

Фотоиндуцированные когерентные фононы в висмуте

© А.Л. Семенов

Ульяновский государственный университет,
Ульяновск, Россия

E-mail: smnv@mail.ru

(Поступила в Редакцию 22 марта 2011 г.)

Получено уравнение фотоиндуцированной динамики атомов кристаллической решетки Вi. На основе этого уравнения вычислена зависимость от времени смещений атомов при воздействии на кристалл сверхкороткого лазерного импульса. Показано, что частота осциллирующей части смещений зависит от плотности энергии лазерного импульса и времени. Рассчитана интенсивность спектра Фурье фотоиндуцированных когерентных колебаний кристаллической решетки (когерентных фононов). Полученные теоретические результаты сравниваются с экспериментальными данными.

1. Введение

Рентгеновские исследования [1] показали, что при облучении лазерным импульсом с длительностью $\Delta t = 40$ fs и плотностью энергии $W = 6$ mJ/cm² в монокристалле Вi возбуждаются когерентные колебания атомов вдоль тригональной оси кристалла. Начальная амплитуда фотоиндуцированных колебаний $A_0 \approx 0.01$ nm (амплитуда колебаний межатомных расстояний ≈ 0.02 nm), частота колебаний $\nu \approx 2.14$ THz, сдвиг частоты $\Delta\nu = \nu - \nu_0 \approx -0.79$ THz, где $\nu_0 = \nu(W \approx 0) \approx 2.93$ THz — частота фотоиндуцированных когерентных колебаний при малых значениях плотности энергии лазерного импульса.

В экспериментах [2,3] для плотности энергии лазерного импульса $W = 1.3$ mJ/cm² методом оптического зондирования получена следующая зависимость частоты ν когерентного фонона в монокристалле висмута от времени t :

$$\nu(t) = \nu_0 + \Delta\nu_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right), \quad (1)$$

где $\nu_0 \approx 2.93$ THz, $\Delta\nu_0 \approx -0.23$ THz, $\tau_1 = 1.0 \pm 0.3$ ps. Соотношение (1) описывает экспоненциальную релаксацию частоты ν к значению ν_0 . При этом, как показано в эксперименте [4], спектральная линия фотоиндуцированного когерентного фонона имеет асимметричную форму.

Теория [5,6] фотоиндуцированных когерентных фононов основывается на уравнении линейного гармонического осциллятора с затуханием и внешней силой, линейно зависящей от концентрации фотовозбужденных электронов. Эта теория хорошо согласуется с экспериментом для целого ряда материалов (Sb, Вi, Те, Ti₂O₃) при малых энергиях лазерного импульса. Свойства когерентных фононов, проявляющиеся при больших энергиях лазерного импульса (зависимость частоты колебаний от плотности энергии лазерного импульса и времени [1–3], асимметрия фоновой линии в Фурье-спектре колебаний [4]), теория [5,6] не объясняет.

В работе [7] численным методом функционала плотности вычислен коэффициент сдвига частоты

ν когерентного фонона висмута при увеличении концентрации n фотовозбужденных электронов: $dv/dn \approx -2.8 \cdot 10^{-22}$ THz cm³. Это позволяет интерпретировать экспериментальные данные [1] по снижению частоты ν , однако результаты экспериментов [2–4], насколько нам известно, ранее не получили теоретического объяснения.

В настоящей работе проведено обобщение теории [5,6] на случай больших смещений атомов, когда становится существенным ангармонизм кристаллической решетки. Учет ангармонизма кристаллической решетки позволяет объяснить свойства когерентных фононов в висмуте (зависимость частоты ν от времени и плотности энергии W лазерного импульса, асимметрия формы спектральной линии), наблюдающиеся в экспериментах [1–4].

2. Основные уравнения

Кристаллическую решетку висмута можно получить из простой кубической решетки посредством малых смещений атомов. Для этого нужно сместить две гранцентрированные подрешетки висмута относительно друг друга вдоль одной из главных пространственных диагоналей (пайерлсовское искажение) и слегка растянуть решетку вдоль этой же диагонали [8]. При этом атомы висмута, расположенные в виде цепочек, параллельных тригональной оси кристалла (главной пространственной диагонали), попарно сближаются. Координата x_j j -ого атома Вi в цепочке записывается в форме

$$x_j = jr_0 + (-1)^j x, \quad (2)$$

где r_0 — среднее межатомное расстояние в цепочке, x — смещения атомов из эквидистантного положения при их попарном сближении (пайерлсовском искажении). Эволюция параметра x во времени определяется уравнением Лагранжа

