$ см, а соотношение между их интенсивностями поддерживалось равным 20:1. При этом поляризации возбуждающего и зондирующего импульсов были ортогональны между собой и параллельны бинарной и биссекторной осям кристалла, соответственно. Канал возбуждения модулировался оптическим прерывателем с частотой 2 кГц, а регистрация разностного отражения в зависимости от времени τ между накачкой и зондированием, создаваемой линией задержки, осуществлялась при помощи синхронного детектирования сигналов, регистрируемых кремниевым $p-i-n$ фотодиодом.

На рис.2а показан разрешенный во времени оптический отклик монокристалла висмута при гелиевой температуре, наблюдаемый при возбуждении когерентных фононов в режиме коллапса и возрождения [8]. Общий вид отклика свидетельствует о том, что возбужденный кристалл релаксирует к равновесному состоянию за времена порядка десятка пикосекунд и на эту релаксацию наложены быстрые осцилляции, демонстрирующие эффект коллапса-возрождения на временах $\tau \approx 7-8$ пс, см. вставку на рис.2б. Разложение сигнала на осциллирующую (решеточную) и монотонно затухающую (электронную) компоненты, см. рис.2б, с последующим фурье-анализом первой из них, позволило установить, что осцилляции в режиме коллапса и возрождения порождаются полностью симметричным (A_{1g}), дважды вырожденным (E_g) когерентными фононами, и их разностной комбинацией ($A_{1g} - E_g$). В спектре, показанном на рис.3, существуют две особенности, первая из которых это двухкомпонентная структура полностью симметричного фонона с долгоживущей компонентой, свидетельствующей о наличии квантовой (фрелиховской) конденсации [9]. Второй особенностью спектра является сильно асимметричная форма линии дважды вырожденного (E_g) когерентного фонона, которая напоминает собой, скорее, дисперсионную кривую, чем лоренцевский профиль. Для выяснения причин столь необычного вида спектральной линии мы проанализировали зависимость спектра от размеров и положения временного окна, используе-

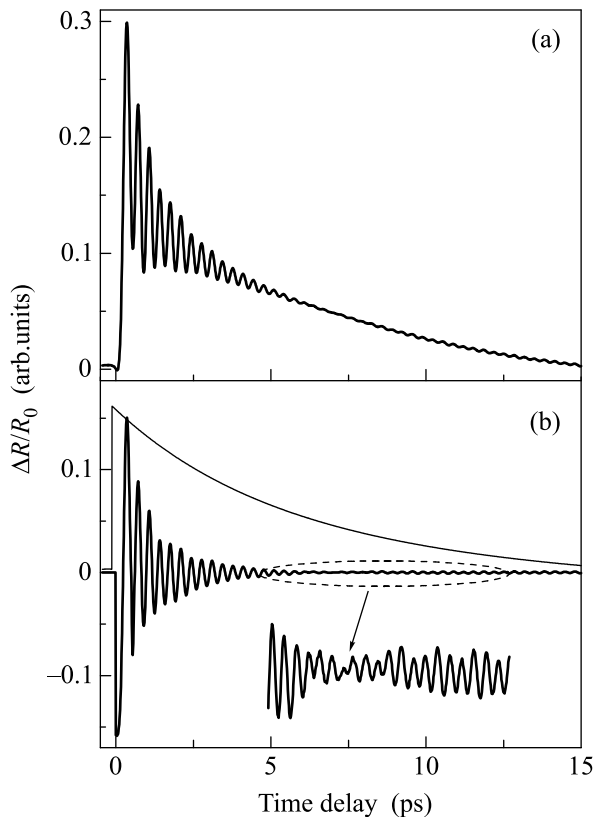


Рис. 2. (а) Разрешенное во времени нормированное дифференциальное отражение $\Delta R/R_0$ монокристалла Вi. Параметры эксперимента: $T = 7$ К, $F = 9$ мДж/см². (б) Разложение сигнала (а) на осциллирующую и не осциллирующие части. На вставке в увеличенном масштабе показана часть сигнала, демонстрирующего коллапс и возрождение колебаний

