

# Генерация когерентных фононов в непрозрачных кристаллах: радиотехническая аналогия

© М.В. Лебедев, О.В. Мисочко

Институт физики твердого тела Российской академии наук,  
Черноголовка, Московская обл., Россия

E-mail: lebedev@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 15 декабря 2008 г.)

Рассмотрена модель генерации когерентных фононов сверхкороткими лазерными импульсами в непрозрачных кристаллах, основанная на радиотехнической аналогии с двумя связанными  $RLC$ -контурами, первый из которых отвечает электронной подсистеме кристалла, а второй — решеточной подсистеме. Показано, что эта аналогия позволяет описать ряд характерных свойств когерентных фононов и облегчает разделение вкладов неравновесных носителей заряда и когерентной динамики решетки в сигнал времяразрешенного отражения непрозрачных кристаллов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 07-02-00148-а).

PACS: 78.47.-p, 78.47.Fg, 78.47.J-

## 1. Введение

Наблюдать за движением атомов кристалла можно, переведя решетку в когерентное состояние, в котором все атомы движутся синхронно. Интерес к исследованию когерентной динамики атомов в средах с дальним порядком во многом связан с возможностью управления состоянием кристаллической решетки [1], что становится осуществимым благодаря наличию у когерентных фононов хорошо определенной фазы [2–5]. Состояние решетки кристалла, возникшее после взаимодействия со сверхкоротким лазерным импульсом, подпадает под общее определение когерентных состояний [6], и, базируясь на рассмотрении [7], такой кристалл можно было бы называть когерентным кристаллом. Осцилляции отражения/пропускания света, которые обычно ассоциируют с когерентными фононами, в этом случае следует приписать соответствующему коллективному возбуждению когерентного кристалла (отметим, что спектры элементарных возбуждений обычного и когерентного кристаллов по ряду черт могут быть различны [7]).

Несмотря на то что когерентные фононы исследуются более двух десятилетий [2–5], целый ряд фундаментальных вопросов остается до сих пор невыясненным. Так, если в прозрачных материалах механизм возникновения решеточной когерентности надежно установлен и сводится к „ударному“ вынужденному комбинационному рассеянию [2], в кристаллах с значительным линейным поглощением однозначного ответа нет до сих пор [3–5]. Роль линейного поглощения в различных теоретических моделях трактуется по-разному, являясь либо единственной причиной (механизм смещения [8]), либо усиливающим фактором (механизм нестационарного резонансного вынужденного рассеяния [3,9,10]) передачи энергии от электромагнитного поля кристаллической решетке. Отсутствие понимания деталей механизма генерации когерентных фононов в непрозрачных кристаллах мешает

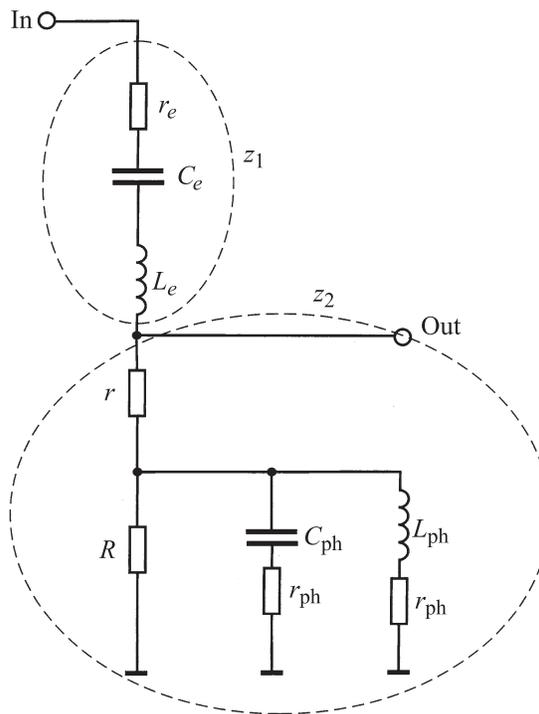
установлению природы состояния решетки, созданного сверхкоротким лазерным импульсом. Действительно, перевести решетку в когерентное состояние, для которого движение атомов скоррелировано, можно двумя способами: первым является синхронизация различных фононных мод [11], вторым — создание макроскопического заполнения отдельной фононной моды [12,13]. Первое состояние решетки является чисто классическим, второе (состояние Глаубера) — квантовым [6], так как в первом случае макроскопическое состояние решетки создается из состояний сплошного спектра и имеет бальмановскую статистику, тогда как во втором случае оно строится из состояний дискретного спектра и описывается статистикой Бозе–Эйнштейна. Очевидно, что условие неразличимости (тождественности) фононов присутствует в глауберовском состоянии и отсутствует при синхронизации фононных мод с различными волновыми векторами.

Поскольку возбуждение решеточной системы осуществляется лазерным импульсом за времена, меньшие характерных времен электронной и решеточной релаксации и обратной частоты фонона, с точки зрения теории колебаний мы имеем здесь дело с откликом некоторой сложной колебательной системы на практически дельтаобразное воздействие. Знания этого отклика для линейной системы, как известно, достаточно для описания ее поведения при возбуждении импульсом произвольной формы. Можно надеяться, что в случае не слишком больших интенсивностей накачивающего импульса такое нестационарное изменение коэффициента отражения будет с достаточной степенью точности линейным, и отклик кристалла на импульс произвольной формы с длительностью, меньшей периода фононной моды, удастся описать, воспользовавшись стандартным аппаратом функций отклика в теории колебаний. Такое описание должно быть основано на аналогии с подходящей колебательной системой, обладающей импульсной

функцией отклика нужного вида и будет, разумеется, чисто феноменологическим. Однако достоинством такого феноменологического рассмотрения будет то, что общая теория колебаний позволяет, исходя из всего, что изучено в области механических и электрических колебаний, предвидеть аналогичные явления в других областях, в частности в оптике.