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{x}} - \frac{\partial L}{\partial x} = Q, \quad (3)$$

где Q — обобщенная диссипативная сила, соответствующая обобщенной координате x ; L — функция Лагранжа.

$$L = \sum_j \frac{m\dot{x}_j^2}{2} - F, \quad (4)$$

где m — масса атома.

$$F(x, n) = F(x, 0) + (A_0 + A_1 x)n. \quad (5)$$

Здесь n — концентрация фотовозбужденных электронов, A_0, A_1 — коэффициенты разложения, $F(x, 0)$ — термодинамический потенциал висмута в отсутствие фотовозбужденных электронов [8].

$$F(x, 0) = F_0 + \sigma x^2 - \chi x^2 \ln \frac{\rho}{x}: \quad (6)$$

F_0 не зависит от x ; σ, χ, ρ — положительные константы. Последнее слагаемое в правой части (5) описывает изменение потенциала F при возбуждении электронной подсистемы [6].

Равновесное смещение $x = x_0$ в отсутствие фотовозбужденных электронов определяется из условия минимума термодинамического потенциала $F(x, 0)$ (6):

$$\left. \frac{\partial F(x, 0)}{\partial x} \right|_{x=x_0} = 0. \quad (7)$$

Подставляя (6) в (7), получаем

$$\rho = x_0 \exp\left(\frac{\sigma}{\chi} + \frac{1}{2}\right). \quad (8)$$

Исключая в (6) константу ρ (8), находим

$$F(x, 0) = F_0 - \chi x^2 \left(\ln \frac{x_0}{x} + \frac{1}{2}\right). \quad (9)$$

Подставляя выражение (4) в уравнение Лагранжа (3), с учетом (5), (9) в приближении времени релаксации ($Q \sim \dot{x}$) имеем

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} = \omega_0^2 \left(x \ln \frac{x_0}{x} - x_0 \theta n\right), \quad (10)$$

где γ^{-1} — характерное время фононной релаксации; θ — константа, характеризующая взаимодействие когерентного фонона с фотовозбужденными электронами.

$$\omega_0^2 = \frac{2\chi}{mN}, \quad (11)$$

N — концентрация атомов висмута.

Зависимость концентрации n фотовозбужденных электронов у поверхности от времени подчиняется кинетическому уравнению [9]

$$\dot{n} = \frac{(1-R)\alpha I}{\hbar\omega_1} - \frac{n}{\tau}, \quad (12)$$

где α, R — соответственно коэффициенты оптического поглощения и отражения; ω_1, I — частота и интенсивность светового поля; $\tau = \tau(n, x)$ — время электронной релаксации. Уравнения (10), (12) образуют замкнутую систему для описания поведения кристаллической решетки висмута в световом поле.

3. Возбуждение сверхкоротким лазерным импульсом

Анализ уравнений (10), (12) проведем для случая сверхкороткого лазерного импульса и медленной электронной релаксации, когда выполняются условия

$$\tau_p \ll 2\pi/\omega_0 \ll \tau, \quad (13)$$

где τ_p — длительность лазерного импульса. В предположении, что действие лазерного импульса заканчивается в момент $t = 0$, а $\tau = \text{const}$, из (12) находим

$$n(t) = n_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right), \quad (14)$$

где

$$n_0 = \frac{(1-R)\alpha W}{\hbar\omega_1}, \quad (15)$$

W — поверхностная плотность энергии лазерного импульса.

При малых уровнях возбуждения, когда выполняется условие

$$\theta n_0 \ll 1, \quad (16)$$

из уравнения (10) приближенно имеем

$$x = x_0(1 - \theta n + \xi), \quad (17)$$

где ξ подчиняется нелинейному дифференциальному уравнению

$$\ddot{\xi} + \omega_0^2(1 - \theta n)\xi = -\frac{\omega_0^2}{2}\xi^2 + \frac{\omega_0^2}{6}\xi^3 - 2\gamma\dot{\xi} \quad (18)$$

с начальным условием

$$\xi(t = 0) = \theta n_0. \quad (19)$$

Используя метод медленно меняющихся амплитуд [10], находим приближенное решение уравнения (18). Подставляя это решение в (17), с учетом (14) имеем

$$x = x_0 \left(1 + \theta n_0 \left(\exp(-\gamma t) \cos\left(\int_0^t \omega(t) dt\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right) \right), \quad (20)$$

