

# Влияние фазовой модуляции лазерного импульса на генерацию когерентного полносимметричного фонона в монокристалле теллура

© О.В. Мисочко, С.В. Андреев\*, В.О. Компанец\*, Ю.А. Матвеец\*,  
А.Г. Степанов\*, С.В. Чекалин\*, Т. Dekorsy\*\*

Институт физики твердого тела Российской академии наук,  
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

\* Институт спектроскопии Российской академии наук,  
142190 Троицк, Московская обл., Россия

\*\* Konstanz University, Physics Department,  
78457 Konstanz, Germany

E-mail: misochko@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 14 апреля 2007 г.)

Изучено влияние фазовой модуляции, приводящей к чирпу сверхкороткого лазерного импульса, на генерацию когерентного  $A_1$ -фонона в Те. Обнаружена зависимость амплитуды когерентных осцилляций от знака и величины чирпа импульса: с увеличением чирпа амплитуда осцилляций уменьшается, при этом эффект для положительного чирпа в 2 раза больше, чем для отрицательного. Исследован разрешенный по частоте отклик спектрально-ограниченного импульса, который выявил различие осцилляций и релаксационного отклика для стоксовой и антистоксовой частот. Обнаруженные явления могут быть использованы для когерентного управления динамикой кристаллической решетки.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 06-02-16186-а, 07-02-00148 и 05-02-17338-а) и Немецкого научно-исследовательского сообщества (грант DE 567/9).

PACS: 78.47.+p, 74.72.Bk, 74.76.Bz, 74.25.Kc

## 1. Введение

В конце прошлого века начались интенсивные исследования отклика конденсированных сред на воздействие сверхкороткого лазерного импульса, в котором энергия сконцентрирована в малом временном и пространственном интервале. Доступ к сверхбыстрой динамике решетки был обеспечен наблюдением когерентных фононов (КФ), которые проявляются как осцилляции в отражении света после воздействия на кристалл сверхкороткого лазерного импульса [1]. Использование лазерных импульсов с большой энергией позволило достичь таких амплитуд решеточных смещений, при которых реализуется нелинейный режим колебаний, порождающий качественно новые эффекты, многие из которых до сих пор не до конца осмыслены [2–8]. Несмотря на то что к настоящему времени проведены многочисленные исследования [1–8], направленные на выяснение природы КФ и механизмов возникновения когерентности решеточной подсистемы в кристаллах с большим линейным поглощением, ни в одной из этих работ не анализировалось влияние фазовой модуляции лазерного импульса на параметры когерентных осцилляций. Фазовая модуляция, приводящая к чирпу несущей частоты лазерного импульса, т.е. к зависимости „мгновенной“ частоты электромагнитного поля от времени, имеет огромный потенциал в исследованиях сверхбыстрой динамики решетки, поскольку при использовании методов когерентного контроля позволяет разделить влияние крутизны фронта лазерного импульса и его спектра на генерацию КФ. Данное обстоятельство обусловлено

тем, что чирп частоты, вызванный фазовой модуляцией, приводит к изменению пространственно-временных характеристик лазерного импульса, одной из которых является асимметрия формы (передний фронт становится круче, тогда как задний фронт удлиняется, и наоборот), в пределах которой длинноволновые составляющие опережают или отстают от коротковолновых составляющих в зависимости от знака чирпа. Существующий пробел в исследовании быстрой динамики непрозрачных сред с дальним порядком (кристаллов) поразителен, поскольку исследования влияния чирпа давно и успешно проводятся для молекулярных и физико-химических систем, а их результаты широко используются для управления (контроля) квантовыми состояниями молекул и химических реакций [9]. В этих исследованиях показано, что наблюдается существенное влияние чирпа на амплитуду возбуждаемых колебательных мод. По аналогии можно ожидать возможного проявления влияния чирпа лазерного импульса и на параметры когерентных колебаний в кристаллах, особенно при больших (на уровне предельно возможных) их амплитудах, при которых начинают сказываться эффекты, связанные с ангармонизмом колебаний. Вопрос этот может оказаться важным для изучения быстрой динамики решетки, так как сверхкороткие импульсы, имеющие соответственно широкий спектр, на пути к образцу легко приобретают положительный чирп при прохождении системы линз, делительных пластинок, ослабителей или окон криостата. Помимо упомянутого прикладного значения исследования генерации КФ импульсами с контролируемым чирпом могут дать дополнительную информацию о

самом механизме возникновения решеточной когерентности и тем самым разрешить широко дискутируемую проблему генерации КФ в непрозрачных средах [1–8]. Наше исследование имело целью восполнить данный пробел — начать детальное изучение зависимости когерентных осцилляций от величины и знака chirpa лазерного импульса. В данной работе впервые, насколько нам известно, экспериментально продемонстрировано влияние chirpa фемтосекундного лазерного импульса на амплитуду когерентных колебаний в кристалле теллура при высоких уровнях возбуждения, близких к предельно допустимым.

