

# О природе когерентных фононов, создаваемых сверхкороткими лазерными импульсами в монокристалле сурьмы

© О.В. Мисочко, М. Hase\*, М. Kitajima\*

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

\* National Institute for Materials Science,  
305-0047 Tsukuba, Japan

E-mail: misochko@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию 3 июня 2003 г.  
В окончательной редакции 20 ноября 2003 г.)

Методом накачки и зондирования фемтосекундными лазерными импульсами, дополненного спектральной фильтрацией сигнала, исследованы осцилляции отражения, порождаемые  $A_{1g}$  когерентным фононом монокристалла сурьмы. Анализ спектрально-разрешенного сигнала показал, что не только интегральная интенсивность, но и спектр зондирующего импульса являются функцией времени задержки между накачкой и зондированием, осциллируя между стоксовой и антистоксовой компонентами с частотой оптического фонона. Сравнение интегральной и спектрально-разрешенной релаксационной динамики возбуждений кристаллической решетки позволило продвинуться в понимании природы и механизма генерации когерентных фононов.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 01-02-16480 и 02-02-17074) и Министерства образования, культуры, спорта, науки и технологии Японии.

## 1. Введение

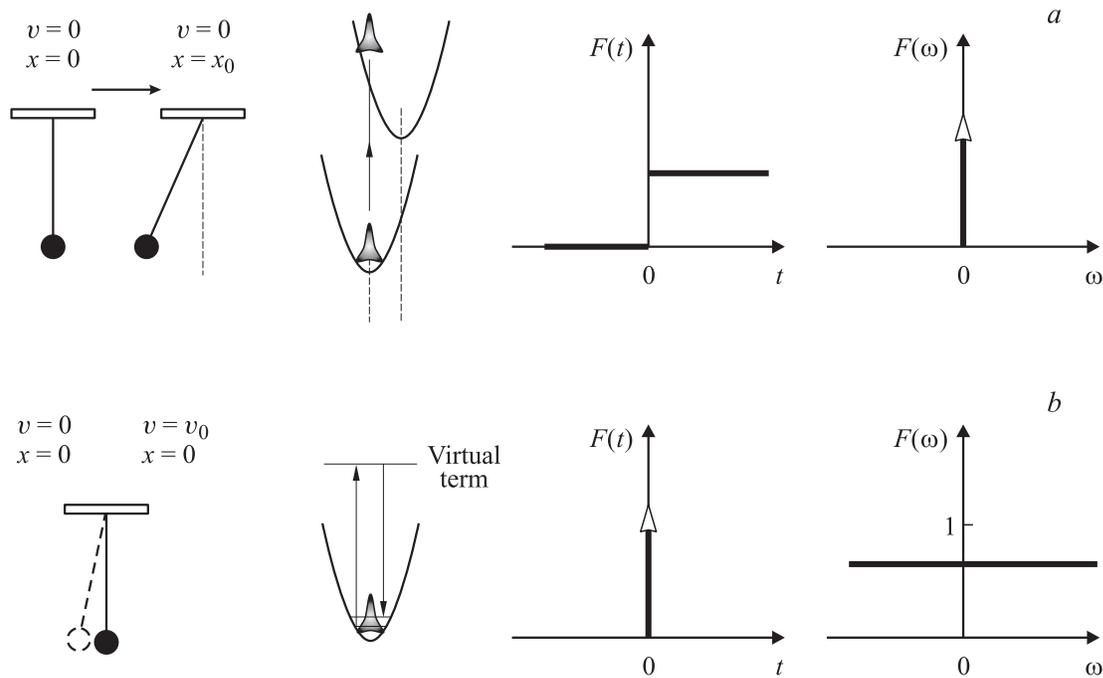
Успех лазерной технологии, позволивший сократить длительность лазерного импульса до субпикосекундного диапазона, открыл путь изучения динамики возбуждений твердых тел в реальном времени. Сейчас это, по-видимому, одно из самых динамично развивающихся направлений физики конденсированного состояния, и исследования, типичным представителем которых является эксперимент с применением метода накачки и последующим зондированием сверхкороткими лазерными импульсами, активно проводятся для многих технологически перспективных материалов [1–4]. Понимание того, каким образом устанавливается нарушенное импульсом накачки равновесие, позволяет выяснить особенности динамики элементарных возбуждений и их взаимодействия, получая информацию, недоступную при использовании других методов.

Многочисленные исследования динамики конденсированной среды, подверженной воздействию сверхкоротких лазерных импульсов, выявили осциллирующее на субпикосекундной шкале поведение релаксации возбужденного состояния, созданного импульсом накачки [1–4]. Период осцилляций, как правило, совпадает с обратной частотой комбинационно-активных фононов, хотя их затухание отлично от энергетической релаксации фонона, определяемой из ширины линии спектра спонтанного комбинационного рассеяния (КР) света [4]. Эти осцилляции отождествляются с когерентными возбуждениями кристаллической решетки (фононами), а прилагательное „когерентные“ используется, поскольку осцилляции имеют хорошо определенную фазу. Реализация стабильной фазы становится возможной в силу того, что длительность возбуждающего импульса  $\Delta t$  меньше обратной частоты фононной моды  $\Omega^{-1}$  ( $\Delta t < \Omega^{-1}$ ).