где

$$\omega(t) = \omega_0 \left(1 - \frac{\theta n_0}{2} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - \frac{\theta^2 n_0^2}{16} \exp(-2\gamma t) \right) \quad (21)$$

— мгновенная циклическая частота колебаний. Из (21) приближенно находим начальный сдвиг частоты когерентного фонона

$$\Delta\nu_0 = \frac{\omega(0) - \omega_0}{2\pi} = -\frac{\nu_0 \theta n_0}{2}, \quad (22)$$

где $\nu_0 = \omega_0/2\pi$ — частота когерентного фонона при $n_0 = 0$. Из (20) следует, что начальная амплитуда когерентных колебаний

$$A_0 = \theta x_0 n_0. \quad (23)$$

Полученное решение (20), (21) показывает, что в системе под действием лазерного импульса возбуждаются колебания кристаллической решетки с частотой, зависящей от времени t и плотности энергии W лазерного импульса. С увеличением W частота колебаний (21) уменьшается.

4. Численные оценки и сравнение с экспериментом

Для численных оценок используем следующие значения параметров висмута: коэффициент оптического отражения $R \cong 0.7$ [6], коэффициент оптического поглощения $\alpha \cong 6 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ [4], энергия фононов $\hbar\omega_1 \cong 1.6 \text{ eV}$, частота когерентного фонона при малом уровне фотовозбуждения $\nu_0 \cong 2.93 \text{ THz}$ [3], равновесное смещение атомов Vi из эквидистантного положения в отсутствие фотовозбуждения $x_0 \cong 0.019 \text{ nm}$ [7] ($x_0 = (r_2 - r_1)/4$, где $r_1 \cong 0.552 \text{ nm}$, $r_2 \cong 0.628 \text{ nm}$ — соответственно минимальное и максимальное расстояния между атомами Vi вдоль тригональной оси), время электронной релаксации $\tau \cong 1 \text{ ps}$ [3].

Из (15) для $W = 6 \text{ mJ/cm}^2$ находим $n_0 \cong 4.2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. Подставляя в (23) $A_0 = 0.01 \text{ nm}$ [1], получаем $\theta \cong 1.3 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^3$. Из (22) имеем $\Delta\nu_0 \cong -0.8 \text{ THz}$. Данное расчетное значение сдвига частоты когерентного фонона близко к экспериментальному значению $\Delta\nu_0 \cong -0.79 \text{ THz}$ [1].

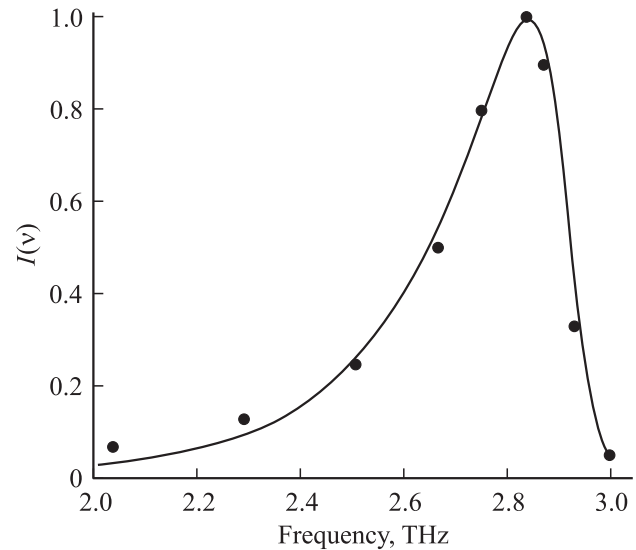
При $W = 1.3 \text{ mJ/cm}^2$ из (15) следует, что $n_0 \cong 9.1 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. При этом в уравнении (21) третьим слагаемым можно пренебречь, и оно принимает вид (1), где $\nu_0 \cong 2.93 \text{ THz}$, $\Delta\nu_0 \cong -0.17 \text{ THz}$, $\tau_1 = \tau \cong 1 \text{ ps}$. Теоретические значения $\nu_0 \cong 2.93 \text{ THz}$, $\Delta\nu_0 \cong -0.17 \text{ THz}$, $\tau_1 = \tau \cong 1 \text{ ps}$ близки к экспериментальным данным $\nu_0 \cong 2.93 \text{ THz}$, $\Delta\nu_0 \cong -0.23 \text{ THz}$, $\tau_1 = 1.0 \pm 0.3 \text{ ps}$ [2,3]. Таким образом, предлагаемая теория объясняет экспериментальную зависимость (1).

