

Фононное автоэхо в монокристаллах висмута и сурьмы

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

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

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

Поступила в редакцию 20 июня 2003 г.

Обнаружено фононное автоэхо при накачке полуметаллов Bi и Sb сверхкороткими лазерными импульсами большой энергии. Автоэхо проявляется как возрождение осцилляций отражения, порождаемых A_{1g} когерентным фононом, после их полного исчезновения. Явление фононного автоэха является неопровержимым свидетельством неклассичности состояния кристаллической решетки, реализуемого в экспериментах типа накачка–зондирование фемтосекундными лазерными импульсами.

PACS: 63.20.–e, 78.47.+p

В последнее десятилетие возник большой интерес к изучению отклика конденсированных сред на воздействие сверхкороткого лазерного импульса, в котором энергия сконцентрирована в малом временном, пространственном и спектральном диапазоне. Это во многом обусловлено успехом лазерной технологии, позволившим сократить длительность лазерного импульса до субпикосекундного диапазона и тем самым открывшим путь изучения динамики решетки в реальном времени. Доступ к сверхбыстрой динамике решетки был обеспечен наблюдением когерентных фононов, которые проявляются как осцилляции отражения (или пропускания) света после воздействия на кристалл сверхкороткого лазерного импульса [1]. Реализация стабильной фазы, которая служит основанием для того, чтобы называть фононы когерентными, становится возможной, поскольку длительность возбуждающего импульса Δt меньше обратной частоты фононной моды Ω^{-1} , $\Delta t < \Omega^{-1}$. Период осцилляций когерентных фононов, как правило, совпадает с обратной частотой комбинационно-активных фононов среды, что позволяет ассоциировать механизм их генерации с явлением вынужденного комбинационного рассеяния [1, 2]. Большинство экспериментов типа накачка–зондирование было реализовано с использованием импульсов малой энергии, так что изменение отражения не превышало 10^{-4} – 10^{-5} . Однако в последние годы наметилась тенденция к исследованию фотоиндуцированного отклика при помощи импульсов с большой энергией [3–5]. Эти эксперименты выявили интересную особенность осцилляций: при росте плотности энергии возбуждающего импульса ам-

плитуда осцилляций увеличивается нелинейным образом, обнаруживая тенденцию к насыщению, тогда как время затухания резко уменьшается. Попытки объяснить эту особенность в рамках модели энергетической релаксации классического осциллятора не увенчались успехом [6]. Для того чтобы выяснить, какие процессы ответственны за затухание осцилляций, и тем самым прояснить природу когерентного фонона, мы провели времяразрешенные исследования с использованием импульсов большой энергии, возбуждая когерентные фононы при низких (гелиевых) температурах.

Измерения релаксационной динамики решетки проводились с использованием лазерных импульсов с большой энергией. Для этого излучение лазера на титанате сапфира ($\lambda = 800$ нм) преобразовывалось регенеративным твердотельным усилителем, на выходе которого импульсы имели энергию 5 нДж и длительность 150 фс, следуя с частотой повторения, равной 100 кГц. Поляризации возбуждающего и зондирующего импульсов были ортогональны, а изучение оптического отклика проводилось для плоскости, перпендикулярной тригональной оси монокристаллов Bi и Sb. Кристаллы помещались в оптический гелиевый криостат, что позволяло проводить измерения при температуре 10 К. Соотношение между интенсивностями возбуждающего и зондирующего импульсов поддерживалось равным 10:1. Возбуждающий и зондирующий лазерные пучки фокусировались на поверхность образца линзой с фокусным расстоянием 10 см. Канал возбуждения модулировался оптическим прерывателем с частотой 2 кГц, а детектирование осуществлялось при помощи синхронного детектирования сигналов, регистрируемых фотодиодами. В эксперименте измерялось

¹⁾e-mail: misochko@issp.ac.ru

²⁾M. Hase, M. Kitajima.

нормированное разностное отражение возбужденного и невозбужденного кристалла

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

как функция времени t между накачкой и зондированием. Длительность возбуждающего импульса определялась из функции автокорреляции, измеряемой с использованием нелинейного кристалла.

