

Оптический контроль когерентной динамики решетки висмута при гелиевой температуре в условиях слабой и сильной накачки

О. В. Мисочко¹⁾, М. В. Лебедев

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

Поступила в редакцию 6 июля 2009 г.

Методом когерентного контроля исследованы полносимметричные A_{1g} фононы висмута при гелиевой температуре в зависимости от степени возбуждения кристалла. Обнаружено, что когерентные фононы большой амплитуды демонстрируют “жесткость” фазы, которая отсутствует при малой амплитуде. Невозможность изменить фазу фононных осцилляций возникает при уровнях накачки, для которых закон релаксации их амплитуды меняется с экспоненциального на степенной. Модифицирование фазовых свойств и закона релаксации возбуждений кристаллической решетки может быть понято в рамках концепции конденсации фононов, возникающей при росте степени возбуждения кристалла.

PACS: 78.47.J-, 78.47.-p

Когерентность является основой многих физических явлений, каждое из которых является проявлением квантовых закономерностей в макроскопическом масштабе. К ним относятся сверхтекучесть, сверхпроводимость, конденсация Бозе-Эйнштейна, эффект Бернара и лазерный эффект [1]. В последних двух явлениях когерентность возникает в условиях неравновесности, реализуемой и поддерживаемой внешней накачкой, то есть в ситуации, которая во многом аналогична условиям возникновения когерентности в системе решеточных возбуждений (фононов) при воздействии на кристалл сверхкороткого лазерного импульса. После взаимодействия с таким импульсом система фононов оказывается в суперпозиционном состоянии, свойства которого зависят от фазовых соотношений решеточных мод, образующих фононный ансамбль [2]. Это суперпозиционное состояние проявляется во временной модуляции сигнала отражения/пропускания слабого (зондирующего) импульса, который следует с контролируемой задержкой за импульсом возбуждения. Стабильная фаза фононного ансамбля (осцилляций), возникающая при длительности импульса накачки, меньшей обратной частоты фонона, открывает возможность когерентного контроля решеточных смещений, который был реализован для целого ряда материалов [3]. Для непрозрачных кристаллов с ростом степени возбуждения когерентная динамика решетки становится весьма нетривиальной, демонстрируя зависящую от времени (чирпированную) частоту [4, 5], неэкспоненциальную релаксацию [6] и другие, весьма интересные эффекты типа коллапса и возрождения [4, 7]. Поэтому есть все

основания ожидать, что оптический контроль когерентных фононов большой амплитуды позволит прояснить детали этой сложной динамики. В связи с этим целью данной работы являлось сравнение результатов оптического контроля когерентных фононов малой и большой амплитуды в монокристалле висмута при гелиевой температуре.

Висмут – полуметалл, кристаллизующийся в ромбоэдрической $A7$ решетке [8] и имеющий оптически активные фононные моды A_{1g} и E_g симметрии – является модельной системой для исследования когерентной динамики непрозрачных кристаллов [2, 6, 7]. Полносимметричная A_{1g} мода, исследуемая в данной работе, совпадает с параметром порядка гипотетического фазового перехода первого рода, превращающего висмут в полуметалл [6], и образуется противофазными смещениями двух атомов элементарной ячейки вдоль тригональной оси. Исследование этих когерентных A_{1g} фононов проводилось при близкой к гелиевой ($T = 4.5$ К) температуре при помощи фемтосекундной лазерной установки, состоящей из генератора фемтосекундных импульсов на титанате сапфира и регенеративного усилителя. Измерения осуществлялись с использованием сверхкоротких импульсов (длина волны $\lambda = 805$ нм, длительность импульса $\tau = 45$ фс) малой и большой энергии в вырожденной схеме накачки-зондирования [6]. В экспериментах измерялось нормированное разностное отражение $\Delta R/R_0$ как функция времени t между накачкой и зондированием в двухимпульсной схеме накачки. В этом случае первый импульс готовит когерентное состояние решетки, а второй импульс модифицирует когерентные осцилляции. Оптический (когерентный) контроль решеточных смещений по-

¹⁾e-mail: misochko@issp.ac.ru

хож на интерференцию двух световых волн с постоянной разностью фаз, при которой суммарная интенсивность света в одних местах увеличивается, а в других уменьшается, с той лишь разницей, что интерференция в нашем случае происходит во времени, а не в пространстве и интерferируют не световые волны, а волны упругой деформации кристалла. Для осуществления такого контроля использовалось устройство [6], модулирующее амплитуду и фазу спектра импульса возбуждения, что позволяло реализовать двухимпульсное возбуждение с заданным значением контрольного параметра γ – временем задержки между импульсами накачки.