## 2. Качественное рассмотрение механизма генерации когерентных фононов

Чтобы выяснить, каким образом сверхкороткие лазерные импульсы приводят к осциллирующему во времени оптическому отклику системы, рассмотрим гармонический осциллятор. Этот осциллятор, представленный на рис. 1 в виде маятника, следует сопоставить с некоторой фононной модой кристалла; нас интересует, каким образом можно изменить состояние маятника. Изменение состояния достигается двумя различными способами. Во-первых, можно переместить точку подвеса маятника горизонтально, изменив тем самым его потенциальную энергию. Этот тип воздействия не требует совершения работы над маятником, т.е. приложенная сила является чисто мнимой. Во-вторых, мы можем ударить по маятнику, изменив тем самым его кинетическую энергию. Поскольку внешняя сила теперь ведет к изменению скорости маятника, она является реальной. Эти два типа воздействия (изменения потенциальной и кинетической энергии) схематично показаны на рис. 1, из которого следует, что в обоих случаях после внешнего воздействия маятник оказывается в новом (возбужденном) состоянии и его реакцией на это воздействие являются колебания относительно нового или старого положения равновесия.

Что касается оптического способа инициирования осцилляций, то следует помнить, что прямое взаимодействие фотонов видимого диапазона с фононами невозможно в силу значительной разницы энергий квантов светового поля и возбуждений решетки. Взаимодействие между ними всегда имеет эффективный характер, реализуясь посредством той или иной фор-



**Рис. 1.** Схемы возбуждения гармонического осциллятора посредством изменения потенциальной энергии (МС) (a) и кинетической энергии (НВКР) (b). Графики справа от каждой схемы показывают временную и частотную зависимости вынуждающей силы.

мы электрон-фононного взаимодействия. В том случае, когда линейное поглощение пренебрежимо мало (прозрачные среды), механизм генерации когерентных фононов отождествлен с импульсным вынужденным КР света [1]. Вынуждающая сила в этом случае реальна, а решеточная когерентность реализуется в основном электронном состоянии. Стационарным аналогом импульсного вынужденного КР является когерентное антистоксово рассеяние света, в котором частоты двух лазерных пучков выбираются таким образом, чтобы их разность совпадала с частотой комбинационно-активной моды материальной среды. Однако для непрозрачных сред, когда линейным поглощением пренебречь нельзя, ясность в механизме установления когерентности возбуждений кристаллической решетки отсутствует. Это отчасти обусловлено тем, что в данном случае решеточная когерентность может быть создана как в основном, так и в возбужденном электронном состоянии, что значительно осложняет теоретическое рассмотрение. Тем не менее возникновение осцилляций в непрозрачных средах может быть с равным успехом описано феноменологически моделями механизма смещения (МС) [5] и механизма, во многом сходного с неупругим рассеянием света [2]. Первая модель предсказывает генерацию только полносимметричных фононов, создаваемых в возбужденном электронном состоянии, которое может быть достигнуто в результате как однофотонного, так и двухфотонного поглощения. Фаза фононов в этом случае описывается косинусоидальной зависимостью, т.е. осцилляции начинаются с максимального значения (рис. 1). Временная зависимость вынуждающей

силы при МС описывается ступенчатой функцией Хевисайда  $F(t) = (1/2)[1 + \text{sgn}(t)]$ . Поскольку Фурье-образ функции Хевисайда  $F(\omega) = (1/2)[\delta(\omega) - i/\pi\omega]$  не имеет действительных компонент, вынуждающая сила является мнимой величиной, т.е. энергия осциллятора модифицируется за счет изменения потенциальной энергии. Вторая модель возникновения осцилляций предложена в работе [2] и названа нестационарным вынужденным комбинационным рассеянием (НВКР).<sup>1</sup> Эта модель способна объяснить возникновение любого из комбинационно-активных фононов, созданных как в основном (нерезонансный случай), так и в возбужденном (резонансный случай) электронном состоянии. Начальная фаза осцилляций при НВКР зависит от условий резонанса, изменяясь от синусоидальной (в первом случае) к косинусоидальной (во втором). В случае нерезонансного НВКР вынуждающая сила реальна ( $F(t) = \delta(t)$  и  $F(v) = 1$ ), и энергия передается осциллятору через изменение его кинетической энергии.

Следует отметить, что обе феноменологические модели описывают скорее перенос энергии между внешним полем и решеткой, чем создание когерентности в фононной подсистеме. Когерентность определяется недиагональными элементами матрицы плотности, которые, как правило, не зависят от заселенностей, определяемых диагональными элементами и отвечающих за энергетическое состояние материальной системы [4]. На

<sup>1</sup> В настоящее время не существует устоявшейся терминологии. Термин НВКР является аббревиатурой английского перевода Transient Stimulated Raman Scattering, в котором прилагательное „переходное“ заменено на „нестационарное“.

самом деле осцилляции возникают вследствие индуцированной светом когерентности решетки (установления определенных фазовых соотношений между различными фоннными состояниями), а не только в результате изменения заселенностей фоннных мод. Более того, различие между феноменологическими моделями в отношении симметрии фононов, которые могут быть возбуждены, достаточно условное. Так, часто встречающееся утверждение о том, что МС может возбудить только полносимметричные моды, игнорирует тот факт, что в случае, когда электронная подсистема термализуется не мгновенно, ее симметрия отлична от симметрии решетки. Следовательно, в данном неравновесном случае возможно возбуждение фоннных мод более низкой симметрии. В то же время утверждение о возможности возбуждения любой комбинационно-активной моды посредством НВКР является слишком сильным, поскольку двухзонный механизм КР, который лежит в его основе, ответствен за рассеяние полносимметричными фононами, а рассеяние модами более низкой симметрии возможно только в случае резонанса и вырожденных электронных состояний. Фундаментальное различие между МС и НВКР связано с ролью электромагнитного поля в создании когерентных фононов. Если в первом случае это поле обеспечивает только энергию, необходимую для возбуждения системы, то во втором случае фазовые характеристики и симметрия возбуждения решетки определяются параметрами Фурье-компонент электромагнитного импульса.