На рис.1 показан типичный оптический отклик, наблюдаемый при возбуждении с последующим зондированием монокристалла висмута фемто-

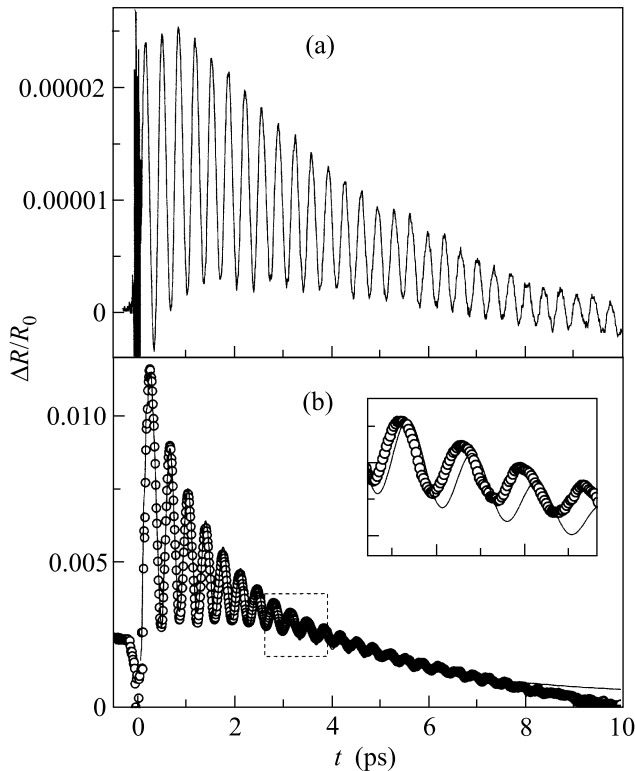


Рис.1. Разрешенное во времени нормированное дифференциальное отражение $\Delta R/R_0$ монокристалла Вi, полученное при комнатной температуре и плотности энергии лазерного импульса 0.5 мкДж/см^2 (а) и 5 мДж/см^2 (б). На вставке показаны увеличенные осцилляции при больших временных задержках и результат подгонки с использованием формулы (2)

секундными импульсами с различной энергией. Разница в плотности энергии, при которой были получены осцилляции, приведенные на верхней и нижней панелях рис.1, составляет три порядка величины. В обоих случаях возбужденное электронное состояние системы релаксирует к равновесному состоянию за времена порядка пикосекунд и на эту электронную релаксацию наложены быстрые осцилляции, порождаемые полностью симметричным

когерентным фононом [1–4]. Отличиями являются величина фотоиндуцированного сигнала и соотношение между осциллирующей и неосциллирующей компонентами сигнала. Кроме этого, частота осцилляций, которая в случае импульсов с малой энергией не зависит от энергии импульса накачки и совпадает с частотой тепловых фононов, наблюдаемых посредством спонтанного комбинационного рассеяния света, демонстрирует, для случая интенсивной накачки, зависимость от плотности энергии импульса [4, 5]. Сдвиг частоты осцилляций в красную область спектра с ростом энергии возбуждения был связан с ангармоничностью потенциала, которая возрастает с ростом амплитуды осцилляций [5].

Попытка подогнать релаксационный отклик функцией

$$\Delta R/R_0 = A_e \exp(-t/\tau_e) + A_p \exp(-t/\tau_p) \sin(\Omega t - \varphi) \quad (2)$$

приводит к удовлетворительному результату лишь для случая импульсов с малой энергией. Для импульсов с большой энергией данная функция хорошо работает только для малых времен задержки, тогда как для больших времен подгоночная функция и экспериментальные данные не совпадают (см. вставку на рис.1b). Это свидетельствует об изменении частоты со временем, которое может быть в первом приближении аппроксимировано линейным чирпом $\Omega = \Omega_0 + at$. Фононы, мгновенная частота которых является функцией времени, уместно назвать чирпованными. Проявлением чирпа в фурье-преобразованном сигнале можно считать асимметрию фононной линии, см. рис.2. Проведенный анализ Фурье преобразованных сигналов для малых и больших времен задержки свидетельствует о неэкспоненциальном затухании осцилляций (полуширина фононного пика является функцией времени задержки). Это является указанием на немарковский характер процесса, в котором фазовая “память” играет существенную роль.