## 2. Экспериментальная часть

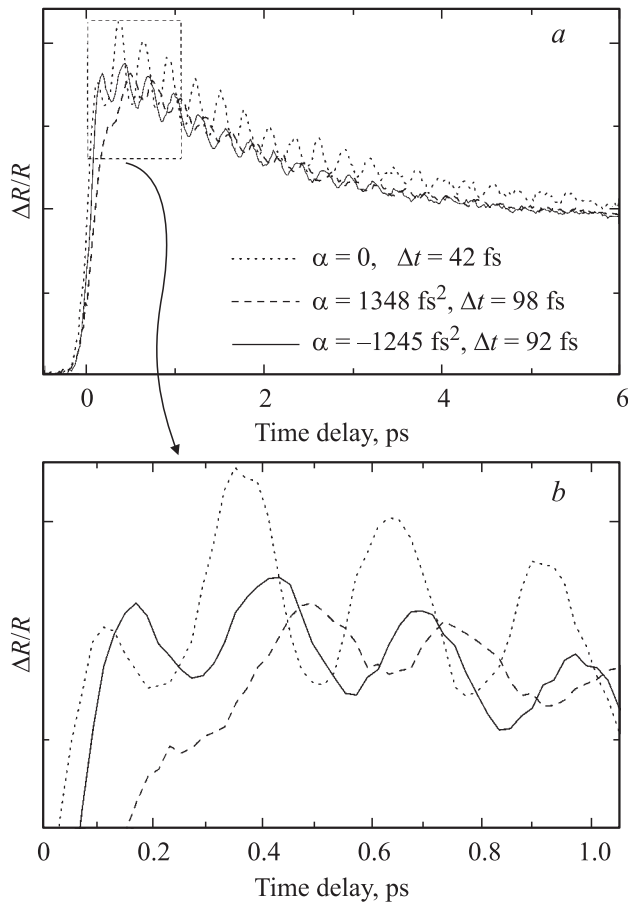
В качестве образца для исследования влияния chirpa на когерентную динамику решетки был выбран теллур. Этот узкозонный полупроводник может служить модельной системой, поскольку его электронная и фононная подсистемы достаточно детально изучены как теоретически, так и экспериментально, в том числе с использованием метода накачки–зондирования сверхкороткими импульсами [2,3,8]. Теллур кристаллизуется в  $D_3^4$ -структуре, в которой три атома элементарной ячейки образуют виток спиральной цепочки, ориентированной вдоль тригональной оси. Нормальный вектор полносимметричного  $A_1$ -фонона соответствует движению атомов, изменяющему радиус спирали и сохраняющему симметрию решетки.

Исследования влияния chirpa на амплитуду когерентных колебаний проводились по стандартной методике накачка–зондирование с использованием лазерных импульсов с длиной волны 800 nm, полученных в результате усиления в регенеративном усилителе на кристалле Ti:сапфир (Spectra Physics, „Spitfire“) импульсов от задающего генератора (Spectra Physics, „Tsunami“). Частота следования лазерных импульсов после усилителя составляла 1 kHz, а энергия в импульсе  $\approx 0.7$  mJ. После ослабления до необходимого уровня возбуждающий и зондирующий пучки с соотношением интенсивностей примерно 20:1 фокусировались с помощью тонких кварцевых линз и сводились вместе под углом  $\approx 4^\circ$  в исследуемой области на плоскости кристалла, содержащей тригональную и бисекторную оси. Диаметры пятен возбуждающего и зондирующего пучков в месте их взаимодействия с образцом составляли примерно 100 и 40  $\mu\text{m}$  соответственно. Плоскости поляризации пучков были взаимно перпендикулярны, что позволяло с помощью скрещенного поляризатора, установленного перед фотоприемником, регистрирующим зондирующее излучение, значительно уменьшить влияние рассеянного света от возбуждающего пучка. В экспериментах измерялся разностный (в присутствии и в отсутствие возбуждающего импульса излучения) коэффициент отражения зондирующего излучения. Для этого возбуждающий пучок модулировался с помощью механического прерывателя со скважностью единица и частотой 500 Hz. Наблюдение