Попытки глубже понять физику когерентных возбуждений решетки на основе микроскопического описания привели к противоречивым представлениям о природе когерентного фонона. При возбуждении в обратном (импульсном) пространстве возникновение когерентности было объяснено многофононными процессами внутри одной и той же моды [6], что сводится к макроскопическому заселению одного  $\mathbf{q} = 0$  фоннного состояния, делая ситуацию сходной со случаем бозе-эйнштейновской конденсации. Наряду с этим существует мнение, базирующееся на двухточечном представлении возбуждения в реальном пространстве и объясняющее возникновение когерентности синхронизацией фоннных мод с различными волновыми векторами [7,8]. Хотя оба микроскопических подхода апеллировали к модели МС, следует отметить, что первый подход при ограничении правил отбора по волновому вектору длинноволновыми фононами также может быть применен и к модели НВКР. Это, скорее всего, невозможно для второго подхода, поскольку оптические процессы в силу большой величины скорости света, как правило, не позволяют фотонам взаимодействовать с фононами вдали от Г-точки зоны Бриллюэна.

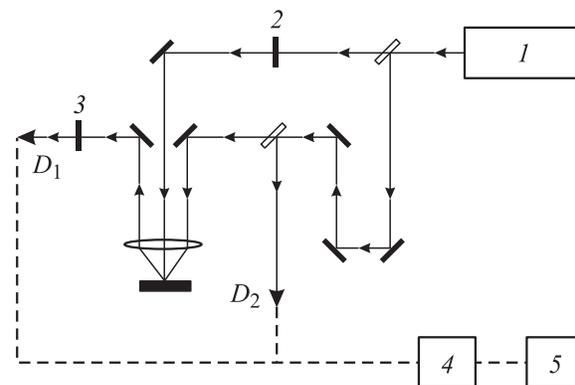
Сравнивая феноменологические модели, можно увидеть, что в случае МС начальная фаза осцилляций определяется позицией потенциального минимума возбужденного состояния. Если этот минимум расположен левее минимума основного состояния, т. е. в возбужденном

состоянии полная энергия системы минимизируется при меньшем удалении ионов друг от друга, то начальная реакция решетки будет сжатие. В противном случае реакцией решетки будет расширение. При этом реакция решетки (и соответственно начальная фаза осцилляций) задается однозначно положением минимума потенциала возбужденного состояния. В случае НВКР начальная фаза осцилляций определяется резонансными условиями и дополнительно в зависимости от канала рассеяния (стоксов или антистоксов) может быть сдвинута на  $\pi$ .

Чтобы прояснить природу когерентных возбуждений решетки и установить доминирующий механизм ее реализации при взаимодействии фемтосекундных импульсов с веществом, мы провели детальное исследование быстрой релаксационной динамики решетки монокристалла сурьмы, дополнив временно разрешение спектральным анализом регистрируемого света. Выбор объекта исследований был обусловлен тем, что для такого полуметалла, как сурьма, величина кубической нелинейной восприимчивости  $\chi^{(3)}$  велика, а амплитуда осцилляций  $\Delta R/R_0$  максимальна и достигает  $10^{-3}$  [4]. Кроме того, механизм генерации и свойства когерентных фононов в сурьме в последнее время активно обсуждаются в научной литературе [9–13].

### 3. Эксперимент

Измерения во временной области проводились с использованием импульсов лазера на титанате сапфира ( $\lambda = 800$  nm) с длительностью, не превышающей 50 fs, и частотой следования 76 MHz. Поляризации возбуждающего и зондирующего импульсов были ортогональны, а изучение оптического отклика проводилось для плоскости [001] монокристалла Sb. Возбуждающее и зондирующее излучения фокусировались на поверхность образца короткофокусной линзой с фокусным расстоянием  $f = 5$  cm. Соотношение между мощностями возбуждающего и зондирующего импульсов поддерживалось равным 50 : 1, при этом плотность энергии импульса возбуждения не превышала  $1 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ . Возбуждающий канал



**Рис. 2.** Блок-схема эксперимента. 1 — лазер, 2 — модулятор, 3 — интерференционный фильтр, 4 — синхронный усилитель, 5 — компьютер.  $D_1$  и  $D_2$  — оптические детекторы.