Если в случае импульсов малой интенсивности понижение температуры ведет к незначительному изменению частоты осцилляций, которая примерно совпадает со сдвигом частоты тепловых фононов, измеряемых при помощи спонтанного комбинационного рассеяния света [7], то в случае импульсов большой интенсивности характер релаксационного отклика меняется кардинально. Поскольку нас интересует только динамика кристаллической решетки, уместно избавиться от неосциллирующего электронного отклика, для чего достаточно продифференцировать сигнал. Как видно из рис.3, при низкой температу-

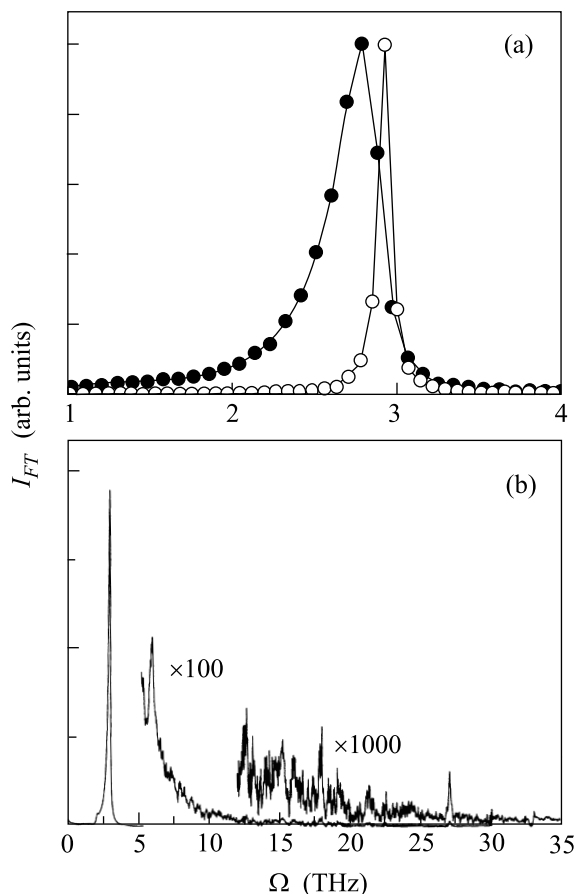


Рис.2. (а) Нормированные фурье-образы осцилляций монокристалла Вi для импульсов с большой (черные символы) и малой (светлые символы) плотностью энергии. (б) Фурье-образ осцилляций в монокристалле Вi для импульсов с большой плотностью энергии, демонстрирующий наличие высших гармоник

ре осцилляции вначале затухают, достигая некоторого минимального значения, которое в дальнейшем мы будем называть коллапсом осцилляций. Однако после коллапса, время возникновения которого зависит от плотности энергии возбуждающего импульса, осцилляции демонстрируют возрождение. Явление коллапса и возрождения осцилляций проявляется как фононное автоэхо [8]. Это название оправдано тем, что сравнение фаз осцилляций до и после коллапса свидетельствует об их сдвиге на π . В терминологии Авербуха и Перельмана [9] обнаруженное возрождение является дробным возрождением порядка $1/2$, и представляет собой обращенный во времени процесс затухания осцилляций до момента коллапса. Следует особо подчеркнуть отличие фононного автоэха от фотонного или спинового эха [10]. В последних явлениях эхо индуцируется вторым импульсом, роль которого сводится к возбуждению колебаний в ангар-

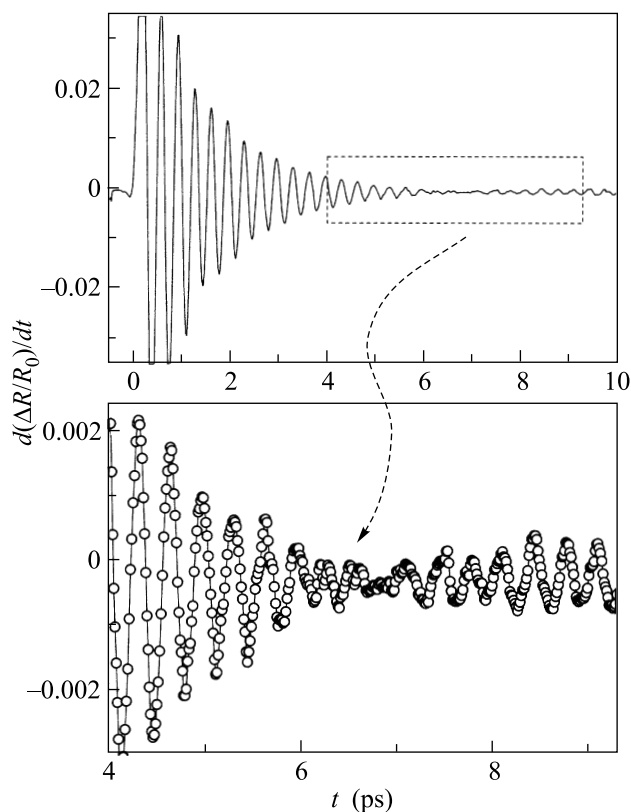


Рис.3. Осцилляции отражения монокристалла Вi при температуре $T = 10$ К и плотности энергии лазерного импульса 9 мДж/см^2

моническом потенциале, фазы которых развиваются со временем в противоположную сторону.