динамики КФ осуществлялось путем введения в возбуждающий луч регулируемой оптической линии задержки с дискретностью изменения времени задержки  $\approx 1$  fs. Величина и знак chirpa лазерного импульса изменялись путем отстройки компрессора импульсов в фемтосекундном усилителе относительно положения, соответствующего минимальной длительности выходящих из усилителя (спектрально-ограниченных) импульсов. Положительно chirпованный импульс имеет низкочастотные компоненты на переднем и высокочастотные на заднем фронте, тогда как для отрицательно chirпованного случая порядок следования частот обращен. Chirp оценивался по изменению длительности импульса, которая в диапазоне  $\leq 100$  fs измерялась с помощью автокоррелятора, а при больших величинах оценивалась по времени отстройки компрессора импульсов (времени работы шагового двигателя) в фемтосекундном усилителе относительно положения, соответствующего минимальной длительности выходящих из усилителя импульсов. Величина спектрального chirpa  $\alpha$  оценивалась по формуле  $\alpha = \pm 0.36\tau_0 \sqrt{\tau_c^2 - \tau_0^2}$ , справедливой для гауссова импульса, в которой  $\tau_0$  — длительность спектрально-ограниченного импульса, а  $\tau_c$  — длительность chirпованного импульса. Наблюдение влияния chirpa на амплитуду когерентных осцилляций осуществлялось при интенсивности возбуждающего излучения, близкой к предельно допустимой, которая определялась экспериментально по отсутствию деградации коэффициента отражения от образца за время регистрации одной кинетики сигнала (примерно 20 min). Все измерения сверхбыстрой динамики решетки монокристалла теллура проводились при комнатной температуре, а нулевая задержка определялась по максимуму производной регистрируемого сигнала отражения.

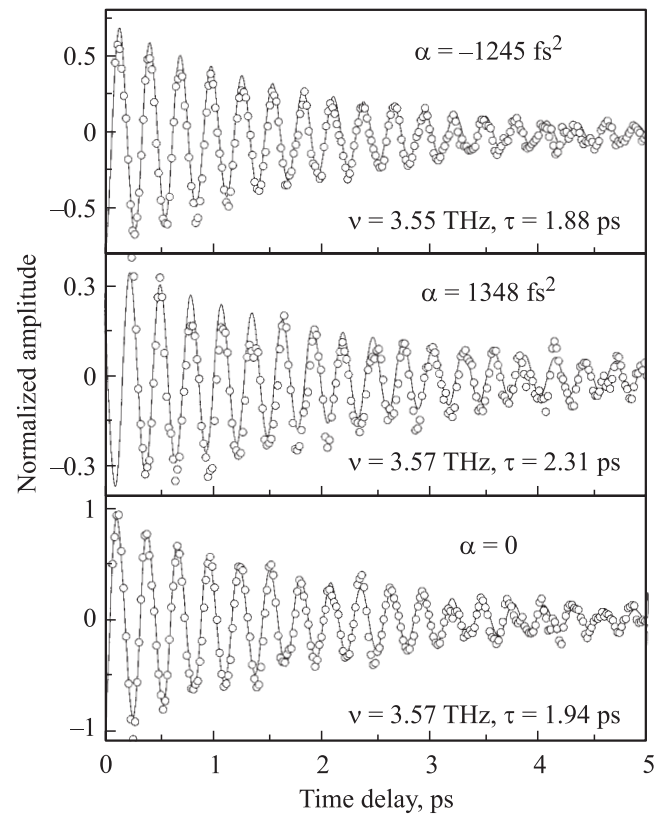
## 3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 показан типичный оптический отклик, наблюдаемый при возбуждении с последующим зондированием монокристалла теллура лазерными импульсами с различной величиной и знаком частотного chirpa. Во всех случаях возбужденное состояние кристалла релаксирует к равновесному состоянию за времена порядка десятка пикосекунд и на эту релаксацию наложены быстрые осцилляции, порождаемые полносимметричным  $A_1$ -КФ [2,6,8]. Различия наблюдаются в величине фотоиндуцированного сигнала, соотношении между осциллирующей и релаксационной (неосциллирующей) компонентами сигнала, а также в амплитуде когерентных осцилляций. Последнее становится более очевидным после исключения путем математической обработки релаксационной компоненты, обычно приписываемой электронным возбуждениям. Результат этой обработки представлен на рис. 2. Подгонка осциллирующей компоненты затухающей гармонической функцией  $A \exp(-t/\tau) \sin(2\pi\nu + \phi)$  позволяет определить основные параметры осцилляций (альтернативным методом