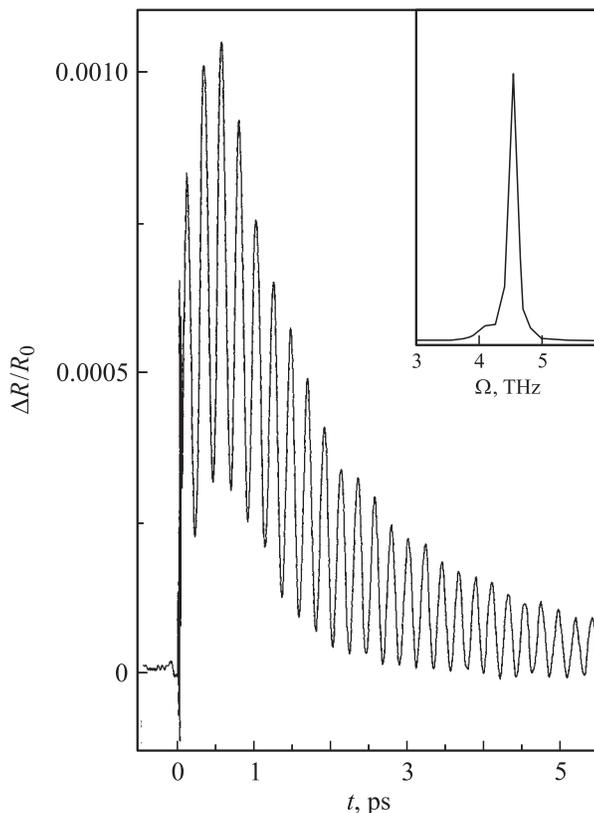
модулировался оптическим прерывателем с частотой 2 kHz, а детектирование осуществлялось при помощи синхронного детектирования смешанных сигналов фотодиодов  $D_2$  и  $D_1$ , помещенных в различных плечах канала зондирования. Спектральный анализ зондирующего импульса проводился интерференционными фильтрами с полосой пропускания от 1.5 до 10 nm, расположенными непосредственно перед детектором  $D_1$  (рис. 2). В эксперименте измерялось нормированное разностное отражение возбужденного и невозбужденного образца

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

как функция времени задержки  $t$  между накачкой и зондированием. При этом время  $t = 0$  и длительность возбуждающего импульса определялись из функции автокорреляции, измеряемой при помощи двухфотонного поглощения света нелинейным кристаллом.

#### 4. Экспериментальные результаты

На рис. 3 показан типичный оптический отклик, наблюдаемый при возбуждении с последующим зондированием монокристалла сурьмы фемтосекундными импульсами. При отрицательных временах задержки, когда зондирующий импульс приходит раньше импульса



**Рис. 3.** Разрешенное во времени нормированное дифференциальное отражение  $\Delta R/R_0$  монокристалла Sb. На вставке — Фурье-образ осциллирующей части сигнала.

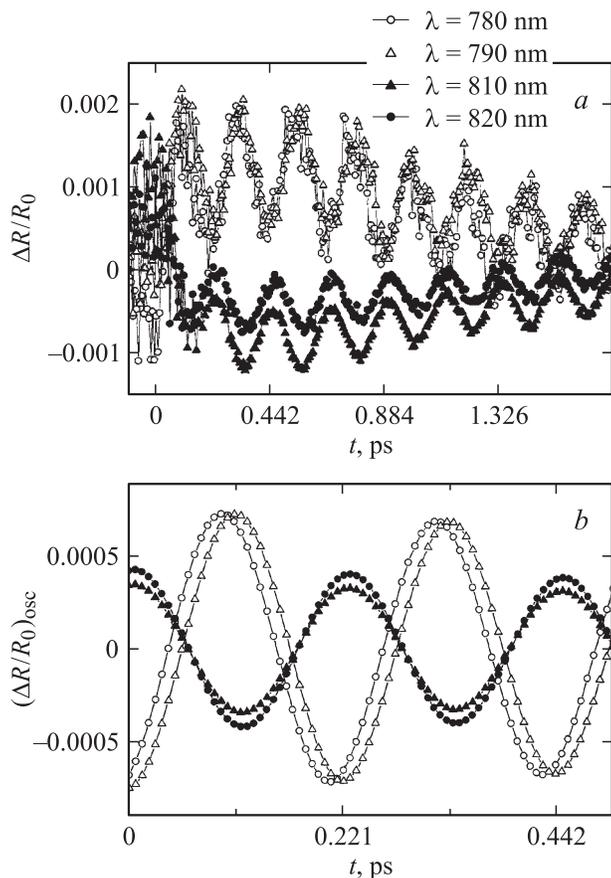
накачки,  $\Delta R/R_0 \approx 0$ , что достигается выравниванием интенсивностей пробного и опорного лазерных пучков, падающих на детекторы  $D_2$  и  $D_1$  соответственно. При совпадении во времени импульса накачки и зондирования возникает когерентный артефакт. Поскольку когерентный артефакт возникает в результате четырехволнового смешивания, при котором реализуется обмен энергией между накачивающим и зондирующим импульсами, он требует временного перекрытия импульсов. Вне этого перекрытия когерентный артефакт равен нулю. Для положительных времен задержки возбужденное электронное состояние системы релаксирует к равновесному за времена порядка пикосекунд. На эту электронную релаксацию наложены быстрые осцилляции, приписываемые когерентным фононам [4,9–13]. Как следует из подгонки осцилляций затухающей во времени гармонической функцией  $A \exp(-t/\tau) \sin(\Omega t - \varphi)$  и из Фурье-преобразования осциллирующей компоненты, результат которого показан на вставке к рис. 3, эти осцилляции демпфированы, начинаются с минимального значения и имеют частоту, равную 4.51 THz. Сравнение полученных данных с результатами спонтанного КР [4,13] и другими времяразрешенными исследованиями [9–13] позволяет идентифицировать данную моду как  $A_{1g}$ -фонон, поскольку из шести оптических фононов сурьмы, кристаллизующейся в ячейку с точечной симметрией  $D_{3d}$ , только один является полностью симметричным в  $\Gamma$ -точке зоны Бриллюэна [4].