Сравнение фурье-преобразованных сигналов для времен до и после коллапса показывает, что основной вклад в осцилляции дает полностью симметричный фон. Тем не менее, частота этого фона сдвинута для малых времен задержки в красную область спектра, а его чирп, пропорциональный асимметрии фононной линии, больше для малых времен задержки, чем для больших времен. Следует также отметить, что время реализации коллапса является достаточно сильной функцией интенсивности лазерного импульса, то есть для импульсов одинаковой мощности с различной длительностью коллапс возникает раньше при меньшей длительности лазерного импульса. Чтобы получить более полную информацию о фононном автоэхе в полуметаллах, были проведены подобные описанным выше эксперименты для монокристалла сурьмы. Так как при используемой длительности лазерного импульса ($\Delta t = 150$ фс) условие эффективно возбуждения когерентных фононов ($2\Omega \geq \Delta t^{-1}$) для полностью симметричной моды Sb едва выполняется, амплитуда когерентных осцилляций оказывает-

ся меньшей, чем для случая Bi , и в релаксационном сигнале доминирует неосциллирующий вклад. Тем не менее, из данных рис.3 следует, что, по крайней мере, для малых времен задержки между накачкой и зондированием осцилляции надежно детектируются. Доказательством этого является тот факт, что фурье-образ, приведенный на рис.4, содержит спектральный пик на частоте полносимметричного фоно-

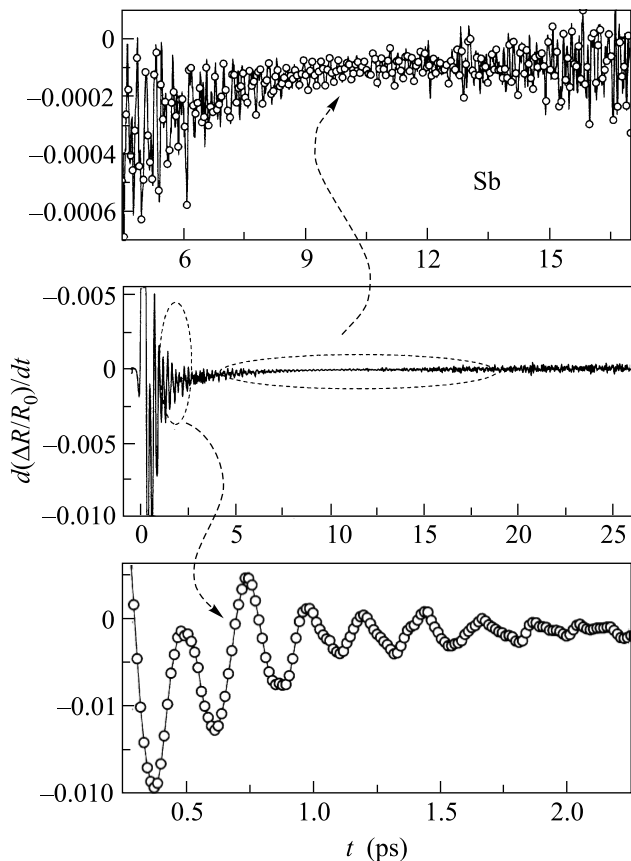


Рис.4. Осцилляции отражения монокристалла Sb при температуре $T = 10 \text{ K}$ и плотности энергии лазерного импульса 12 мДж/см^2

на. Из характера сигнала при разных временах задержки следует, что фононное автоэхо реализуется и для полносимметричных фононов сурьмы.

Явление коллапса и возрождения осцилляций является чисто квантово-механическим эффектом, который не имеет классического аналога [8–11]. Действительно, классический осциллятор, описываемый уравнениями ньютоновской механики, не способен возобновить колебания после достижения положения равновесия. К настоящему времени эффект коллапса и возрождения наблюдался для высоколежащих электронных состояний атома, молекулярных колебаний и атомов в лазерном резонаторе, то есть для возбуж-

дений, носящих одночастичный характер [9]. Недавно явление коллапса и возрождения было зарегистрировано для бозе-конденсированного газа редкоземельных атомов [12]. Попытка объяснить явление коллапса и возрождения когерентных фононов как биения двух связанных классических осцилляторов не может привести к успеху, поскольку в нашем случае основной вклад в осцилляции дает единственная полносимметричная мода в Γ -точке зоны Бриллюэна [2].