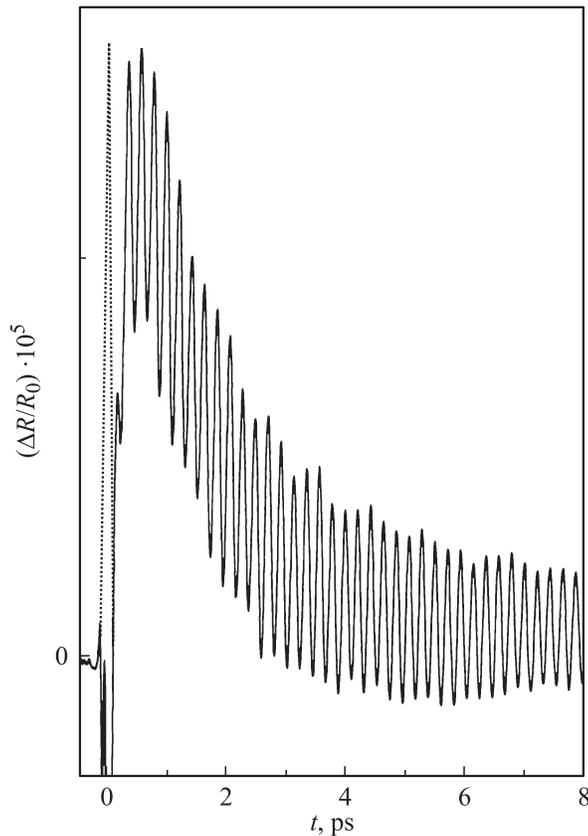
## 2. Модель и теоретическое рассмотрение

В литературе для наглядного пояснения тех или иных свойств когерентных фононов широко используется аналогия между свойствами волнового пакета когерентных состояний квантово-механического осциллятора и свойствами классического механического маятника [2–5]. Эта аналогия дает хорошие результаты для случая прозрачных кристаллов [2], в которых поглощением можно пренебречь; вследствие этого решеточная когерентность создается в основном (невозбужденном) электронном состоянии [2,5]. В этом случае решеточная когерентность хорошо описывается аналогией с одним эквивалентным осциллятором, который для целей наглядности может трактоваться как механический маятник. Для более сложных систем, в которых решеточная когерентность может быть создана как в основном, так и в возбужденном электронном состоянии, и в которых отклик электронной подсистемы нельзя игнорировать, более уместна аналогия с системой, состоящей из нескольких связанных между собой осцилляторов. В этом случае удобнее использовать аналогию не с механической, а с радиотехнической колебательной системой, состоящей из связанных колебательных контуров [14,15]. В этой системе, приведенной на рис. 1, последовательный колебательный контур  $r_e, C_e, L_e$  является аналогом осциллятора, отвечающего электронной подсистеме кристалла, а параллельный колебательный контур  $2r_{ph}, C_{ph}, L_{ph}$  соответствует решеточному (фононному) осциллятору. Лазерный импульс с частотой, лежащей в видимом или ближнем инфракрасном диапазоне, не может непосредственно возбуждать фононы, поскольку матричный элемент взаимодействия фонона с электромагнитным полем равен нулю. При поглощении лазерного света происходит возбуждение электронной подсистемы кристалла — рождение большого количества неравновесных электронов и дырок, которые посредством электрон-фононного взаимодействия передают часть своей энергии фононной подсистеме. Упрощенную классическую картину происходящего можно представлять себе так: электрическое поле электромагнитной волны раскачивает электроны около их равновесных положений в поле положительно заряженных атомных центров кристаллической решетки. Происходящее в результате этого периодическое смещение электронной плотности вызывает в свою очередь раскачку колебаний атомов. В схеме рис. 1 подаваемый на вход электрический высокочастотный импульс также вызывает прежде всего колебания в последовательном



**Рис. 1.** Схема из двух колебательных контуров, моделирующая отклик кристалла при возбуждении сверхкоротким лазерным импульсом. Штриховыми овалами выделены „электронный“  $z_1$  и „фононный“  $z_2$  контуры.

колебательном контуре. Связь с параллельным колебательным контуром осуществляется благодаря наличию сопротивления связи  $R$ . Если это сопротивление, в частности, равно нулю, то колебания в параллельном контуре вообще не возникают. Схема на рис. 1 достаточно сложна и в зависимости от конкретных параметров может демонстрировать существенно различный отклик. Только в некоторой области параметров, легко определяемой из физических соображений, можно надеяться описать с ее помощью времяразрешенный отклик кристалла в экспериментах накачка–зондирование сверхкороткими лазерными импульсами. Заметим прежде всего, что физический смысл в этой схеме должны, очевидно, иметь собственные частоты и добротности колебательных контуров, а также сопротивление связи, в то время как сами величины емкостей и индуктивностей непосредственным физическим смыслом в устанавливаемой нами аналогии могут и не обладать. Поскольку частота возбуждающего света в эксперименте много больше частоты фонона, резонансная частота последовательного колебательного контура  $\omega_e$  должна быть много больше резонансной частоты параллельного контура  $\omega_{ph}$ . Для добротностей этих контуров справедливо обратное соотношение, так как фононный осциллятор демонстрирует в эксперименте высокую добротность, в то время как для электронов чаще всего наблюдается аperiodическое движение, свидетельствующее о том, что электронный осциллятор является передемпфированным (рис. 2).



**Рис. 2.** Разрешенное во времени нормированное дифференциальное отражение  $\Delta R/R_0$  монокристалла Sb, полученное при  $T = 10$  К. Пунктирной линией показана автокорреляционная функция лазерного импульса. Длина волны излучения 810 nm, длительностью импульса 70 fs, частота повторения импульсов 80 MHz, средняя мощность накачки 10 mW.

Найдем отклик нашей колебательной системы в указанных выше предположениях относительно собственных частот и добротностей входящих в нее колебательных контуров. Коэффициент передачи рассматриваемой цепи по напряжению равен

$$K = \frac{z_2}{z_1 + z_2}, \quad (1)$$

где  $z_1$  и  $z_2$  — импедансы частей схемы, выделенные на рис. 1 штриховыми овалами. Сопротивление  $r_e$  в схеме описывает необратимый уход энергии из колебательного контура электронов, связанный с передачей энергии от электронов, возбуждаемых световой волной, в другие степени свободы, в частности к электронам, не находящимся в резонансе со светом. При этом значительная часть этой энергии, по-видимому, уходит за счет электрон-электронных столкновений на разогрев электронного резервуара. Сопротивление  $r$  учитывает потери энергии колеблющихся электронов на излучение электромагнитных волн. Сопротивление  $R$  описывает уход энергии на возбуждение фононного контура, отвечающего за генерацию когерентных фононов. Оно является сопротивлением связи, определяющимся

электрон-фононным взаимодействием, так что за счет него возможно и обратное перетекание энергии от решетки к носителям заряда, т. е. от когерентных фононов к колеблющимся электронам. В нашей классической модели когерентное колебательное возмущение кристаллической решетки оказывается с самого начала тесно связанным с классическим электронным током, в этой связи возможно было бы правильное рассматривать не отдельно когерентные фононы, а когерентные фонон-плазмонные возбуждения кристалла. Исходя из экспериментальной ситуации, разумно предположить, что  $R, r \ll r_e$ . Из последнего условия следует, что  $z_1 \gg z_2$ , и тогда коэффициент передачи упрощается и сводится к отношению импедансов  $K \cong \frac{z_2}{z_1}$ . В пределе  $\alpha_{ph} \rightarrow 0$  мы получаем достаточно простой и симметричный вид коэффициента передачи

$$K(s) = \frac{2\alpha_e s}{s^2 + 2\alpha_e s + \omega_e^2} \left( \frac{r}{r_e} + \frac{R}{r_e} \frac{2\alpha_R s}{s^2 + 2\alpha_R s + \omega_{ph}^2} \right). \quad (2)$$