Знание величины фотоиндуцированного отклика позволяет провести оценку числа когерентных фононов. Определяя величину смещения иона при помощи формулы [14]

$$x_0 \approx \sqrt{\left(\frac{\Delta R}{R_0}\right)_{\text{osc}} \frac{377F}{\rho \Omega |\epsilon|}},$$

в которой  $F$  — плотность энергии лазерного импульса [ $\text{mJ}/\text{cm}^2$ ],  $\rho$  — плотность образца [ $\text{amu}/\text{\AA}^3$ ],  $\Omega$  — частота [THz],  $\epsilon$  — диэлектрическая постоянная, получаем для изменения отражения величину  $\sim 10^{-5}$  и  $x_0 \sim 10^{-3}$   $\text{\AA}$ . Квадрат безразмерной когерентной амплитуды [6], которая определяет число фононов в объеме взаимодействия, равняется в этом случае  $N \approx 10^{12}$ , что свидетельствует о макроскопическом заполнении фононной моды.

Чтобы получить более полное представление об обмене энергией и импульсом между кристаллом и электромагнитным полем, можно в дополнение к временному разрешению исследовать спектральные свойства разрешенного во времени сигнала, т.е. получить информацию о временном поведении различных спектральных компонент светового поля, а не только о спектрально-интегрированном отклике. Это можно сделать, анализируя спектр зондирующего импульса в зависимости от времени задержки. В наших экспериментах спектральная фильтрация осуществлялась помещением интерференционного фильтра непосредственно перед детектором  $D_2$  и в результате никак не влияла на состояние образца, которое определяется условиями накачки.

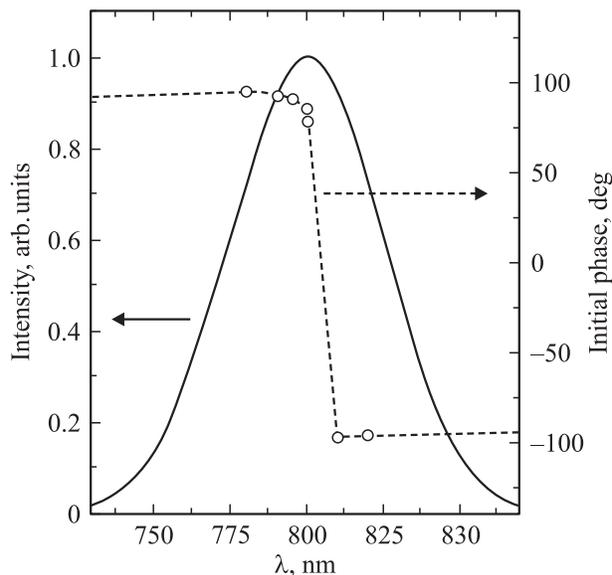


**Рис. 4.** Спектрально-разрешенное нормированное дифференциальное отражение  $\Delta R/R_0$  (a) и когерентная амплитуда (b) для различных длин волн зондирования как функции времени задержки. Ширина полосы интерференционного фильтра  $\Delta\lambda = 10$  nm.

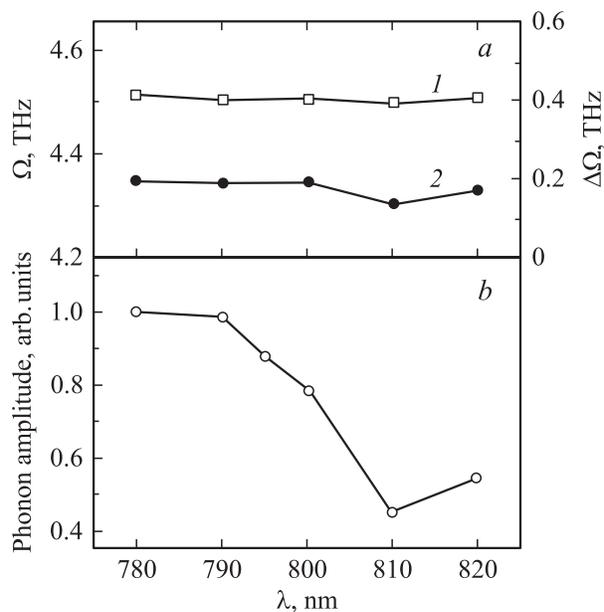
На рис. 4 показаны осцилляции, полученные при спектральной фильтрации пробного импульса интерференционными фильтрами с различными центральными частотами и одинаковой полосой пропускания  $\Delta\lambda = 10$  nm. При этом на рис. 4, a приведен общий вид сигналов  $\Delta R/R_0$ , а на рис. 4, b показаны только первые циклы осциллирующей части, полученные подгонкой затухающей гармонической функцией. Сравнение осцилляций, детектируемых на различных длинах волн света, показывает, что, хотя эти осцилляции всегда начинаются со своего экстремального значения, их начальная фаза сдвинута на  $\pi$  для стоксовых и антистоксовых частей спектра (мы определяем стоксову  $\nu < \nu_0$  и антистоксову  $\nu > \nu_0$  частоты по отношению к центральной частоте  $\nu_0$  спектра лазерного импульса). Из этого следует, что не только интенсивность, но и спектр зондирующего импульса после взаимодействия с исследуемым объектом является функцией времени задержки, осциллируя с частотой полностью симметричной фоновой моды между стоксовой и антистоксовой компонентами спектра. Рис. 5, на котором приведены спектр возбуждающего импульса, а также начальная фаза осцилляций в зависимости от длины волны зондирующего света, иллюстрирует эту ситуацию.

Эти данные свидетельствуют о частотной модуляции пробного лазерного импульса вокруг центральной оптической частоты.