Механизм возникновения фононного автоэха в полуметаллах заключается в следующем. Импульс накачки возбуждает посредством стимулированного комбинационного рассеяния света фононы, частоты которых находятся в интервале, ограниченном спектральной шириной лазерного импульса. Поскольку частоты фононов в случае ангармонического потенциала различны, их фазы, совпадающие (синхронизованные) в момент воздействия импульса накачки, со временем “хаотизируются”, что ведет к исчезновению сигнала. Однако так как система сохраняет когерентность (колебания решетки продолжают), через определенный промежуток времени фазы снова совпадают, что проявляется как возрождение сигнала или появление фононного автоэха. Таким образом, очевидно, что осцилляции возникают вследствие индуцированной светом когерентности решетки (установления определенных фазовых соотношений между различными фононными состояниями), а не в результате изменения населенностей фононных мод. Соответственно, время затухания осцилляций, регистрируемых в обычном эксперименте, должно определяться не энергетической релаксацией, которая необратима, а временем расфазировки компонент волнового пакета, образованного суперпозицией стационарных состояний. Именно отсутствие истинной необратимости в системе с дискретным спектром [9, 10] приводит, по истечению некоторого времени, к восстановлению исходного состояния.

Генерация когерентных фононов определяется нелинейной восприимчивостью кристалла, индуцированной мощным импульсом накачки. При воздействии сверхкоротких световых импульсов возбуждаются не только однофононные состояния, что ведет к тому, что возбуждение решетки носит характер волнового пакета, образованного набором стационарных состояний. Действительно, фурье-преобразованный отклик монокристалла висмута, приведенный на рис.2, содержит, наряду с классической (основной) частотой, более высокие гармоники [13]. Волновые пакеты (так же, как и когерентные состояния) находятся на границе между классическим и квантово-

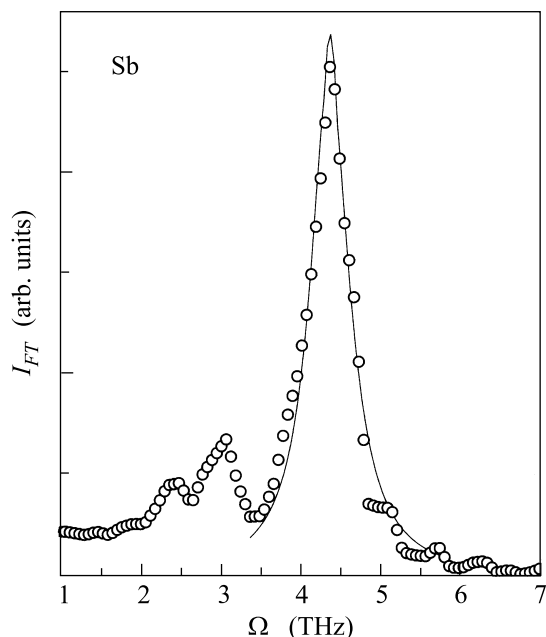


Рис. 5. Фурье-образ осцилляций монокристалла Sb, приведенных на рис. 4

механическим описанием объектов. Локализация, отличительная черта волнового пакета, достигается когерентной суперпозицией многих стационарных состояний с большими квантовыми числами. При этом большое число состояний необходимо, чтобы путем квантовой интерференции отобрать один максимум волновой функции, тогда как большие квантовые числа требуются для того, чтобы выбранный максимум имел малую пространственную протяженность. Хотя волновой пакет и демонстрирует динамическую эволюцию, сходную с эволюцией классического объекта, он, тем не менее, является квантовым объектом и, соответственно, его поведение намного сложнее. Как было показано выше, в случае ангармонического потенциала волновой пакет после того, как он делокализуется, может снова локализоваться. Кроме этого, пространственная и временная протяженность волнового пакета может периодически зависеть от его расположения в фазовом пространстве, что реализуется для так называемых сжатых состояний, которые детектируются для полуметаллов [2, 14, 15]. Все эти особенности волнового пакета обусловлены дискретностью спектра и не имеют аналогов в классической физике. Обнаруженный в работе факт фононного автоэха убедительно свидетельствует, что создаваемое высокоинтенсивными фемтосекундными импульсами состояние не может быть описано в рамках механики Ньютона. Оставляя для будущего исследования выяснение, какому конкрет-