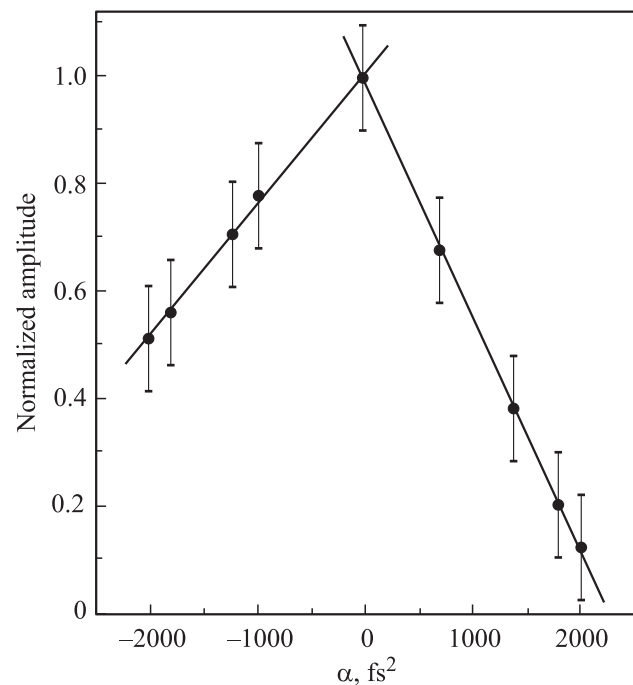


**Рис. 1.** *a)* Зависимость относительного разностного отражения  $\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(t) - R(t < 0)}{R(t < 0)}$  зондирующего импульса для монокристалла Те от времени задержки между импульсами накачки и зондирования при изменении чирпа  $\alpha$  лазерного импульса, указанного для каждого сигнала (для каждого значения чирпа приведена также длительность импульса  $\Delta t$ ). *b)* Осцилляции при малых временных задержках в большем масштабе.

является анализ спектра Фурье-преобразованного сигнала, который также проводился и дал идентичные результаты). Очевидно, что амплитуда осцилляций зависит от величины и знака чирпа. Увеличение амплитуды для случая возбуждения спектрально-ограниченным импульсом является естественным, поскольку более короткий импульс обеспечивает большую пиковую интенсивность поля. Однако различие для импульсов с различным знаком чирпа, для которых длительность примерно одинакова, не может быть объяснено подобным образом. Увеличение абсолютной величины чирпа приводит к тому, что скорость уменьшения амплитуды осцилляций происходит вдвое быстрее для положительного чирпа, чем для отрицательного. Эта асимметрия, наблюдаемая на рис. 3, свидетельствует о неэквивалентности положительного и отрицательного чирпов, тем самым доказывая, что наблюдаемый эффект не связан с увеличением длительности импульса. Таким образом, очевидно, что в условиях данного эксперимента отрицательно



**Рис. 2.** Осцилляции сигнала зондирования для разной величины чирпа (точки) и результат подгонки с использованием формулы гармонического демпфированного осциллятора (сплошные линии). Частота  $\nu$  и время затухания  $\tau$  осцилляций, полученные в результате подгонки, указаны на рисунке.