Результаты оптического контроля когерентной динамики решетки для случая малых возбуждений представлены на рис.1. Для моноимпульсно-

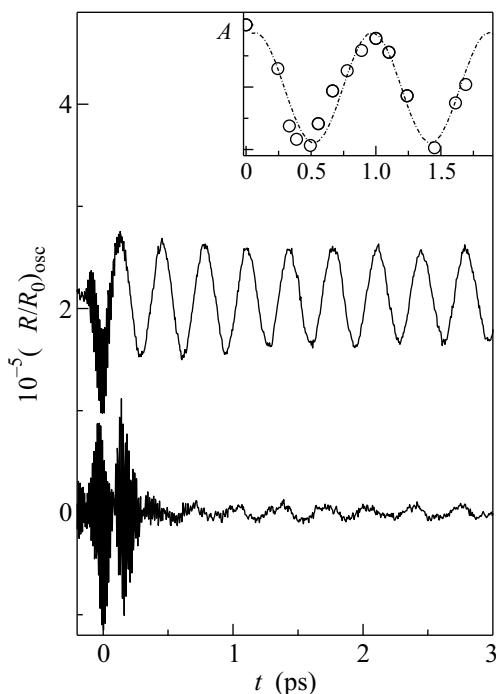


Рис.1. Разрешенная во времени когерентная компонента отражения монокристалла Вi при гелиевой температуре для моноимпульсного и двухимпульсного слабого возбуждения (кинетики сдвинуты по оси ординат). На вставке показана зависимость результирующей амплитуды от величины контрольного параметра

го возбуждения в области нулевых задержек, при пространственно-временном перекрытии импульсов накачки и зондирования, отчетливо виден когерентный артефакт, который был использован для определения нулевой задержки. Фурье-образ когерентных осцилляций, показанный на рис.2, свидетельствует, что в осцилляции отражения основной вклад дают

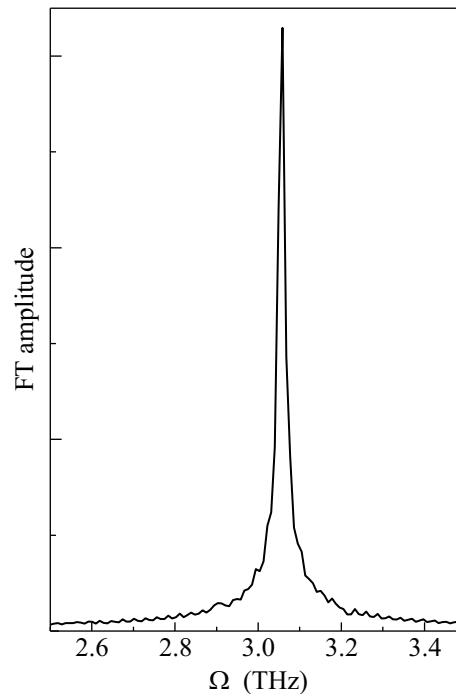


Рис.2. Фурье-спектр осциллирующей части отраженного сигнала для моноимпульсного возбуждения

полносимметричные фононы с частотой $\Omega = 3.05$ ТГц (период осцилляций $T = 328$ фс), а симметричная форма спектральной линии указывает на отсутствие фононного чирпа [6]. В этом случае подбор временной задержки двух последовательных импульсов накачки равной интенсивности позволяет осуществить практически полное подавление решеточных осцилляций, см. рис.1. Задержка, равная четному числу n периодов осцилляций $\gamma = nT$, приводит к росту амплитуды (конструктивная интерференция), тогда как при контрольном параметре $\gamma = (n + 1/2)T$ амплитуда стремится к нулю (деструктивная интерференция). Такой процесс контроля может быть представлен как сумма интерферирующих ансамблей фононов, созданных в различные моменты времени.