мого при фурье-преобразовании. Поскольку основной вклад в фурье-образ дают осцилляции с большой амплитудой, расположенные вблизи нижнего предела временного окна, изменение последнего дает нечто подобное временной зависимости спектра. Проведенный анализ показал, что вид спектральной линии существенно зависит от нижнего предела временного окна, причем это справедливо для всех трех, наблюдаемых в спектре, A_{1g} , E_g , и $A_{1g}-E_g$ компонент. В данной работе мы сосредоточимся на анализе только E_g фонона, оставив детальное описание поведения полностью симметричной и разностных мод на будущее. Зависимость формы линии E_g фонона от нижнего предела временного окна иллюстрируется рис. 4, из которого следует, что сдвиг позиции временного окна существенно меняет форму линии E_g фонона: от чисто лоренцевского пика до симметричного спектрального провала, между которыми возникают асимметричные профили с провалами на низ-

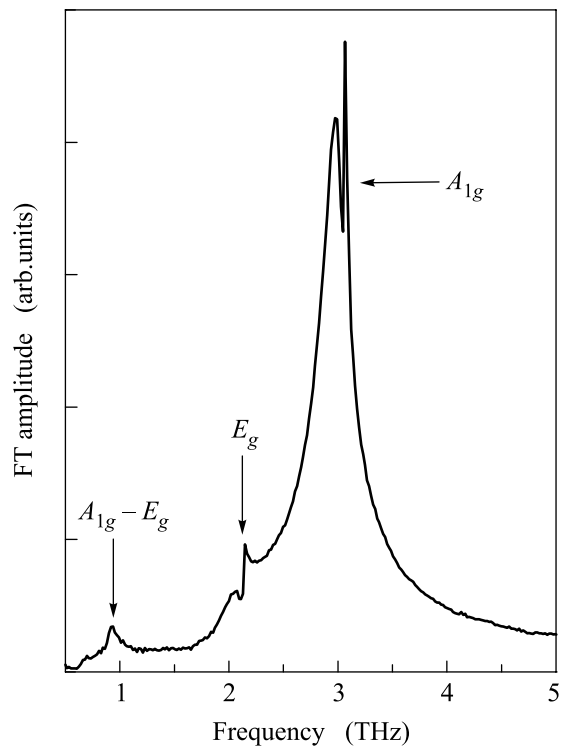


Рис. 3. Фурье-спектр осциллирующей части отраженного сигнала

кочастотном и высокочастотном крыльях линии. Такое изменение формы линии E_g фонона является периодическим во времени и повторяется с периодом, приблизительно равным периоду разностной фононной моды ($A_{1g}-E_g$). При сдвиге временного окна за пределы времени коллапса линия фонона остается асимметричной с более крутым высокочастотным крылом, однако осциллирующий характер асимметрии исчезает. Подгонка линии формулой (1) свидетельствует, что параметр асимметрии положителен для спектров, приведенных на рис. 4 и с, тогда как для спектров 4b и d он отрицателен. Отметим, что это следует и без всякой математической подгонки из позиции антирезонанса, определяемого условием $q = -\varepsilon$. Знакопеременный и осциллирующий характеры параметра Фано однозначно свидетельствуют: q является комплексным числом, что обусловлено временной зависимостью нуля и полюса амплитуд рассеяния.

Контролируемое изменение формы спектральной линии, включающее эффект переброса провала антирезонанса, хорошо известно и широко используется в активной поляризационной нелинейной спектроскопии [10]. Хотя физика эффекта, сводящаяся к интерференции электронного континуума и дискретного (фононного) уровня, во многом идентична в частот-