Здесь  $\omega_e^2 = \frac{1}{L_e C_e}$ ,  $\omega_{ph}^2 = \frac{1}{L_{ph} C_{ph}}$  — резонансные частоты,  $\alpha_e = \frac{r_e}{2L_e}$ ,  $\alpha_{ph} = \frac{r_{ph}}{L_{ph}}$ ,  $\alpha_R = \frac{L_{ph} \omega_{ph}^2}{2R}$  — коэффициенты затухания,  $s = i\omega$  — мнимая частота. Коэффициент передачи по напряжению для нашей схемы составлен из коэффициентов передачи двух  $LCr$ -цепей, импульсная характеристика для каждой из которых хорошо известна [15]. Фононный вклад, как и положено, стремится к нулю при  $R \rightarrow 0$ . Функции отклика нашей полной цепи распадается на сумму чисто электронного и электронно-колебательного откликов

$$f(t) = \frac{r}{r_e} f_e(t) + \frac{R}{r_e} f_{e-ph}(t). \quad (3)$$

Поскольку коэффициент передачи электронно-колебательной части является произведением коэффициентов передачи „электронной“ и „фононной“ частей, функция отклика для нее будет сверткой соответствующих функций отклика

$$f_{e-ph}(t) = \int_0^t f_e(x) f_{ph}(t-x) dx. \quad (4)$$

Ясно, что отклик всей цепи будет существенным образом зависеть от вида функций отклика, входящих в это выражение. Исходя из сделанных выше приближений при выводе выражения для коэффициента передачи следует выбрать для фононной функции отклика колебательный вид. Для электронной функции отклика возможен как аperiodический, так и сильно затухающий колебательный вид. Интеграл свертки берется аналитически при любом виде электронной функции отклика, однако нашей экспериментальной ситуации лучше всего соответствует случай аperiodического электронного отклика, к анализу которого мы и переходим.

Функции отклика нашей схемы в этом последнем случае имеют вид

$$f_e(t) = \frac{2\alpha_e}{\gamma} e^{-\alpha_e t} [-\alpha_e \operatorname{sh} \gamma t + \gamma \operatorname{ch} \gamma t],$$

$$f_{e-\text{ph}}(t) = A \left\{ -e^{(\gamma-\alpha_e)t} \sin(\varphi_R + \theta_+) + e^{-\alpha_e t} \sin(\tilde{\omega}_{\text{ph}} t + \varphi_R + \theta_+) \right\} - B \left\{ -e^{(-\gamma-\alpha_e)t} \sin(\varphi_R + \theta_-) + e^{-\alpha_e t} \sin(\tilde{\omega}_{\text{ph}} t + \varphi_R + \theta_-) \right\}, \quad (5)$$

где  $\gamma = \sqrt{\alpha_e^2 - \omega_e^2}$ ,  $\sin \varphi_R = \frac{\tilde{\omega}_{\text{ph}}}{\omega_{\text{ph}}}$ ,  $\tilde{\omega}_{\text{ph}} = \sqrt{\omega_{\text{ph}}^2 - \alpha_R^2}$  — перенормированная частота затухающих колебаний фононов, фазы тригонометрических функций определяются из следующих уравнений:

$$\cos \theta_+ = \frac{\alpha_R - \alpha_e + \gamma}{\sqrt{(\alpha_R - \alpha_e + \gamma)^2 + \tilde{\omega}_{\text{ph}}^2}},$$

$$\sin \theta_+ = \frac{\tilde{\omega}_{\text{ph}}}{\sqrt{(\alpha_R - \alpha_e + \gamma)^2 + \tilde{\omega}_{\text{ph}}^2}},$$

$$\cos \theta_- = \frac{\alpha_R - \alpha_e - \gamma}{\sqrt{(\alpha_R - \alpha_e - \gamma)^2 + \tilde{\omega}_{\text{ph}}^2}},$$

$$\sin \theta_- = \frac{\tilde{\omega}_{\text{ph}}}{\sqrt{(\alpha_R - \alpha_e - \gamma)^2 + \tilde{\omega}_{\text{ph}}^2}},$$

а коэффициенты  $A$  и  $B$  даются выражениями

$$A = 2 \frac{\alpha_e \alpha_R}{\gamma} \frac{\omega_{\text{ph}}}{\tilde{\omega}_{\text{ph}}} \frac{\alpha_e - \gamma}{\sqrt{(\alpha_R - \alpha_e + \gamma)^2 + \tilde{\omega}_{\text{ph}}^2}},$$

$$B = 2 \frac{\alpha_e \alpha_R}{\gamma} \frac{\omega_{\text{ph}}}{\tilde{\omega}_{\text{ph}}} \frac{\alpha_e + \gamma}{\sqrt{(\alpha_R - \alpha_e - \gamma)^2 + \tilde{\omega}_{\text{ph}}^2}}.$$

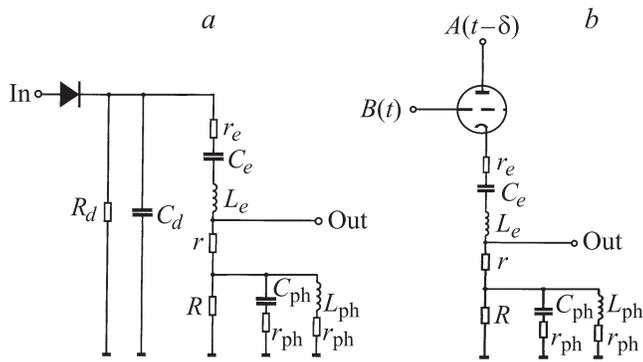
Определенная выше функция отклика  $f_{e-\text{ph}}(t)$  обращается в нуль при  $t = 0$ , поскольку в интеграле свертки при этом нижний предел интегрирования совпадает с верхним. Сама свертка представляет собой разность двух однотипных членов (заключенных в фигурные скобки) с разными весами, задаваемыми коэффициентами  $A$  и  $B$ . Каждый из этих членов содержит два экспоненциально спадающих со временем слагаемых, первое из которых соответствует электронному, а второе — фононному контуру. При этом фононный вклад осциллирует и экспоненциально затухает в каждой из фигурных скобок с одним и тем же показателем экспоненты, в то время как показатели экспонент, описывающих релаксацию электронного вклада, различаются. Такой же биэкспоненциальный характер имеет и затухание чисто электронного отклика вне фигурных скобок.