Вычисленный с использованием формул (14), (21) коэффициент сдвига частоты ν когерентного фонона висмута при увеличении концентрации n фотовозбужденных электронов $dv/dn = -\nu_0\theta/2 \cong -1.9 \cdot 10^{-22} \text{ THz} \cdot \text{cm}^3$ близок к значению $dv/dn \cong -2.8 \cdot 10^{-22} \text{ THz} \cdot \text{cm}^3$, полученному численно в работе [7].

Представленная в виде преобразования Фурье осциллирующей части Δx -смещения (20) и нормированная на единицу интенсивность

$$I(\nu) \sim \left| \int_0^\infty \Delta x(t) \exp(i2\pi\nu t) dt \right|^2 \quad (24)$$

для $\tau = 1 \text{ ps}$ [3], $1/\gamma = 1.8 \text{ ps}$ [11], $W = 3.8 \text{ mJ/cm}^2$ изображена на рисунке. Фононная линия асимметрична. Точками на рисунке отмечена интенсивность спектра Фурье осциллирующей части ΔR коэффициента оптического отражения, полученная в эксперименте [4] при плотности энергии лазерного импульса $W = 3.8 \text{ mJ/cm}^2$.



Нормированная на единицу интенсивность $I(\nu)$ спектра Фурье осциллирующей части смещения атомов Vi для $W = 3.8 \text{ mJ/cm}^2$. Линия — расчет по формуле (24), точки — эксперимент [4].

Видно, что расчетная кривая и экспериментальные данные хорошо согласуются. Это, в частности, показывает, что $\Delta R \sim \Delta x$. Небольшое отличие теории от эксперимента при низких частотах, по-видимому, обусловлено влиянием низкочастотной E_g -моды колебаний, которое наиболее сильно проявляется при больших плотностях энергии лазерного импульса [4] и в нашей теории не учитывается.

5. Заключение

Проведенное теоретическое исследование показало, что фотоиндуцированная динамика кристаллической решетки висмута описывается уравнениями (10), (12), которые сходны с уравнениями для двуокиси ванадия в световом поле [12,13]. Под действием сверхкороткого лазерного импульса в материале индуцируются когерентные колебания кристаллической решетки. Свойства этих колебаний (зависимость частоты ν от времени и плотности энергии W лазерного импульса, асимметрия формы спектральной линии), рассмотренные в рамках предлагаемой теории, согласуются с экспериментальными данными [1–4].

Список литературы

- [1] K. Sokolowski-Tinten, D. von der Linde. J. Phys.: Cond. Matter **16**, R1517 (2004).
- [2] О.В. Мисочко, М.В. Лебедев. Письма в ЖЭТФ **89**, 3, 148 (2009).
- [3] А.А. Мельников, О.В. Мисочко, В.О. Компанец, А.Л. Добряков, С.В. Чекалин. ЖЭТФ **138**, 3 (9), 486 (2010).

- [4] M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, K. Mizoguchi. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 6, 067401 (2002).
- [5] T.K. Cheng, J. Vidal, H.J. Zeiger, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus, E.P. Ippen. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 16, 1923 (1991).
- [6] H.J. Zeiger, J. Vidal, T.K. Cheng, E.P. Ippen, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B* **45**, 2, 768 (1992).
- [7] E.D. Murray, D.M. Fritz, J.K. Wahlstrand, S. Fahy, D.A. Reis. *Phys. Rev. B* **72**, 060301 (R) (2005).
- [8] Л.А. Фальковский. *УФН* **94**, 1, 3 (1968).
- [9] В.И. Емельянов, Д.В. Бабак. *ФТТ* **41**, 8, 1462 (1999).
- [10] В.В. Мигулин, В.И. Медведев, Е.Р. Мустель, В.Н. Парыгин. *Основы теории колебаний*. Наука, М. (1978). С. 70.
- [11] M.F. DeCamp, D.A. Reis, P.H. Bucksbaum, R. Merlin. *Phys. Rev. B* **64**, 092301 (2001).
- [12] А.Л. Семенов. *ЖЭТФ* **131**, 1, 77 (2007).
- [13] А.Л. Семенов. *ФТТ* **49**, 12, 2196 (2007).