Учитывая механизм генерации когерентных полносимметричных фононов в висмуте, получивший название модели смещения [9], результаты оптического контроля когерентных фононов малой амплитуды могут быть поняты следующим образом. Первый импульс накачки перемещает атомы висмута на склон потенциала, поскольку появление фотовозбужденных мобильных электронов имеет своим следствием изменение равновесных межъядерных расстояний (более точно, сверхбыстрое фотовозбуждение меняет потенциал, оставляя атомы неподвижными, что подтверждается косинусоидальной временной зави-

симостью осцилляций [2, 7]). В результате атомы начинают движение к новому, смещенному положению равновесия и, вследствие своей инерции, продолжают движение и после его достижения, приводя к осцилляциям отражения. Для того чтобы погасить осцилляции, мы должны дождаться, когда атомы окажутся на противоположном склоне потенциала в точке классического поворота и, возбуждив необходимое число носителей в вышележащие зоны, сдвинуть минимум потенциала в эту точку. Поскольку в точке поворота кинетическая энергия атомов равна нулю, атомы, оказавшись в минимуме потенциала, прекращают движение. Для максимального усиления осцилляций необходимо смещать потенциал в моменты времени, кратные периоду осцилляций. Сдвиг потенциала в промежуточные моменты времени будет приводить к осцилляциям с амплитудой, меньшей максимальной, что демонстрируется вставкой рис.1, на которой результирующая амплитуда изменяется по закону $2A \cos[\Omega(t_2 - t_1)] \equiv 2A \cos(\Omega\gamma)$, где A – амплитуда осцилляций.

Результат двухимпульсной накачки для случая регенеративного усилителя с контрольным параметром, равным 3.44 пс, иллюстрируется рис.3. Уровень

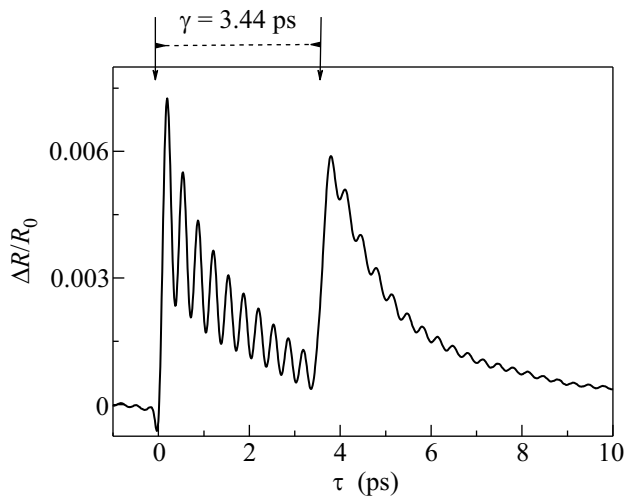


Рис.3. Разрешенное во времени отражение монокристалла Bi при гелиевой температуре для сильного двухимпульсного возбуждения

возбуждения в этом случае был выбран в области суперлинейной зависимости, в которой амплитуда осцилляций растет быстрее, чем плотность энергии возбуждения [6], но ниже порога возникновения эффекта коллапса-возрождения осцилляций [7]. При данной накачке амплитуда осцилляций, и соответственно, величина смещений атомов, на два порядка больше амплитуды при слабом возбуждении. Вто-

рой импульс накачки в этом случае приводит к значительному изменению релаксационной компоненты отражения, однако амплитуда осцилляций изменяется мало, несмотря на то, что второй импульс при данном контрольном параметре взаимодействует с кристаллом в момент, когда атомы находятся в точке классического поворота, для которой интерференция конструктивна.

При переходе к случаю когерентных фононов большой амплитуды частота осцилляций становится chirпированной, что приводит к тому, что период осцилляций зависит от времени [4–7]. Для того чтобы исключить влияние фононного chirпа, который быстро, в течение 1–2 пс, затухает [10], контрольный параметр γ изменялся в диапазоне от 3 до 9 пс. Так как в оптическом контроле нас интересовала только когерентная компонента, то результат ее выделения путем вычитания релаксационной части фотоиндуцированного отклика показан на рис.4а для одного из