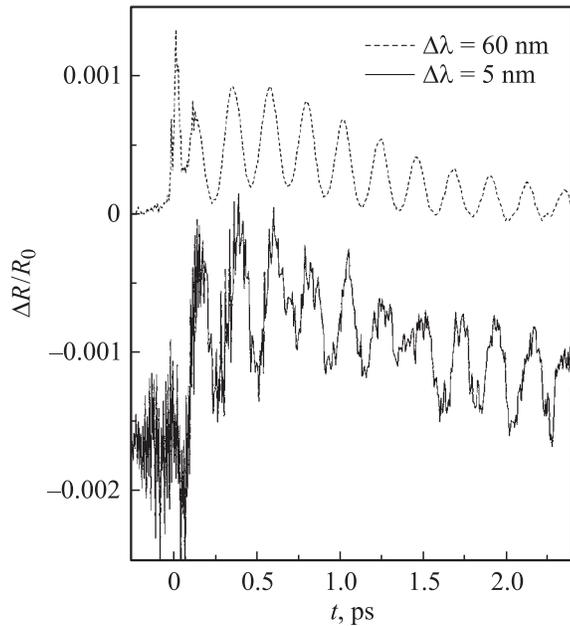
Фурье-анализ спектрально-разрешенных осцилляций показывает, что их частота и затухание (расфазировка) в пределах экспериментальной ошибки не зависят от оптического спектрального диапазона, в котором они детектируются. Это следует из рис. 6, a, на котором показаны частота и скорость расфазировки в зависи-



**Рис. 5.** Спектр импульса возбуждения (сплошная линия) и зависимость начальной фазы осцилляций от длины волны зондирующего импульса (точки).



**Рис. 6.** Частота  $\Omega$  (1) и скорость расфазировки, определяемая как ширина линии Фурье-образа осцилляций,  $\Delta\Omega$  (2) (a) и модуль когерентной амплитуды (b) в зависимости от центральной длины волны интерференционного фильтра.



**Рис. 7.** Нормированное дифференциальное отражение  $\Delta R/R_0$  для двух частотных полос детектирования с центром при  $\lambda = 800$  nm. Сплошная линия соответствует  $\Delta\lambda = 5$  nm (сдвинута по вертикальной оси), штриховая линия соответствует нефильтрованному случаю,  $\Delta\lambda \approx 60$  nm.

мости от длины волны центральной полосы интерференционного фильтра. Величина когерентной амплитуды  $(\Delta R/R_0)_{\text{osc}}$  несколько больше для антистоксовой части спектра, чем для стоксовой, как это видно при сравнении осцилляций, представленных на рис. 4, или их амплитуд, приведенных на рис. 6, *b*. В то же время величина когерентной амплитуды не зависит от полосы пропускания интерференционного фильтра. Это, конечно, не относится к абсолютному изменению отражения  $\Delta R = R(t) - R_0$ , которое уменьшается с ограничением частотной полосы. Сужение спектральной области зондирования помимо упомянутых выше эффектов также приводит к значительному увеличению шума осциллирующего сигнала, что отчетливо видно при небольших временных задержках. Однако этот шум демпфирован сильнее, чем сами осцилляции, поэтому при больших временных задержках отношение сигнал/шум улучшается (рис. 7). Следует отметить, что при сужении окна фильтрации шум возникает и для отрицательных времен задержки. Это ставит под сомнение сам факт того, что спектрально-разрешенные эксперименты „накачка-зондирование“ являются истинными измерениями в реальном времени, в том смысле, что они дают возможность проследить временную эволюцию наблюдаемой материальной системы [15].

Для прозрачных сред в конфигурации рассеяния вперед, как наблюдалось ранее, спектр зондирующего импульса является функцией времени задержки, осциллирует с частотой КР моды между стоксовой и антистоксовой компонентами [1,2]. Это объяснялось тем,

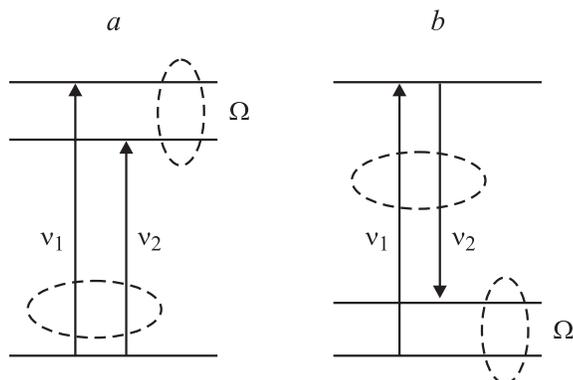
что в зависимости от времени задержки материальная система либо отдает, либо получает энергию зондирующего импульса. Однако для спектрально интегрированного сигнала начальная фаза осцилляций была сдвинута на  $\pi/2$  по отношению к стоксовой и антистоксовой компонентам, что объяснялось вкладом поверхностных эффектов [2].

## 5. Обсуждение результатов

После первых время-разрешенных исследований Sb, в которых были зарегистрированы осцилляции  $A_{1g}$ -фонона, механизм генерации был идентифицирован как МС. Это было сделано исходя из косинусоидального характера осцилляций и симметрии возбуждаемой моды [9,10]. Однако последующее исследование показало, что когерентные осцилляции реализуются также и для фонона  $E_g$ -симметрии, который не может быть возбужден МС [11]. Этот факт был положен в основу модели, в которой когерентные фононы генерируются НВКР, а МС сведен к частному (резонансному) случаю [2,11]. Подтверждение этого было получено при сравнении резонансных зависимостей спонтанного КР и когерентных осцилляций [13].