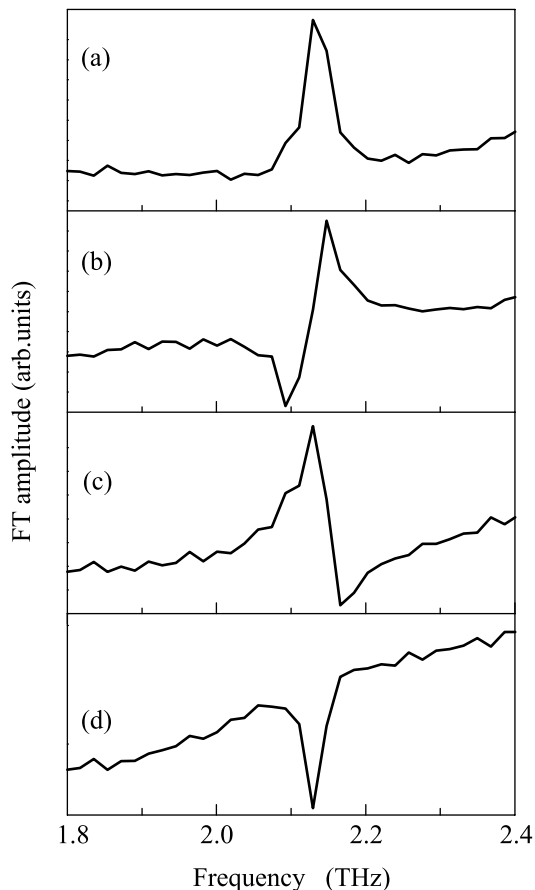


Рис.4. Спектр E_g фонона в монокристалле Bi при варьировании начальной позиции временного окна, используемого для фурье-преобразования. Начальная позиция окна изменялась в пределах 1 пс при общей ширине окна порядка 25 пс

ной и временной областях, тем не менее, существуют и весьма значительные различия. В активной спектроскопии смена спектральной позиции антирезонанса достигается варьированием ориентации поляризационного анализатора в канале регистрации и, тем самым, выбором взаимодействующих компонент тензоров, отвечающих за дискретный уровень и континуум. При этом знак параметра асимметрии определяется соотношением знаков тензорных компонент. Другими словами, знак q в этом случае диктуется симметричными соображениями, так же как и в работах [3, 4]. В наших же экспериментах условия детектирования остаются неизменными, а смена знака параметра Фано определяется исключительно динамикой исследуемой системы, что, по видимому, является первым наблюдением в своем роде.

Прежде всего, рассмотрим, каким образом формально возможно изменение знака параметра асимметрии. Метод накачка-зондирование представляет

собой времяразрешенный аналог когерентного антистоксового/стоксового вынужденного комбинационного рассеяния, являющегося одним из видов активной нелинейной спектроскопии. В этом случае генерация когерентных возбуждений определяется квадратом нелинейной восприимчивости кристалла, индуцированной мощным импульсом накачки. В отличие от спонтанного комбинационного рассеяния, в котором стоксов и антистоксов каналы являются независимыми, что является следствием симметрии по отношению к обращению времени и причиной реализации принципа детального равновесия, в нашем эксперименте эти каналы скоррелированы и антистоксово рассеяние существует даже при абсолютном нуле температур, нарушая тем самым принцип детального равновесия. Более того, спонтанное рассеяние идет через один промежуточный (виртуальный) уровень, а стимулированное рассеяние происходит с участием двух промежуточных уровней [10], и, как следствие этого, в стимулированном процессе возможен резонанс между фононом и электронным континуумом, определяемым разностью промежуточных уровней (волновое смешивание, ответственное за процесс, возможно даже в отсутствие комбинационного фононного резонанса [10]). Таким образом, при воздействии сверхкоротких световых импульсов возбуждаются как решеточные, так и электронные состояния, что ведет к тому, что возбуждение кристалла носит смешанный характер, а нестационарный когерентный эффект возникает вследствие того, что кристалл сохраняет в течение некоторого времени определенную фазу между электронным и решеточным возбуждением. Это можно схематически проиллюстрировать упрощенной диаграммой, приведенной на рис.5, из которой следует, что изменить знак параметра Фано можно либо изменив свойства электронного континуума, либо модифицировав свойства решеточной моды. Другими словами, производя замену $\chi(\Omega) \rightarrow \chi(-\Omega) \equiv -\chi(\Omega)$ для дискретного уровня или континуума, можно добиться желаемого изменения знака параметра асимметрии.

В экспериментах [3] смена знака параметра асимметрии трактуется как то, что q является комплексным числом, и связывается с нарушением симметрии по отношению к обращению времени. В этом случае, следуя формализму, развитому для комбинационного рассеяния света [11], мы можем переписать формулу (1) в следующем виде:

$$I(\varepsilon) = \frac{|\varepsilon + q|^2}{1 + \varepsilon^2} = \frac{[(\varepsilon + \operatorname{Re} q)^2 + (\operatorname{Im} q)^2]}{1 + \varepsilon^2} = 1 + \frac{[(\operatorname{Re} q)^2 + (\operatorname{Im} q)^2]}{1 + \varepsilon^2} + \frac{2\varepsilon \operatorname{Re} q - 1}{1 + \varepsilon^2}. \quad (2)$$