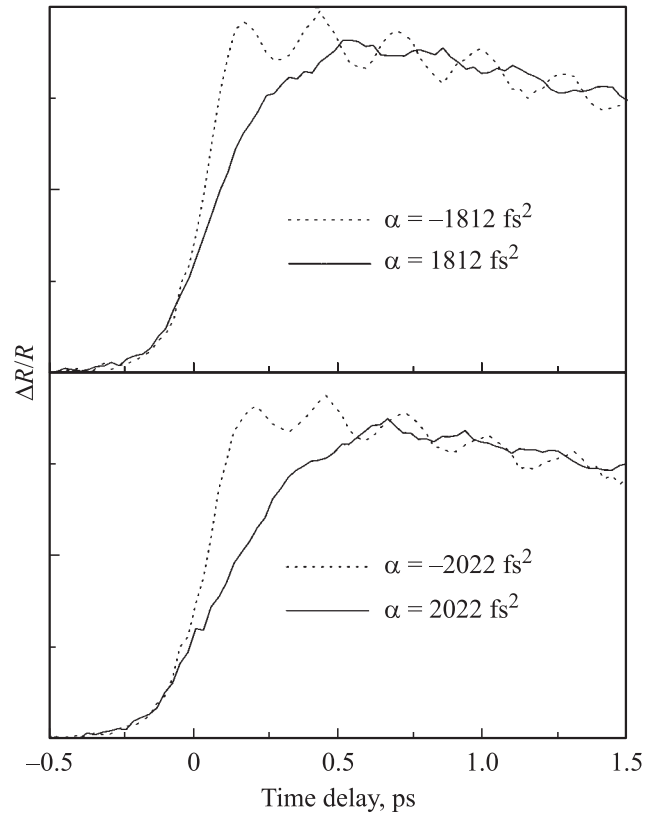


**Рис. 3.** Зависимость нормированной когерентной амплитуды осцилляций от чирпа лазерного импульса. Прямые — результат линейной подгонки (отдельно для положительного и отрицательного чирпа).

чирпованные импульсы являются более эффективными (т.е. обеспечивают большую амплитуду осцилляций) для создания решеточной когерентности по сравнению с положительно чирпованными импульсами одинаковой длительности.

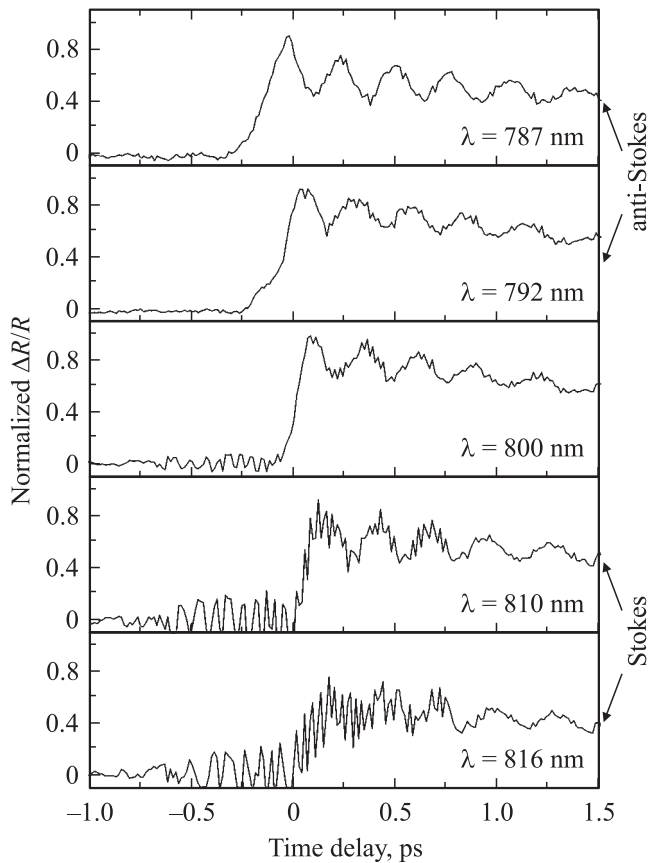
При увеличении абсолютной величины чирпа лазерного импульса частота осцилляций остается в пределах экспериментальной ошибки неизменной, совпадающей с частотой осцилляций, порождаемых спектрально-ограниченным импульсом. Наблюдается незначительное ( $\approx 15\%$ ) увеличение времени жизни осцилляций для случая положительного чирпа по отношению к практически совпадающим временам жизни фононов, возбуждаемых спектрально-ограниченными и отрицательно чирпованными импульсами. Также из рис. 1 следует, что для чирпованных импульсов осцилляции наблюдаются при несколько больших временах задержки, причем этот эффект наиболее выражен в случае положительного чирпа. При увеличении чирпа этот временной сдвиг возрастает, что можно видеть из рис. 4: нарастание сигнала становится значительно более медленным для положительного чирпа, а уменьшенные по амплитуде осцилляции возникают при больших временных задержках. Данный эффект не может быть объяснен возможным сдвигом нуля временной задержки, определяемого из экстремума производной нарастания сигнала для случая спектрально-ограниченного импульса. Действительно, для чирпованного импульса нулевая задержка, определяемая как временное совпадение импульсов накачки и зондирования, может варьироваться из-за изменения формы импульса, однако этот временной сдвиг не может быть больше длительности импульса и имеет разные знаки для положительного и отрицательного чирпов. Экспериментальные данные свидетельствуют о том, что временной сдвиг имеет один и тот же знак вне зависимости от знака чирпа и в случае положительного чирпа он в несколько раз больше, чем длительность лазерного импульса.