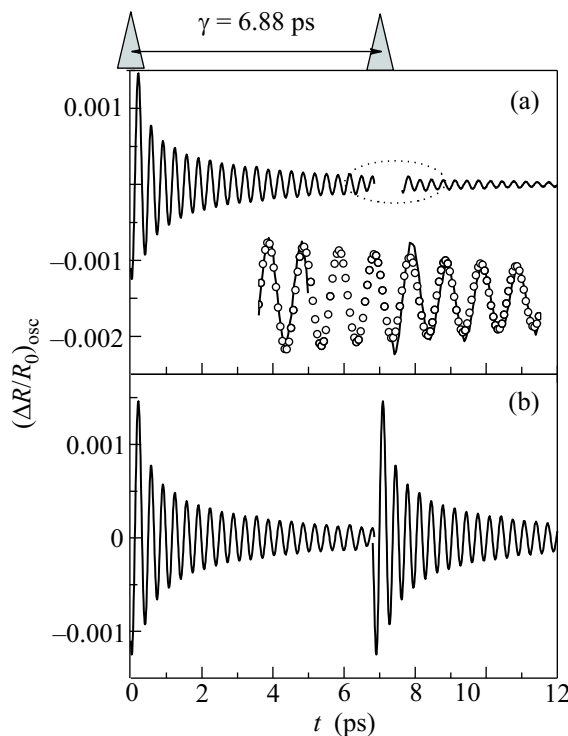


Рис.4. (а) Когерентная компонента отражения монокристалла Bi при сильном двухимпульсном возбуждении. На вставке показано сравнение сигналов моноимпульсного (точки) и двухимпульсного (сплошная линия) возбуждения, которое выявляет, что фаза осцилляций остается неизменной после воздействия второго импульса накачки. На нижней панели (b) приведен ожидаемый сигнал для случая линейной интерференции фононов, созданных первым и вторым импульсами возбуждения

значений контрольного параметра, $\gamma = 6.88$ пс. Очевидно, что второй импульс накачки в этом случае не приводит к существенному изменению амплитуды осцилляций, несмотря на то, что энергия второго импульса совпадает с энергией первого импульса накачки. Чтобы сделать это утверждение более явным, на нижней панели, рис. 4b, показан ожидаемый сигнал, полученный сложением сигнала моноимпульсной накачки с самим собой, но смещенным на величину контрольного параметра $\gamma = 6.88$ пс. Различие в величине ожидаемого и регистрируемого сигналов убедительно свидетельствует, что для когерентных фоонов большой амплитуды линейность интерференции нарушается.

Еще более удивительным является то, что фаза осцилляций, порождаемых первым импульсом накачки, остается неизменной после взаимодействия со вторым импульсом накачки. Это иллюстрируется вставкой рис. 4a, на которой показаны сигналы моноимпульсного и двухимпульсного возбуждений в диапазоне временных задержек вблизи контрольного параметра γ . Их сравнение показывает, что фаза сигнала двухимпульсного возбуждения с хорошей точностью совпадает с фазой сигнала моноимпульсного возбуждения. Эта неизменность фазы была также подтверждена экстраполированием сигнала двухимпульсного возбуждения из области $\gamma < 6.88$ пс в область задержек $\gamma > 6.88$ пс. Варьируя в эксперименте контрольный параметр γ в пределах $\pm T/2$, мы установили, что “жесткость” фазы не зависит от момента взаимодействия второго импульса с кристаллом, то есть от того, на каком из склонов потенциала находятся атомы.

Оставаясь в рамках модели смещения, наблюдаемая жесткость фазы когерентных фоонов свидетельствует, что второй импульс накачки смещает как потенциал, так и атомы кристалла. То есть атомы “прилипают” к потенциалу, который определяется в основном концентрацией фотоиндуцированных носителей. Факт сдвига потенциала подтверждается сравнимыми величинами неосциллирующей компоненты после воздействия первого и второго импульсов накачки. Амплитуда этой компоненты, как было показано ранее [10] при сравнении оптического и рентгеновского откликов, пропорциональна смещению атомов от нового положения равновесия, возникающего из-за сдвига потенциала. Поэтому жесткость фазы осцилляций может быть объяснена только тем, что движение атомов во время воздействия второго импульса адиабатично, то есть состояние решетки висмута после воздействия второго импульса накачки остается неизменным.