Надо заметить, что достаточно сложная зависимость приведенных выше формул от коэффициентов затухания может сильно менять вид функции отклика при

варьировании параметров. В частности, может изменяться фаза фононного отклика. Тем не менее можно проиллюстрировать интересные качественные особенности полученной функции отклика. Например, в случае большого электронного затухания  $\alpha_e \gg \omega_e$  оказывается, что  $\gamma = \sqrt{\alpha_e^2 - \omega_e^2} \approx \alpha_e$  и две части электронного вклада релаксируют с существенно различными временами. Поскольку эти части имеют вдобавок противоположные знаки, функция отклика может демонстрировать на коротких временах задержки характерный „горб“, сменяющийся медленным спадом. Эта характерная особенность функции отклика хорошо видна в экспериментальной кривой на рис. 2 и не получила до сих пор удовлетворительного объяснения. Более того, проведенная аналогия позволяет связать характерные времена нарастания и спада „горба“ с микроскопическими характеристиками возбужденной среды. Время нарастания „горба“ отвечает времени затухания электронного тока на частоте резонансных колебаний электронной плотности (т.е. на плазменной частоте), в то время как медленное время спада соответствует затуханию нерезонансных низкочастотных токов в электронной подсистеме.

Как видно из изложенного, радиотехническая аналогия позволяет получить новые полезные результаты там, где использование традиционных механических аналогий выглядит проблематично. Но при более внимательном рассмотрении оказывается, что механические аналогии обладают к тому же принципиальным недостатком, от которого свободна радиотехническая аналогия. Действительно, при обсуждении механических аналогий рассматривается обычно возбуждение маятника коротким ударом или быстрым перемещением точки его подвеса, в то время как возбуждение когерентных фононов в кристаллах производится коротким импульсом высокочастотного электромагнитного поля, содержащим по крайней мере несколько световых колебаний. В этой связи уместнее было бы рассматривать возбуждение механического маятника коротким импульсом периодической силы, частота колебаний которой на несколько порядков больше частоты собственных колебаний маятника. Ясно, что такая высокочастотная сила не может эффективно возбуждать колебания маятника, и требуется какой-то дополнительный механизм преобразования частоты вниз, который трудно ввести в механическую аналогию. Между тем именно вопрос о механизме возбуждения когерентных фононов является сегодня одним из самых широко обсуждаемых в литературе. Заметим, наконец, что наблюдение колебаний когерентных фононов производится в эксперименте путем тестирования пятна возбуждения кристалла вспомогательным пробным импульсом, который в механических аналогиях просто отсутствует.

В то же время намеченную выше радиотехническую аналогию можно провести значительно дальше, включив в нее и сам процесс возбуждения и регистрации когерентных фононов. Действительно, выше мы рассмотрели только вид импульсной функции отклика схемы, т.е.



**Рис. 3.** Две схемы возбуждения колебаний в резонансных контурах. *a* — выделение огибающей высокочастотного импульса при помощи диода, *b* — возбуждение колебаний при помощи смещения частот накачивающего и зондирующего импульсов.

ее реакцию на дельтаподобный импульс, но в реальном эксперименте мы возбуждаем кристалл коротким лазерным импульсом, ширина спектра которого хоть и велика, но все же значительно меньше частоты несущей волны, которая почти на три порядка больше частоты фонона. Такие высокочастотные колебания не могут сами по себе эффективно возбуждать фоновый колебательный контур. Для возбуждения необходимо либо осуществить преобразование частоты исходного возбуждающего импульса, либо отделить модулирующие частоты (огибающую импульса) от несущей. В соответствии с этим можно предложить к рассмотрению следующие две схемы, приведенные на рис. 3.

В схеме на рис. 3, *a* высокочастотный возбуждающий импульс подается на резонансные контуры через диод, который осуществляет детектирование (в радиотехническом смысле) сигнала, т.е. пропускает только огибающую импульса, способную уже эффективно возбуждать низкочастотные колебания. Описанный процесс возбуждения колебаний в некотором смысле аналогичен так называемому механизму смещения генерации когерентных фононов [8]. Согласно этому механизму, энергия возбуждающего импульса поглощается электронной подсистемой кристалла, что изменяет потенциалы, в которых находятся атомы (минимумы потенциалов сдвигаются), и это в свою очередь вызывает колебания решетки. Полная энергия, поглощенная электронной подсистемой, определяется огибающей импульса, которая для эффективного возбуждения когерентных колебаний решетки должна быть короче периода колебаний фонона. Точно так же и в схеме на рис. 3, *a* импульс заряжает через диод емкость  $C_d$ , постоянная времени разряда которой через сопротивление  $R_d$ , с одной стороны, гораздо больше периода колебаний несущей волны (так что энергия волны накапливается в этой емкости), а с другой — существенно меньше длительности импульса (для передачи без искажений его огибающей). Емкость  $C_d$ , разряжаясь через резонансную схему, и возбуждает колебания.

В схеме на рис. 3, *b* генерация низкочастотных колебаний осуществляется за счет смещения частот. Для этого резонансная цепь в данной схеме включена в анодную цепь лампы, на сетку которой подается „накачивающий“ импульс, а на анод, со сдвигом по времени — „зондирующий“. Если на сетке имеется только постоянное напряжение, то преобразования частоты не происходит, и зондирующий импульс, хотя и проходит через резонансную цепь, не может эффективно возбудить колебания. При подаче на сетку накачивающего импульса (который, как и в оптических экспериментах, может быть получен с помощью согласования делителя из того же исходного импульса, что и зондирующий) осуществляется смещение импульса с самим собой, т.е. гомодинирование [15]. При этом происходит эффективное возбуждение фоновый колебательного контура частотами, соответствующими огибающей высокочастотного импульса. Такой механизм возбуждения является аналогом механизма „ударного“ рамановского рассеяния при возбуждении когерентных фононов.

Интересно, что указанные радиотехнические аналоги обсуждаемых в литературе механизмов возбуждения когерентных фононов воспроизводят и некоторые их характерные особенности. Так, для механизма смещения характерно четкое разделение ролей накачки и зондирования. Накачивающий импульс переводит электронную подсистему кристалла в возбужденное состояние, которое в свою очередь возбуждает колебания решетки. Колебания возникают при этом независимо от присутствия зондирующего импульса, роль которого сводится только к регистрации имеющихся колебаний. Именно такими свойствами и обладает механизм возбуждения колебаний в схеме на рис. 3, *a*. В рамановском механизме возбуждение колебаний осуществляется совместным действием накачивающего и зондирующего импульсов, что характерно и для процесса гомодинирования в схеме на рис. 3, *b*.