Чтобы объяснить обнаруженную зависимость начальной фазы осцилляций от длины волны пробного импульса, рассмотрим процесс детектирования оптического сигнала. При этом сначала предположим, что физика взаимодействия импульсов накачки и зондирования одинакова, т.е. когерентность создается и детектируется посредством одного и того же процесса. Фотодиод, являясь квадратичным детектором, измеряет полную энергию зондирующего импульса во всем спектральном диапазоне, определяемом спектральной чувствительностью  $R(t) = \int h\nu n(\nu) d\nu$ , где  $R(t)$  — детектируемый сигнал,  $\nu$  — оптическая частота, а  $n(\nu)$  — число фотонов с данной частотой. В случае МС, для которого связь между электромагнитным полем и когерентным фононом отсутствует,  $n(\nu)$  модулируется однородно на всех частотах, что и ведет к осцилляциям сигнала. Действительно, из схем, показанных на рис. 8, видно, что когерентность расщепленного возбужденного состояния может быть создана во втором порядке теории возмущений для электромагнитного поля. Из-за насыщения поглощения отражение задержанного пробного импульса модифицируется изменением скорости поглощения, которая пропорциональна квадрату проекции зондируемого состояния на исходное когерентное состояние и содержит осциллирующий член.

Случай НВКР показан на рис. 8, *b*. Для данного механизма отраженный зондирующий сигнал  $R(t)$  дополнительно модулируется рассеянием фотонов в моды с отличной частотой. Задержанный зондирующий импульс, как и при МС, „видит“ насыщение поглощения, но в дополнение к этому он может как отдавать, так и получать энергию от материальной системы посредством неупругого рассеяния света. Хотя в этом случае полное



**Рис. 8.** Схемы, поясняющие принцип резонанса двухфотонного поглощения  $\nu_1 + \nu_2 = \Omega$  (a) и резонанса комбинационного типа  $\nu_1 - \nu_2 = \Omega$  (b), приводящих при четырехволновом смешивании к когерентности расщепленных уровней. Эллипсы, показанные штриховой линией, символизируют взаимодействие.

число фотонов в импульсе  $\int n(\nu) d\nu$  может оставаться постоянным, их спектральное распределение изменяется, модифицируя таким образом полную энергию зондирующего импульса.

Обнаруженная зависимость начальной фазы осцилляций от длины волны зондирующего света свидетельствует о том, что спектр отраженного света является функцией времени задержки. Это подтверждает, что доминирующим механизмом возникновения и детектирования осцилляций является процесс, во многом сходный с неупругим рассеянием света. С другой стороны, эта зависимость начальной фазы может указывать на то, что, если мы представляем когерентный фонon как гармонический осциллятор, в один и тот же момент времени осциллятор локализован на различных склонах потенциальной кривой (рис. 1). Для классического осциллятора такое невозможно. Следовательно, либо осциллятор находится в неклассическом состоянии, а его волновая функция содержит компоненты, локализованные в различных областях фазового пространства, либо спектрально-разрешенные сигналы не являются мерой пространственной локализации осциллятора. Скорее всего, оба утверждения верны. Осуществляя спектральную фильтрацию, мы пытаемся „перехитрить“ принцип неопределенности Гейзенберга, согласно которому  $\Delta E \Delta t \geq h$ . В нашем случае  $E = h\nu$ ; отсюда  $\Delta \nu \Delta t \geq 1$ . Это соотношение выполняется автоматически для спектрально-ограниченных импульсов (отсутствие частотной фильтрации), однако использование фильтрации, ведущей к уменьшению  $\Delta \nu$ , приводит к нарушению неравенства в предположении, что временное разрешение остается неизменным. Это означает, что длительность измерения, которая контролирует временное разрешение для спектрально-разрешенного сигнала, уже не определяется длительностью лазерного импульса, а значительно больше его. Таким образом, временное разрешение теряется в спектрально-разрешенном эксперименте. Но сам факт, что исследуемый объект (в

нашем случае когерентный фонon) следует принципу неопределенности, указывает на его неклассическую природу.

Следует уточнить, что предположение об одинаковом характере взаимодействия для возбуждающего и зондирующего импульсов имеет ограниченную применимость. Взаимодействие импульса накачки происходит с материальной средой, исходно находящейся в тепловом равновесии. Импульс зондирующего света взаимодействует с приготовленной импульсом накачки когерентной средой. Это параметрическое взаимодействие между волнами различной природы является не чем иным, как фазозависимым комбинационным рассеянием света [16]. В данном процессе усиление или ослабление стоковых и антистоковых компонент зондирующего импульса происходит не в результате изменения заселенностей фонonных мод, а определяется фазовыми соотношениями между возбуждениями материальной среды и поля. При этом фаза когерентных осцилляций  $\Delta R/R_0$  частоты  $\Omega$  определяется разностью фаз произведения Фурье-компонент поля и наведенной поляризации среды.