Отметим, что если отсутствие изменения амплитуды для случая оптического контроля когерентных фоонов большой амплитуды может быть, в принципе, понято в рамках модели смещения, объяснить жесткость фазы, оставаясь в рамках этой феноменологической модели, весьма затруднительно. Действительно, если предположить, что первый импульс переводит кристалл в состояние, для которого последующее возбуждение не меняет межъядерных расстояний (что явно противоречит экспериментальным данным), то амплитуда осцилляций будет определяться только первым импульсом. Однако второй импульс с необходимостью должен приводить к сбою фазы, чего в эксперименте не наблюдается. Оставаясь в рамках механической модели, следует констатировать, что жесткость фазы означает, что второй импульс сдвигает эквивалентный осциллятор как целое, то есть перемещает как точку подвеса маятника-осциллятора, так и осциллирующую массу.

Тот факт, что осцилляции продолжаются после взаимодействия со вторым импульсом накачки, свидетельствует о том, что движение атомов имеет финитный характер и происходит относительно устойчивого положения равновесия за счет баланса между возвращающей силой и инерцией системы. Невозможность изменить фазу этого движения можно было бы интерпретировать как внезапный рост инерции (массы эквивалентного осциллятора), однако практически неизменная частота осцилляций не позволяет это сделать. Так как механизм возбуждения в нашем случае является кинематическим (воздействие на эффективный осциллятор осуществляется движением точки закрепления пружины или нити маятника), мы сталкиваемся с парадоксальной ситуацией. Неизменность фазы указывает (с учетом закона сохранения энергии) на то, что второй импульс инициирует движение атомов относительно безразличного положения равновесия. Это возможно только в случае абсолютной жесткости системы, возникающей в результате согласования коллективного движения носителей заряда и атомов кристаллической решетки. Однако продолжающиеся осцилляции свидетельствуют, что жесткость пружины эквивалентного осциллятора конечна.

Жесткость фазы когерентных фоонов большой амплитуды, несомненно, является еще одним свойством, характеризующим необычность состояния кристалла, созданного сверхкоротким импульсом большой энергии [4–7]. В этом состоянии амплитуда осцилляций релаксирует не экспоненциально, а по степенному закону. Действительно, рассматривая затухание когерентной амплитуды при данном возбуж-

дении на рис.5, видим, что оно осуществляется по закону

$$A(t) = A_0 + \frac{a}{\sqrt{(t-b)}}$$

с $A_0 = -1.3 \cdot 10^{-4}$, $a = 6.7 \cdot 10^{-4}$ и $b = 1.4 \cdot 10^{-3}$, что существенно отличается от экспоненциального затухания, типичного для когерентных фононов малой

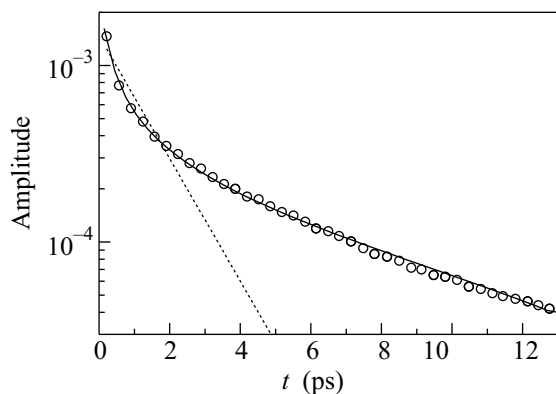


Рис.5. Временная зависимость когерентной амплитуды при сильном моноимпульсном возбуждении (светлые точки). Сплошная линия — подгонка степенной функцией. Для сравнения пунктирной линией показана подгонка экспоненциальной функцией

амплитуды [6]. В начальные моменты времени релаксация происходит быстро, но с течением времени замедляется, свидетельствуя о том, что характерное время, типичное для экспоненциальной релаксации, отсутствует. Смена экспоненциального затухания степенным указывает на то, что основное состояние решеточной подсистемы, к которому она релаксирует, модифицировано. Подобный степенной закон затухания характерен для кристаллов, в которых реализуется конденсация возбуждений [11]. Следовательно, можно предположить, что и в нашем случае имеет место конденсация фононных мод [12, 13], которая и является причиной неэкспоненциальной релаксации и жесткости фазы. Механизм конденсации фононов может быть понят в рамках модели Фрелиха [12], в которой роль неравновесного химического потенциала, необходимого для конденсации, играет энергия $\hbar\Omega/2$ акустических фононов, у которых скоррелированы фазы мод с противоположными импульсами [14]. Следует отметить, что эффект коллапса и возрождения когерентных осцилляций, возникающий при дальнейшем росте степени возбуждения, также может быть обусловлен фрелиховской конденсацией фононов [13].