Сам факт зависимости параметров когерентных осцилляций от чирпа лазерного импульса, меняющего как временную последовательность различных спектральных компонент электромагнитного поля (что эквивалентно увеличению или уменьшению несущей частоты), так и форму импульса, не позволяет сделать однозначного выбора между двумя феноменологическими моделями генерации КФ в непрозрачных средах [1,10,11]. Действительно, рост амплитуды осцилляций может быть обусловлен как более крутым передним фронтом, так и тем фактом, что высокочастотные компоненты несущей частоты взаимодействуют с кристаллом раньше, чем низкочастотные компоненты. Главным различием между двумя основными феноменологическими моделями генерации КФ является роль электромагнитного поля. В механизме смещения (МС) поле обеспечивает только энергию, необходимую для возбуждения системы, которая вводится через электронную подсистему кристалла и передается решетке посредством электрон-фононного



**Рис. 4.** Зависимость относительного разностного отражения  $\Delta R/R$  зондирующего импульса для монокристалла Те от времени задержки между импульсами накачки и зондирования при больших величинах чирпа лазерных импульсов.

взаимодействия. В этой модели фотон-электронное и электрон-фононные взаимодействия разделены, и первое из взаимодействий в явном виде не определено. Единственным параметром фотон-электронного взаимодействия является скорость его включения, которая должна быть настолько большой, чтобы характерное время фотон-электронного взаимодействия было меньше, чем период фононных осцилляций. В результате решеточная когерентность создается всегда в возбужденном электронном состоянии и решетка после воздействия сверхкороткого импульса эволюционирует по косинусоидальному закону, т.е. колебания начинаются с экстремального значения (максимум или минимум) амплитуды. В механизме нестационарного вынужденного комбинационного рассеяния (НВКР) начальная фаза и симметрия фонона однозначно определяются соотношением между компонентами спектра электромагнитного поля и свойствами (резонансами) среды [1]. В этой модели фотон-электронное и электрон-фононные взаимодействия неразделимы и решеточная когерентность может быть создана как в возбужденном (резонансный случай), так и в основном (нерезонансный случай) электронном состоянии. Таким образом, необходимым условием НВКР является ширина спектра возбуждающего импульса, которая призвана обеспечить возможность



**Рис. 5.** Нормированное (на единицу при  $\lambda = 800$  nm) частотно-разрешенное отражение монокристалла Te для различных длин волн (указаны на рисунке) зондирующего спектрально-ограниченного импульса.

бигармонической накачки (разность между различными компонентами спектра импульса равна или больше частоты фона).

Для изучения решеточной динамики в области малых временных задержек, которое в принципе может позволить разделить эффекты крутизны переднего фронта и временной последовательности различных компонент спектра импульса, используемая нами схема ввода чирпа непригодна, поскольку чирп вводится до расщепления импульса на накачку и зондирование, что неизбежно приводит к удлинению как импульса накачки, так и импульса зондирования. Таким образом, мы лишены возможности исследовать кинетику нарастания сигнала отражения и тем самым выяснить роль крутизны переднего фронта возбуждающего импульса. Осуществив чирпирование только импульса накачки, можно будет проводить зондирование спектрально-ограниченными импульсами, имеющими значительно меньшую длительность. Однако можно получить дополнительную информацию о механизме генерации КФ, анализируя спектрально-разрешенный отклик зондирующего импульса. Для этого перед регистрацией зондирующего импульса проводилось его спектральное разложение при помощи спектрометра, и многоканальным детектором анализировался