Таким образом, радиотехническая аналогия позволяет детально рассмотреть механизмы возбуждения когерентных фононов коротким высокочастотным электромагнитным импульсом, причем напряжение является прямым аналогом напряженности электрического поля световой волны. На первый взгляд такая аналогия не может быть правильной, поскольку аналогом измеряемой в эксперименте величины (интенсивности света) должен быть квадрат напряжения, который изменяется с частотой, в 2 раза превышающей частоту фоновый колебательного контура, и является, кроме того, существенно неотрицательной величиной. Очевидно, что квадрат напряжения не может демонстрировать биполярного отклика. В реальных экспериментах мы измеряем величину, пропорциональную когерентной амплитуде (или скорости) смещения атомов, а не квадрату амплитуды (т.е. измеряется векторная, а не скалярная величина), что доказывается экспериментами по когерентному контролю колебаний [1,16,17]. Необходимо, однако, помнить, что применяемая в экспериментах

дифференциальная методика измеряет не саму интенсивность отраженного от кристалла зондирующего пучка, а ее изменения, связанные с наличием накачивающего импульса. Чтобы довести аналогию до конца, необходимо показать, что изменения среднего по времени квадрата напряжения, отраженного от входа схемы пробного импульса, будут зависеть от задержки между накачивающим и пробным импульсами в соответствии с функцией отклика нашей резонансной схемы.

Амплитуда отраженной волны определяется, как известно, соотношением между входным импедансом схемы и волновым сопротивлением подключенной к ней линии. Поскольку обе схемы на рис. 3 содержат на входе нелинейный элемент (диод на рис. 3, *a* и электронная лампа на рис. 3, *b*), их входной импеданс пусть в очень малой степени, но будет зависеть от напряжения выходного сигнала. Отраженная мощность пробного пучка будет, следовательно, зависеть от среднего по времени квадрата выходного напряжения.

Покажем на простом модельном примере, что изменения среднего по времени квадрата напряжения на выходе схемы (рис. 3, *b*) действительно обладают биполярным и биэкспоненциальным характером как функция задержки между накачивающим и зондирующим импульсами. Сигнал  $S(t)$ , получающийся в результате гомодинирования, записывается как свертка

$$S(t) = \int_0^{\infty} B(t - \tau)A(t - \delta - \tau)f(\tau)d\tau, \quad (6)$$

где  $A(t) = \int A(\omega)e^{-i\omega t}d\omega$  — зондирующий, а  $B(t) = \int B(\omega)e^{-i\omega t}d\omega$  — накачивающий импульсы. Этот сигнал пропорционален напряжению на выходе нашей схемы, поскольку мы считаем, что в отсутствие хотя бы одного из импульсов ток через лампу равен нулю. Здесь  $\delta$  — временная задержка зондирующего импульса относительно накачивающего, а  $f(\tau)$  — функция отклика среды (резонансных контуров). Видно, что при гомодинировании традиционные представления о том, что накачивающий импульс возбуждает среду, а зондирующий тестирует ее состояние, оказываются неприменимыми. Как возбуждение среды, так и зондирование ее состояния осуществляется совместным воздействием накачивающего и зондирующего импульсов. Ясно, что такое возможно, только если накачивающий и зондирующий импульсы оба присутствуют на кристалле как в момент его возбуждения, так и в момент зондирования, что как будто бы противоречит постановке эксперимента. Здесь необходимо, однако, вспомнить, что мы используем в экспериментах лазер с синхронизацией мод, форма огибающей импульса которого в простейшей модели описывается формулой  $P(t) = \frac{\sin N\omega_f t}{\sin \omega_f t}$ , где  $N$  — количество синхронизованных мод,  $\omega_f$  — фундаментальная частота лазерного резонатора. Полная энергия, содержащаяся в промежутке между двумя главными импульсами, сравнима по величине с

энергией главного импульса, так что принципиальное для гомодинирования требование одновременного наличия на кристалле накачивающего и зондирующего импульсов как в момент возбуждения, так и в момент тестирования кристалла оказывается выполненным.

Приведем окончательный результат для простой модели импульсов лазера с синхронизацией мод, в которой накачка и зондирование записываются как

$$A(t) = A_0 e^{-i\omega_f N t} \sum_0^N e^{-i\omega_f t},$$

$$B(t) = B_0 e^{-i\omega_f N t} \sum_0^N e^{-i\omega_f t}. \quad (7)$$

В типичном эксперименте накачка–зондирование мы измеряем сигнал медленным фотодиодом, т.е. определяем средний интегральный за некоторый промежуток времени  $2T$  квадрат сигнала

$$D(\delta) = 2T \langle S^2(t) \rangle \cong \frac{256\pi^7 |B_0 A_0|^2}{\omega_f (1 - \cos(\omega_f \delta))} \times \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} |f(\Omega)|^2 d\Omega - \operatorname{Re} \int_{-\infty}^{\infty} |f(\Omega)|^2 e^{i[\Omega - (N+1)\omega_f]\delta} d\Omega \right\}. \quad (8)$$

Это выражение максимально при максимальном временном перекрытии импульсов накачки и зондирования  $\delta = 0$  и существенно зависит от числа синхронизованных мод  $N$  или, другими словами, от ширины спектра огибающей импульса лазера. Чем больше  $N$  (т.е. чем короче импульс), тем больше амплитуда отклика на частоте  $\Omega$ . Если же  $\omega_f(N+1) = \Omega$ , отклик на частоте  $\Omega$  обращается в нуль для всех временных задержек  $\delta$ . Здесь

$$|f(\Omega)|^2 = |K(i\Omega)|^2 = \frac{4\alpha_e^2 \Omega^2}{(\Omega^2 + a^2)(\Omega^2 + b^2)}$$

$$\times \left[ \frac{r^2}{r_e^2} + \frac{R(R+2r)}{r_e^2} \frac{4\alpha_R^2 \Omega^2}{([\Omega - \tilde{\omega}_{ph}]^2 + \alpha_R^2)([\Omega + \tilde{\omega}_{ph}]^2 + \alpha_R^2)} \right],$$

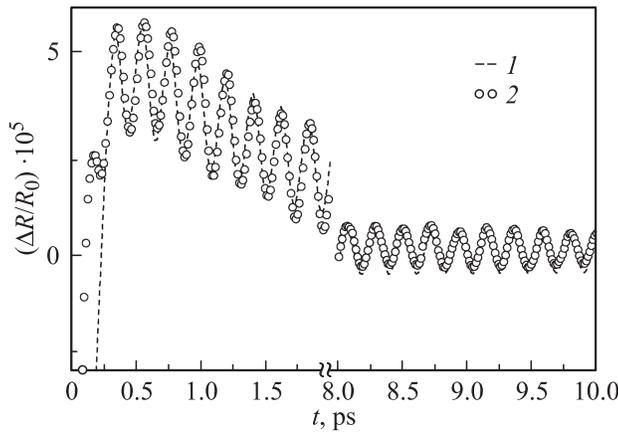
$$G = \int_{-\infty}^{\infty} |f(\Omega)|^2 e^{i\Omega\delta} d\Omega = \frac{4\pi\alpha_e^2}{a^2 - b^2} \frac{r^2}{r_e^2} (be^{b\delta} - ae^{a\delta})$$

$$- 16\pi R(R+2r) \frac{\alpha_e^2 \alpha_R^2}{r_e^2}$$

$$\times \left[ \frac{b^3 e^{b\delta}}{(a^2 - b^2)[(\tilde{\omega}_{ph} + b)^2 + \alpha_R^2(\alpha_R^2 + 2(\tilde{\omega}_{ph} - b)^2)]} - \frac{a^3 e^{a\delta}}{(a^2 - b^2)[(\tilde{\omega}_{ph} + a)^2 + \alpha_R^2(\alpha_R^2 + 2(\tilde{\omega}_{ph} - a)^2)]} \right]$$

$$+ \frac{z^4}{\alpha_R(z^2 + a^2)(z^2 + b^2)((z + \tilde{\omega}_{ph})^2 + \alpha_R^2)} e^{iz\delta} + \text{c.c.} \quad (9)$$