Если учесть, что начальное состояние решетки при гелиевой температуре является вакуумным, а

спектр лазерного импульса возбуждения незначительно превышает 20 нм, то очевидно, что когерентная суперпозиция A_{1g} решеточных мод, созданных сверхкоротким импульсом, включает только вакуумное (безфононное) и первое возбужденное (однофононное) состояния. Ангармоничный распад однофононного A_{1g} состояния происходит на два акустических фонона с равными по величине и противоположными по знаку волновыми векторами, то есть двухфононное акустическое состояние является вакуумом для оптической ветви.

Макроскопическое заполнение скоррелированных акустических мод, являющееся результатом распада оптических фононов, может быть понято как поляризация вакуумного состояния оптической моды. Это макроскопическое заполнение основного состояния оптической моды, возникающее при некоторой пороговой плотности накачки, и приводит к ситуации, в которой ангармонический распад происходит по степенному, а не экспоненциальному закону, а фаза суперпозиционного состояния становится жесткой. Переход к степенной релаксации обусловлен тем, что достаточно узкое распределение акустических фононов не стимулирует распад оптического A_{1g} фонона, а задерживает его [15]. Таким образом, случай малого возбуждения, когда возбуждения решетки можно рассматривать как газ фононов с *одинаковыми* фазами, с ростом возбуждения сменяется ситуацией фононной “жидкости”, в которой фононы связаны общей фазой. Следует отметить, что эта ситуация во многом напоминает состояние когерентного кристалла [16], в котором периодическое распределение плотности и периодический потенциал взаимно поддерживают друг друга, то есть движения электронов и атомов решетки согласованы. Атомы такого когерентного кристалла не локализованы в узлах решетки, а способны перемещаться по кристаллу, подобно частицам жидкости во внешнем периодическом поле, а система в целом — особое состояние конденсированного вещества, сочетающего свойства кристалла и квантовой жидкости, — характеризуется наличием как диагонального, так и недиагонального дальнего порядка.

В заключение отметим, что методом когерентного контроля в кристаллах висмута при гелиевой температуре обнаружена жесткость фазы когерентных A_{1g} фононов большой амплитуды. Эта жесткость фазы возникает при возбуждении в суперлинейной области и в диапазоне временных задержек, для которых релаксация осцилляций носит степенной характер. Предполагается, что наблюдаемые эффекты жесткости фазы и степенной релаксации могут быть по-

няты как результат фреиховской конденсации фононов, возникающей с ростом степени возбуждения.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 07-02-00148).

1. Г. Хакен, *Синергетика*, Пер. с англ. М.: Мир, 1980.
2. R. Merlin, *Solid State Commun.* **102**, 207 (1997).
3. M. W. Wefers, H. Kawashima, and K. A. Nelson, *J. Phys. Chem. Solids* **57**, 1425 (1995).
4. О. В. Мисочко, М. Хасе, М. Китажима, *Письма в ЖЭТФ* **78**, 85 (2003).
5. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067401 (2002).
6. О. В. Мисочко, М. В. Лебедев, *ЖЭТФ* **136**, id9164 (2009).
7. O. V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 197401 (2004).
8. А. А. Абрикосов, Л. А. Фальковский, *ЖЭТФ* **43**, 1089 (1962).
9. H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng et al., *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
10. А. А. Мельников, О. В. Мисочко, С. В. Чекалин, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 148 (2009).
11. L. Banyai, P. Gartner, O. M. Schmitt, and H. Haug, *Phys. Rev. B* **61**, 8823 (2000).
12. H. Fröhlich, *Intern. J. of Quantum Chemistry* **11**, 641 (1968).
13. O. V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, *Phys. Lett. A* **321**, 381 (2004).
14. Л. А. Манакова, *Письма в ЖЭТФ* **80**, 627 (2004).
15. С. А. Булгадаев, И. Б. Левинсон, *ЖЭТФ* **67**, 2341 (1974).
16. Д. А. Киржниц, Ю. А. Непомнящий, *ЖЭТФ* **59**, 2203 (1970).