частотно-разрешенный сигнал. Результаты исследования для случая спектрально-ограниченного импульса представлены на рис. 5. Очевидно, что стоксовы и антистоксовы компоненты зондирующего импульса сдвинуты по фазе, что подтверждает результаты одноканального детектирования КФ в полуметаллах [12]. Также следует отметить, что при увеличении отстройки от центральной несущей частоты импульса как в коротковолновую, так и в длинноволновую часть спектра „видность“ осцилляций, определяемая как  $\frac{A_{\max} - A_{\min}}{A_{\max} + A_{\min}}$ , увеличивается почти в 2 раза. Это свидетельствует об уменьшении вклада релаксационной компоненты с ростом отстройки. Удивительным является факт большей величины шума для стоксового сигнала, который детектируется и при отрицательных временных задержках  $\Delta t \approx -500$  fs (напомним, что длительность лазерного импульса 42 fs). Этот шум прослеживается и для положительных временных задержек  $\Delta t \approx 800$  fs, после чего величина шума для стоксового сигнала сравнивается с тем, что наблюдается для антистоксового сигнала. Возрастание шума на стоксовой частоте находит свое естественное объяснение в рамках НВКР. В антистоксовом процессе конечным состоянием является вакуумное, тогда как в стоксовом процессе конечным состоянием служит первое возбужденное состояние решетки, шум которого пропорционален фактору Бозе, что может быть причиной увеличения шума. Следует отметить, что возникновение шумового сигнала при отрицательных временных задержках, т.е. для случая когда зондирующий импульс приходит раньше, чем импульс возбуждения, во многом аналогично возникновению сигнала при отрицательных временных задержках в экспериментах по четырехволновому смешиванию в полупроводниках, где этот факт был интерпретирован как влияние многочастичных кулоновских корреляций, ведущее к нарушению принципа причинности [13].

Различия в откликах на стоксовой и антистоксовой частотах зондирующего импульса свидетельствуют в пользу механизма НВКР, поскольку в МС следует ожидать однородного по частоте отклика, так как в последней модели решеточная система только приобретает энергию вне зависимости от частоты вынуждающей силы. Только в НВКР решетка может как получать (стоксов процесс), так и отдавать (антистоксов процесс) энергию, что естественным образом ведет к частотной зависимости сигнала зондирующего импульса.

## 4. Заключение

При помощи метода накачка–зондирование фемтосекундными лазерными импульсами с изменяемой величиной частотного чирпа обнаружена зависимость величины амплитуды когерентных осцилляций от знака чирпа, которая свидетельствует, что отрицательный чирп позволяет более эффективно генерировать КФ. Совместный анализ данных, полученных с чирпованными импульсами, и результатов исследования разрешенного по

частоте отклика для случая спектрально-ограниченного импульса, имеющего нулевой линейный чирп, позволил установить, что механизм генерации КФ связан с различными компонентами спектра электромагнитного поля и, следовательно, с бигармонической накачкой.

Авторы признательны Ю.Е. Лозовику за плодотворные дискуссии.

## Список литературы

- [1] R. Merlin. *Solid State Commun.* **102**, 207 (1997).
- [2] S. Hunsche, K. Wienecke, T. Dekorsy, H. Kurz. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1815 (1995).
- [3] P. Tangney, S. Fahy. *Phys. Rev. B* **65**, 054 302 (2002).
- [4] M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, K. Mizoguchi. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067 401 (2002).
- [5] О.В. Мисочко, М. Хасе, М. Китажима. *Письма в ЖЭТФ* **78**, 85 (2003).
- [6] C.A.D. Roeser, M. Kandyla, A. Mendioroz, E. Mazur. *Phys. Rev. B* **70**, 212 302 (2004).
- [7] О.В. Мисочко, М. Хасе, К. Ишиока, М. Китажима. *Письма в ЖЭТФ* **82**, 478 (2005).
- [8] É.D. Murray, D.M. Fritz, J.K. Wahlstrand, S. Fahy, D.A. Reis. *Phys. Rev. B* **72**, R060 301 (2005).
- [9] M. Dantus, V.V. Lozovoy. *Chem. Rev.* **104**, 1813 (2004).
- [10] G.A. Garrett, T.F. Albrecht, J.F. Whitaker, R. Merlin. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3611 (1996).
- [11] H.J. Zeiger, J. Vidal, T.K. Cheng, E.P. Ippen, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
- [12] О.В. Мисочко, М. Хасе, М. Китажима. *ФТТ* **46**, 1686 (2004).
- [13] D.S. Chemla, J. Shah. *Nature* **411**, 549 (2001).