где  $z = \tilde{\omega}_{ph} + i\alpha_R$ ,  $a = -\alpha_e + \gamma$ ,  $b = -\alpha_e - \gamma$ . Интеграл от квадрата модуля Фурье-образа функции отклика явля-



**Рис. 4.** Результат подгонки данных, приведенных на рис. 2, интегралом  $G$  (см. текст). 1 — подгонка, 2 — эксперимент.  $\alpha_e = 8.75 \text{ ps}^{-1}$ ,  $\gamma = 8.25 \text{ ps}^{-1}$ , период осцилляций  $0.212 \text{ ps}$ ,  $\alpha_R = 0.12 \text{ ps}^{-1}$ .

ется частным случаем выписанного выше интеграла при  $\delta = 0$ . Мы видим, что интеграл  $G$  является обратным Фурье-преобразованием спектра мощности функции отклика. Интеграл  $G$  в (9) является вещественной величиной, поэтому

$$\begin{aligned} \text{Re} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i[\Omega - \omega_f(N+1)]\delta} |f(\Omega)|^2 d\Omega &= \cos(\omega_f(N+1)\delta) \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\Omega\delta} |f(\Omega)|^2 d\Omega \end{aligned} \quad (10)$$

и (8) может быть записано в виде

$$\begin{aligned} D(\delta) &\cong \frac{256\pi^7 |B_0 A_0|^2}{\omega_f(1 - \cos(\omega_f\delta))} \\ &\times \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} |f(\Omega)|^2 d\Omega - \cos(\omega_f(N+1)\delta) G \right\}. \end{aligned} \quad (11)$$

Знаменатель в этом выражении слабо зависит от задержки, поэтому в дифференциальной методике будет измеряться величина

$$\Delta D(\delta) \cong - \frac{256\pi^7 |B_0 A_0|^2 \cos(\omega_f(N+1)\delta)}{\omega_f(1 - \cos(\omega_f\delta))} G. \quad (12)$$

Последняя формула дает измеряемую в эксперименте кривую сигнала. Видно, что этот сигнал пропорционален произведению квадратов амплитуд накачивающего и зондирующего импульсов. Более того, в (12) накачивающий и зондирующий импульсы входят совершенно симметрично; другими словами, какой из пучков является накачивающим, а какой зондирующим, заранее никак не выделено, что и наблюдается в эксперименте.

Рассматривая (12), можно заметить, что информацию об отклике среды несет интеграл  $G$ , в то время как стоящий перед ним множитель, а также зависящий от задержки знаменатель связаны с формой импульса лазера. Знаменатель является очень существенным на коротких временах задержки (масштаба длительности лазерного импульса), но на больших задержках он приводит к сравнительно небольшому изменению кривой. Множитель  $\cos(\omega_f(N+1)\delta)$  должен был бы приводить к модуляции экспериментальной кривой с частотой порядка ширины полосы огибающей импульса. Такая модуляция действительно может наблюдаться в эксперименте, однако только в области очень коротких временных задержек порядка нескольких длительностей лазерного импульса [18]. Отсутствие модуляции на больших задержках связано, на наш взгляд, с эффектами, не учитываемыми принятой нами упрощенной моделью лазерного импульса. Для точного расчета следует воспользоваться формой импульса в виде гиперболического секанса [19] и учесть фазовую модуляцию (чирп) лазерных импульсов. Поэтому вряд ли разумно требовать от нашей модели хорошего описания эксперимента в области малых временных задержек, где точный вид лазерного импульса является существенным. Что же касается больших задержек, то для них интеграл  $G$  дает очень неплохое описание экспериментальной кривой, как показано на рис. 4.

Из выписанных выше формул (9) следует, что интеграл  $G$  состоит из электронных (неосциллирующих) и фононного (осциллирующего) слагаемых. Электронный вклад имеет биэкспоненциальный, а фононный — моноэкспоненциальный характер затухания. Таким образом, изменения среднего квадрата выходного сигнала действительно зависят от задержки, причем эта зависимость напоминает по виду функцию отклика резонансных контуров. В пределе слабой связи между электронным и фононным контурами  $\alpha_R \rightarrow 0$  предэкспоненциальные множители в фононном слагаемом становятся вещественными величинами, и фононные колебания можно представить как  $\cos(\omega_{ph}\delta)$ . Увеличение  $\alpha_R$  будет приводить помимо всего прочего и к сдвигу начальной фазы возбуждаемых фононов.

### 3. Сравнение радиотехнической модели с экспериментом

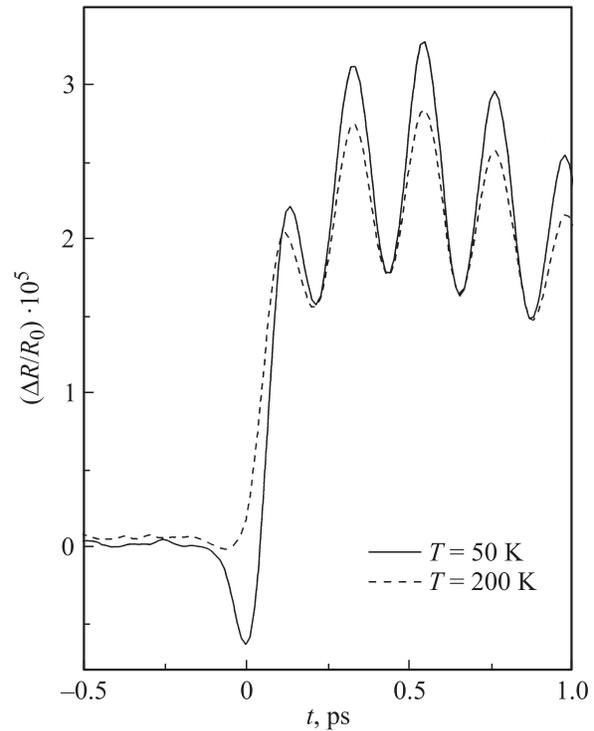
Для иллюстрации возможностей предлагаемой радиотехнической аналогии обсудим несколько типичных времяразрешенных экспериментов и постараемся объяснить ряд наблюдаемых эффектов, которые до настоящего времени не получили должного рассмотрения. Мы ограничим себя рассмотрением полуметаллов типа висмута и сурьмы, кристаллические структуры которых могут быть представлены как результат растяжения простой кубической решетки вдоль одной из пространственных диагоналей, сопровождаемого относительным