ному классу неклассических состояний принадлежит состояние, реализуемое в полуметаллах сверхкороткими лазерными импульсами, отметим, что, похоже, это состояние удовлетворяет критериям бозе-эйнштейновской конденсации, [16, 17], к числу которых можно отнести когерентность и вырожденный характер основного состояния, зависимость частоты коллективной моды от амплитуды [11], возникновение коллапса и возрождения осцилляций конденсата [11, 12], а также недиагональный дальний порядок.

Следует особо отметить, что наблюдение фононного автоэха не только является убедительным свидетельством квантовой природы состояния, создаваемого сверхкороткими импульсами, но и позволяет понять, почему в большинстве случаев для описания когерентных фононов было достаточно использовать классическую модель. Действительно, в силу того, что при малой энергии лазерных импульсов коллапс осцилляций наступает на временах значительно больших $\tau_c \approx 20$ пс, “пост-классическая” эволюция возбуждения решеточной системы реализуется только для $t > \tau_c$, [9], то есть в том диапазоне времен, в котором отношение сигнал/шум слишком мало для регистрации. Это обусловлено тем, что “пост-классическая” эволюция контролируется ангармонизмом осциллятора $\tau_r = \frac{2}{\Omega} \left(h \left| \frac{\partial \Omega}{\partial E} \right| \right)^{-1}$, (E – энергия осциллятора, h – постоянная Планка), которая слишком мала в случае импульсов малой энергии. На более коротких временах $t < \tau_r$ эволюция возбуждения, согласно принципу соответствия, идентична для квантово-механического и классического описания, так как волновой пакет, составленный из стационарных состояний, осуществляет движение по законам геометрической оптики [9]. Последнее становится возможным в силу того, что пространственный размер волнового пакета намного меньше размера классической траектории.

В заключение можем сказать, что при помощи метода накачка-зондирование фемтосекундными лазерными импульсами большой энергии обнаружено явление фононного автоэха в полуметаллах. Фононное автоэхо, которое реализуется как коллапс и возрождение когерентных фононов, убедительно свидетельствует о неклассической природе состояния кристаллической решетки, реализуемого при воздействии сверхкоротких лазерных импульсов.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 01-02-16480 и # 02-02-17074).

1. R. Merlin, *Solid State Commun.* **102**, 207 (1997).
2. О. В. Мисочко, *ЖЭТФ* **92**, 246 (2001).
3. S. Hunsche, K. Wienecke, T. Dekorsy, and H. Kurz, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1815 (1995).
4. M. F. DeCamp, D. A. Reis, P. H. Bucksbaum, and R. Merlin, *Phys. Rev.* **B64**, 092301 (2001).
5. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067401 (2002).
6. P. Tangney and S. Fahy, *Phys. Rev.* **B65**, 054302 (2002).
7. M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima et. al., *Phys. Rev.* **B58**, 5448 (1998).
8. Н. Н. Боголюбов (мл), Б. И. Садовников, А. С. Шумовский, *Математические методы статистической механики модельных систем*, М.: Наука, 1989.
9. И. Ш. Авербух, Н. Ф. Перельман, *УФН* **161** 41 (1991).
10. P. Meystre, and M. Sargent III, *Elements of Quantum Optics*, Springer, Berlin, 1991.
11. Л. П. Питаевский, *УФН* **168**, 641 (1998).
12. M. Greiner, O. Mandel, T. W. Hansch, and I. Bloch, *Nature* **419**, 51 (2002).
13. Наличие второй гармоники в спектре дает дополнительное свидетельство о реализации дробного возрождения порядка $1/2$, см. Marc J. J. Vrakking, D. M. Villeneuve, and Albert Stolow, *Phys. Rev.* **A54**, R37 (1996).
14. O. V. Misochko, K. Kisoda, K. Sakai, and Nakashima, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 961 (2000).
15. O. V. Misochko, K. Sakai, and S. Nakashima, *Phys. Rev.* **B61**, 11225 (2000).
16. A. V. Kuznetsov, and C. J. Stanton, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3243 (1994).
17. O. V. Misochko, M. Tani, K. Sakai et.al. *Phys. Rev.* **B58**, 12789 (1998).