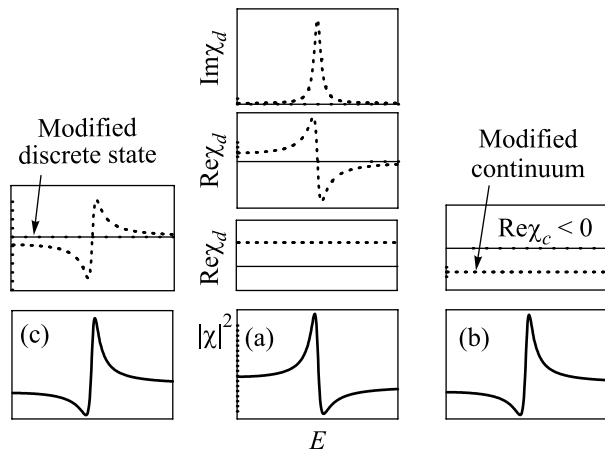


Рис. 5. (а) Схематичное представление интерференции между комбинационно активным дискретным состоянием, описываемым действительной и мнимой частями восприимчивости χ_d , и континуумом, представленным действительной частью восприимчивости χ_c . (б) Результат замены $\chi_d(\Omega) \rightarrow \chi_d(-\Omega)$. (с) Результат замены $\chi_c(\Omega) \rightarrow \chi_c(-\Omega)$

Здесь второй член описывает часть дискретного возбуждения, не подверженного интерференции (мнимая часть восприимчивости), а последний – интерференционный член, определяется действительными частями восприимчивости континуума и дискретного уровня. Формула (2) описывает асимметричный и симметричный профили для $\text{Re}q \gg \text{Im}q$ и $\text{Re}q \ll \text{Im}q$, соответственно, и перебрасывает позицию антирезонанса при смене знака действительной части.

Связь смены знака параметра Фано с нарушением симметрии по отношению к обращению времени физически означает, что в эксперименте существуют внешние или внутренние поля с аксиальной симметрией (например, магнитные поля). При этом симметрия системы понижается от шубниковской группы типа II до шубниковской группы типа I, что математически эквивалентно отсутствию операции комплексного сопряжения (поворота спина). Можно бы было предположить, что и в случае фрелиховского конденсата [9] возникают некие внутренние поля, ответственные за нарушенную симметрию, но более естественно искать такую интерпретацию эксперимента, которая избегала бы столь далеко идущих выводов, и мы постараемся показать, что это возможно.

Нарушение симметрии к обращению времени микроскопически может быть обусловлено наличием диссипации в системе, изменением типа носителей или типа процесса, ответственного за детектируемый сигнал. С достаточно большой степенью уверенности

в наших экспериментах мы можем исключить диссипацию как причину знакопеременного характера параметра Фано, что обусловлено периодическим (осциллирующим) характером наблюдаемого явления. Две другие причины, замена электрона на дырку (последняя представляет собой электрон,двигающийся назад во времени) и смена канала рассеяния (то есть замена явления на “антиявление”), заслуживают более детального рассмотрения. Действительно, из исследований комбинационного рассеяния света в полупроводниках известно, что при смене типа носителей знак параметра асимметрии фоновой линии меняется на противоположный [11]. Зонная структура висмута характеризуется наличием электронных и дырочных карманов на границе зоны Бриллюэна [12], поэтому можно предположить, что при значительном увеличении межатомного расстояния, вызванном большой амплитудой фонона, решетка взаимодействует преимущественно с одним типом носителей тока, тогда как при межатомном сближении взаимодействие происходит с другим типом носителей. Нельзя исключать и возможность диэлектрического перехода, вызванного большими смещениями атомов, участвующих в формировании когерентных фононов. При этом в полуметалле дно зоны проводимости, двигаясь вверх, может выйти из области перекрытия зон, в результате чего электроны стекают в валентную зону, а зона проводимости остается пустой. Отметим, что замена электрона на дырку эквивалентна изменению действительной части восприимчивости континуума, показанного на рис. 5b.