сдвигом двух соседних ГЦК-подрешеток вдоль этой же диагонали [20,21]. Подобная деформация может быть представлена как сумма внутреннего (пайерлсова) и тригонального сдвигов. Из шести фононов этих полуметаллов [22] три оптических фонона  $A_{1g} + E_g$  являются комбинационно-активными [23]; к настоящему времени они детально исследованы в ряде экспериментов, проведенных во временной области [3,5,8–10,24–38], включая измерения для висмута вблизи предела стабильности Линдемана [16,27–36]. Полносимметричный  $A_{1g}$ -фонон, который обычно доминирует во время разрешенного отклика, образуется противофазными смещениями атомов элементарной ячейки вдоль диагонали, относительно которой происходит деформация. Этот фонон является пайерлсовой модой, модулирующей внутренний сдвиг двух ГЦК-подрешеток и делающий висмут и сурьму полуметаллами. В недеформированной кубической решетке данный фонон соответствует продольному акустическому фонону  $R$  точки зоны Бриллюэна. При комнатной температуре в висмуте частота полносимметричного фонона равна 2.95 THz, а в сурьме — 3.6 THz. Детальное описание экспериментальных установок, использованных для получения время разрешенных данных, можно найти в [5,13,17,29].

Как видно из рис. 2, на котором представлен время разрешенный отклик монокристалла сурьмы, максимум отклика  $\frac{\Delta R}{R_0}$  смещен по времени относительно момента возбуждения, задаваемого автокорреляционной функцией импульса накачки. Эта задержка вызвана наличием биэкспоненциального члена в затухании электронного вклада. Если осуществить подгонку время разрешенного отклика с учетом биэкспоненциального и биполярного затухания электронного вклада, результат которой приведен на рис. 4, то видно, что эта задержка, приводящая к „горбу“ в электронном отклике, хорошо воспроизводится.

Знание модельного вида кривой отклика позволяет прежде всего естественным образом объяснить биполярный характер экспериментальных кривых и достаточно много извлечь из эксперимента. Действительно, мы можем, например, утверждать, что время затухания электронов имеет масштаб 100 fs, что приводит к быстрому уменьшению со временем отрицательного вклада в биэкспоненциальном отклике и возникновению характерного положительного „горба“. Медленная экспонента, с которой электронная часть отклика релаксирует к нулю на больших временах задержки, имеет характерное время 2 ps. Она отвечает времени затухания макроскопического электронного тока, возбужденного лазерным импульсом. Другими словами, короткое время может соответствовать времени релаксации электронов вблизи Ферми-поверхности, а медленное — время релаксации всей Ферми-поверхности к равновесному состоянию.

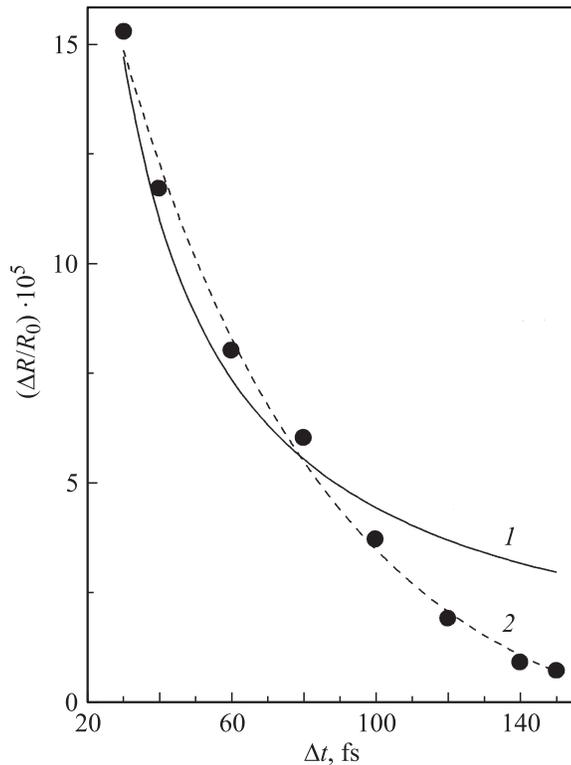
На рис. 5 приведен время разрешенный отклик монокристалла сурьмы при двух различных температурах. Видно, что изменение температуры, которое меняет



**Рис. 5.** Разрешенное во времени нормированное дифференциальное отражение  $\Delta R/R_0$  монокристалла Sb, полученное при  $T = 50$  и  $200$  K. Длина волны излучения 810 nm, длительность импульса 60 fs, частота повторения импульсов 80 MHz, средняя мощность накачки 10 mW.

свойства как электронной, так и решеточной подсистем, приводит к модификации сигнала отклика вблизи нулевых временных задержек: при низкой температуре начальная полярность сигнала отрицательная, тогда как при повышении температуры она меняет знак. Наиболее естественным объяснением смены полярности является зависимость затухания Ландау от температуры: при низкой температуре затухание мало, однако оно возрастает с ростом температуры. Наша модель не может, как уже отмечалось выше, претендовать на численное описание эксперимента в области коротких временных задержек, но она дает качественное объяснение наблюдаемой температурной зависимости, поскольку при повышении электронного затухания отрицательный вклад на модельной кривой стягивается ближе к нулевой точке. Значительное сужение отрицательного вклада может привести к его исчезновению в экспериментальной кривой, если принять во внимание конечное временное разрешение установки.

Для того чтобы проверить предсказание модели относительно зависимости когерентной амплитуды от числа синхронизованных мод возбуждающего импульса, определяющих ширину спектра огибающей, будем варьировать длительность импульса возбуждения, оставляя его энергию, а также длительность зондирующего импульса постоянными [17]. Поскольку для спектрально-



**Рис. 6.** Зависимость когерентной амплитуды полносимметричного фонона в сурьме от длительности возбуждающего импульса. 1, 2 — подгонка экспериментальных данных гиперболической и экспоненциальной функциями соответственно.

ограниченного импульса длительность обратно пропорциональна ширине спектра, данный эксперимент позволит исследовать искомую зависимость. Результат эксперимента для случая полносимметричного фонона сурьмы, возбуждаемого импульсами малой энергии, представлен на рис. 6. Видно, что когерентная амплитуда экспоненциально спадает с ростом длительности возбуждения, что качественно подтверждает предсказание модели. Количественные расхождения между экспериментом и нашей упрощенной моделью лазерного импульса связаны, по-видимому, с уже отмечавшимся выше фактом отличия фронтов модельного импульса от экспоненциальных.