Второй возможной причиной знакопеременного (комплексного) характера параметра Фано является смена канала рассеяния в зависимости от времени задержки. Чтобы понять это, следует обратить внимание на то, что в наших экспериментах импульс зондирующего света взаимодействует с подготовленной импульсом накачки когерентной средой. Такое параметрическое взаимодействие между волнами различной природы является ни чем иным, как фазозависимым комбинационным рассеянием света [13], в котором происходит усиление (или ослабление) стоксовых и антистоксовых компонент зонда в зависимости от фазовых соотношений между возбуждениями материальной среды и электромагнитного поля. Действительно, при помощи метода накачка-зондирование, дополненного спектральным анализом зондирующего импульса, было обнаружено [13], что спектр зонда (так же как и его интегральная интенсивность) является функцией временной задержки, то есть стоксовы и антистоксовы компоненты зонда

попеременно усиливаются и ослабляются. Периодическое изменение величины и знака параметра асимметрии может быть обусловлено именно этим чередованием стоксовых и антистоксовых каналов рассеяния (напомним, что для спонтанного рассеяния стоксов процесс является обращенным во времени антистоксовым процессом). Изменение канала рассеяния для комбинационно активного фононного уровня, происходящее при преобразовании $\text{Re } \chi(\Omega) \rightarrow \text{Re } \chi(-\Omega) \equiv -\text{Re } \chi(\Omega)$, обусловлено сменой знака аргумента восприимчивости (отметим, что мнимая часть восприимчивости, являющаяся четной функцией частоты, остается неизменной).

Механизм возникновения комплексного параметра асимметрии при этом заключается в следующем. Импульс накачки возбуждает посредством нестационарного стимулированного комбинационного рассеяния света фононы и электроны, частоты которых находятся в интервале, ограниченном спектральной шириной лазерного импульса. В висмуте энергии оптических фононов перекрываются с электронами межзонными переходами [12], которые могут быть ответственны за возникновение электронного континуума, а большая плотность возбуждения делает возможным взаимодействие между A_{1g} и E_g фононами через электронный континуум. При этом взаимодействии каждого из фононов с континуумом ведет к изменению фазовых свойств последнего, в результате чего параметр асимметрии E_g фонона становится функцией разности фаз фононного уровня и континуума. Очевидно, что осцилляции q отслеживают взаимодействие обоих фононов с континуумом и происходят с частотой разностной фононной моды.

Таким образом, методом накачка-зондирование фемтосекундными импульсами большой энергии в кристаллах висмута при гелиевой температуре обнаружена фано-интерференция со знакопеременным (комплексным) параметром асимметрии q . Комплексный характер параметра Фано свидетельствует о нарушении симметрии обращения времени в нелинейном режиме коллапса-возрождения когерентных фононов и обусловлен, либо сменой типа носителей, с

которыми взаимодействует решетка, либо чередованием преимущественного канала рассеяния (от стоксова к антистоксову) для различных временных задержек. На данном этапе исследований трудно отдать предпочтение одному из механизмов, хотя авторам представляется, что смена каналов рассеяния является более реалистичной причиной.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 04-02-97204) и совместного гранта (# 05-02-19910-ЯФ) РФФИ-Японское общество продвижения науки (JSPS).

1. U. Fano, Phys. Rev. **124**, 1866 (1961).
2. A. R. P. Rau, Physica Scripta **69**, C10 (2004).
3. K. Kobayashi, H. Aikawa, S. Katsumoto, and Y. Iye, Phys. Rev. Lett. **88**, 256806 (2002).
4. J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori et al., Nature **390**, 589 (1997).
5. T. Dekorsy, G. C. Cho, and H. Kurz, in *Light Scattering in Solids VIII*, Eds. M. Cardona and G. Güntherodt, Springer-Verlag, Berlin, 2000, p. 169.
6. O. V. Misochko, K. Kisoda K. Sakai, and S. Nakashima, Phys. Rev. B **61**, 4305 (2000).
7. M. Hase, M. Kitajima, A. M. Constantinescu, and H. Petek, Nature **426**, 51 (2003).
8. О. В. Мисочко, М. Хасе, М. Китажима, Письма в ЖЭТФ **78**, 85 (2003).
9. O. V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, Physics Letters A **321**, 381 (2004).
10. Г. Форт, *Рассеяние света в твердых телах II*, под редакцией М. Кардоны и Г. Гюнтеродта, М.: Мир, 1984, стр. 275.
11. Г. Абстрейтер, М. Кардона, А. Пинчук, *Рассеяние света в твердых телах IV*, под редакцией М. Кардоны и Г. Гюнтеродта, М.: Мир, 1986, стр. 12.
12. M. S. Dresselhaus, *The Physics of Semimetals and Narrow-Gap Semiconductors*, Eds. D. L. Carter and R. T. Bate, Pergamon, Oxford, 1973, p. 3.
13. O. V. Misochko, M. Hase, and M. Kitajima, J. of Physics: Condensed Matter **16**, 1879 (2004).