Завершая обсуждения, заметим, что радиотехническая модель открывает возможность анализировать экспериментальные результаты, полученные при варьировании таких параметров возбуждающего импульса, как чирп несущей частоты [39] и форма огибающей [17].

#### 4. Заключение

Рассмотрена модель генерации когерентных фононов в непрозрачных кристаллах сверхкороткими лазерными импульсами, базирующаяся на радиотехнической аналогии с двумя связанными  $RLC$ -конттурами. В предложенной модели один из контуров описывает электронную

подсистему кристалла, а второй — решеточную подсистему. Сравнением с экспериментальными данными показано, что эта аналогия позволяет описать ряд характерных свойств когерентных фононов и эффективно разделить вклады неравновесных носителей заряда и когерентных фононов в сигнал времяразрешенного отражения.

#### Список литературы

- [1] A.M. Weiner, D.E. Leaird, G.P. Wiederrecht, K.A. Nelson. *Science* **247**, 1217 (1990).
- [2] L. Dhar, J.A. Rogers, K.A. Nelson. *Chem. Rev.* **94**, 167 (1994).
- [3] R. Merlin. *Solid State Commun.* **102**, 207 (1997).
- [4] T. Dekorsy, G.C. Cho, H. Kurz. In: *Light scattering in solids VIII* / Eds M. Cardona, G. Güntherodt. Springer, Berlin (2000). P. 169.
- [5] О.В. Мисочко. *ЖЭТФ* **119**, 285 (2001).
- [6] Р. Глаубер. В сб.: *Квантовая оптика и квантовая радиофизика* / Под ред. О.В. Богданкевича, О.Н. Крохина. Мир, М. (1966). С. 91.
- [7] Д.А. Киржниц, Ю.А. Непомнящий. *ЖЭТФ* **59**, 6(12), 2201 (1970).
- [8] H.J. Zeiger, J. Vidal, T.K. Cheng, E.P. Ippen, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
- [9] G.A. Garrett, T.F. Albrecht, J.F. Whitaker, R. Merlin. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3661 (1996).
- [10] T.E. Stevens, J. Kuhl, R. Merlin. *Phys. Rev. B* **65**, 144 304 (2002).
- [11] R. Scholz, T. Pfeifer, H. Kurz. *Phys. Rev. B* **47**, 16 229 (1993).
- [12] A.V. Kuznetsov, C.J. Stanton. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3243 (1994).
- [13] O.V. Misochko, K. Ishioka, M. Hase, M. Kitajima. *Phys. Lett. A* **321**, 381 (2004).
- [14] А.А. Андронов, А.А. Витт, С.Э. Хайкин. *Теория колебаний*. Наука, М. (1981). 918 с.
- [15] Е.И. Манаев. *Основы радиотехники*. Радио и связь, М. (1985). 504 с.
- [16] О.В. Мисочко, Р. Лу, М. Хасе, М. Китажима. *ЖЭТФ* **131**, 275 (2007).
- [17] O.V. Misochko, M.V. Lebedev, H. Shaeffer, T. Dekorsy. *J. Phys.: Cond. Matter.* **19**, 406 220 (2007).
- [18] М.В. Лебедев, О.В. Мисочко, Т. Декорси, Н. Георгиев. *ЖЭТФ* **127**, 308 (2005).
- [19] J. Herrmann. *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 3, 498 (1994).
- [20] Л.А. Фальковский. *УФН* **94**, 3 (1968).
- [21] В.С. Эдельман. *УФН* **123**, 257 (1977).
- [22] J.L. Yarnell, J.L. Warren, R.G. Wenzel, S.H. Koenig. *IBM J.* **8**, 234 (1964).
- [23] J.B. Renucci, W. Richter, M. Cardona, E. Schonherr. *Phys. Status Solidi A* **60**, 299 (1973).
- [24] T.K. Cheng, J. Vidal, H.J. Zeiger, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus, E.P. Ippen. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1923 (1991).
- [25] M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, S. Nakashima, K. Sakai. *Phys. Rev. B* **58**, 5448 (1998).
- [26] K. Ishioka, M. Kitajima, O.V. Misochko. *J. Appl. Phys.* **100**, 093 501 (2006).
- [27] M.F. DeCamp, D.A. Reis, P.H. Bucksbaum, R. Merlin. *Phys. Rev. B* **64**, 092 301 (2001).
- [28] M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, K. Mizoguchi. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067 401 (2002).

- [29] О.В. Мисочко, М. Хасе, М. Китажима. Письма в ЖЭТФ **78**, 85 (2003).
- [30] K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, J. Blums, A. Cavalleri, C. Dietrich, A. Tarasevitch, I. Uschmann, E. Förster, M. Kammler, M. Horn-von-Hoegen, D. von der Linde. Nature (London) **422**, 287 (2003).
- [31] O.V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, M. Kitajima. Phys. Rev. Lett. **92**, 197401 (2004).
- [32] É.D. Murray, D.M. Fritz, J.K. Wahlstrand, S. Hahy, D. Reis. Phys. Rev. B **72**, 060301(R) (2005).
- [33] О.В. Мисочко, М. Хасе, К. Ишиока, М. Китажима. Письма в ЖЭТФ **82**, 478 (2005).
- [34] O.V. Misochko, K. Ishioka, M. Hase, M. Kitajima. J. Phys.: Cond. Matter **18m** 10571 (2006).
- [35] O.V. Misochko, K. Ishioka, M. Hase, M. Kitajima. J. Phys.: Cond. Matter **19**, 156227 (2007).
- [36] D.M. Fritz, D.A. Reis, B. Adams, R.A. Akre, J. Arthur, C. Blome, P.H. Bucksbaum, A.L. Cavalieri, S. Engemann, S. Fahy, R.W. Falcone, P.H. Fuoss, K.J. Gaffney, M.J. George, J. Hajdu, M.P. Hertlein, P.B. Hillyard, M. Horn-von-Hoegen, M. Kammler, J. Kaspar, R. Kienberger, P. Krejcik, S.H. Lee, A.M. Lindenberg, B. McFarland, D. Meyer, T. Montagne, É.D. Murray, A.J. Nelson, M. Nicoul, R. Pahl, J. Rudati, H. Schlarb, D.P. Siddons, K. Sokolowski-Tinten, Th. Tschentscher, D. von der Linde, J.B. Hastings. Science **315**, 633 (2007).
- [37] G.A. Garrett, A.G. Rojo, A.K. Sood, J.F. Whitaker, R. Merlin. Science **275**, 1638 (1997).
- [38] E.S. Zijlstra, L.L. Tatarinova, M.E. Garcia. Phys. Rev. B **74**, 220301 (2006).
- [39] О.В. Мисочко, С.В. Андреев, В.О. Компанец, Ю.А. Матвеец, А.Г. Степанов, С.В. Чекалин, Т. Dekorsy. ФТТ **49**, 2070 (2007).