Обсудим теперь вопрос об установлении определенных фазовых соотношений между фононами. Вспомним, что при теоретическом рассмотрении нелинейные оптические явления делятся на два типа (в зависимости от фазовых соотношений между взаимодействующими электромагнитными волнами). Такие явления, как многофотонное поглощение и вынужденное КР, относятся к типу, для которого фазовые соотношения фотонов не играют определяющей роли [17]. Поэтому реализовать одну и ту же фазу для каждого элементарного возбуждения материальной среды, создаваемого полем посредством этих процессов, по-видимому, достаточно сложно. Однако процесс, происходящий по схеме четырехволнового смешивания  $\nu_1 = \nu_1 - \nu_2 + \nu_2$ , может сохранять фазу возбуждаемого фонона при условии, что в материальной среде реализуются резонансы двухфотонного поглощения  $\nu_1 + \nu_2 = \Omega$  или комбинационного типа  $\nu_1 - \nu_2 = \Omega$  (рис. 8). При этом в отличие от когерентного антистокового рассеяния света условие фазового синхронизма для взаимодействующих Фурье-компонент лазерного импульса выполняется автоматически. Синхронизация фонonных мод конденсированной среды при взаимодействии со сверхкороткими лазерными импульсами является принудительной, т. е. навязанной внешней силой. Эта синхронизация достигается путем модуляции потерь Фурье-компонент возбуждающего импульса на частоте межмодовых биений. Поскольку спектр возбуждающего импульса содержит компоненты, различающиеся на  $\nu_1 - \nu_2 = n\Omega$  (где  $n$  — целое число), эти спектральные компоненты играют роль возбуждающей силы. При этом фонonные моды с  $n = 1, 2, 3 \dots$  возбуждаются с одной и той же фазой, жестко навязанной возбуждающей силой, и поэтому являются синхронизованными. Кроме того, поскольку для непрозрачных сред волновой вектор фотона определен с точностью  $\delta^{-1}$  (где  $\delta$  — глубина проникновения света), фонonные моды с волновыми векторами  $q = -1/2\delta$  и  $q = 1/2\delta$  оказываются

коррелированными по фазе. Эта ситуация во многом аналогична случаю получения сверхкоротких лазерных импульсов путем синхронизации продольных мод лазерного резонатора. Конденсированная среда в нашем случае действует как акустооптический модулятор со стоячей ультразвуковой волной, используемой для модуляции лазерного усиления. Следует, однако, заметить, что, хотя свет взаимодействует с „континуумом“ фононных мод, абсолютная величина волнового вектора любой из мод значительно меньше величины зоны Бриллюэна, задаваемой постоянной решетки  $a$ :  $|q| \ll 1/a$ .

Таким образом, генерация когерентных фононов определяется нелинейной восприимчивостью, индуцированной мощным импульсом накачки. Возникновение когерентности может происходить как в основном, так и в возбужденном электронном состоянии в зависимости от типа резонанса (двухфотонный или комбинационный) среды. В отличие от спонтанного КР света, при котором происходит реальное изменение заселенностей фононных уровней, в случае когерентных фононов изменения заселенностей может и не происходить, а рассеяние обусловлено наведенным макроскопическим (когерентным) дипольным моментом среды. В силу этого эффективность рассеяния в стоксову и антистоксову области должна быть одинаковой. Более того, исходная заселенность уровней ведет к уменьшению амплитуды осцилляций, что проявляется в увеличении когерентной амплитуды с понижением температуры образца [4]. Большая величина когерентной амплитуды для антистоксовой части спектра в спектрально-разрешенном сигнале может быть вызвана тем, что условия спектральной фильтрации были различными для стоксовой и антистоксовой компоненты (это обусловлено использованием фильтров с центральной полосой пропускания, линейной по длине волны, а не по частоте). Кроме того, нельзя исключить, что квантовые биения происходят в различных электронных состояниях, а именно в расщепленном основном и расщепленном возбужденном, что может изменить соотношение между стоксовой и антистоксовой компонентами. Можно надеяться, что эти вклады удастся идентифицировать при варьировании центральной частоты возбуждающего импульса в более широких пределах или при использовании невырожденной схемы метода „накачка–зондирование“. Также информативным будет изучение температурной зависимости осцилляций при помощи спектрально-разрешенного метода „накачка–зондирование“. Дополнительную информацию можно получить, используя лазерные импульсы с линейным изменением („чирпом“) частоты, что позволит варьировать соотношение фаз между Фурье-компонентами светового поля (в данном исследовании были использованы спектрально-ограниченные импульсы, для которых скорость частотной модуляции равнялась нулю).

Когда твердое тело подвергается воздействию сверхкоротких импульсов, обычно возбуждаются не только однофононные состояния, и как следствие возбуждение носит характер волнового пакета. Волновые пакеты (так

же как и когерентные состояния) находятся на стыке классического и квантово-механического описания объектов. Волновой пакет может быть описан классически до тех пор, пока функция вероятности позиции объекта локализована в реальном или фазовом пространстве. Локализация — отличительная черта волнового пакета — достигается когерентной суперпозицией многих состояний с большими квантовыми числами. Большое число состояний необходимо для того, чтобы путем квантовой интерференции отобразить один максимум волновой функции; большие квантовые числа нужны, чтобы выбранный максимум имел малую пространственную протяженность. Хотя волновой пакет и обнаруживает динамическую эволюцию, сходную с эволюцией классической частицы, он тем не менее является квантовым объектом, и соответственно его поведение намного сложнее. Например, в случае ангармонического потенциала волновой пакет после того, как он делокализуется, может снова локализоваться [18]. Недавно нам удалось зарегистрировать коллапс и возрождение когерентных фононов в таких полуметаллах, как висмут и сурьма [19], что является убедительным свидетельством неклассичности решеточного состояния. Кроме того, пространственная и временная протяженность волнового пакета может периодически зависеть от его расположения в фазовом пространстве, что реализуется для так называемых сжатых состояний [4,12]. Все эти особенности волнового пакета обусловлены дискретностью спектра и не имеют аналогов в классической физике. Обнаруженный в данной работе факт зависимости начальной фазы от длины волны детектирования также свидетельствует о том, что создаваемое фемтосекундными импульсами состояние, скорее всего, не может быть описано в рамках классической механики. Действительно, когерентная амплитуда имеет различные знаки в зависимости от способа регистрации, свидетельствуя о „локализации“ волнового пакета одновременно в различных областях фазового пространства, что для классического объекта невозможно. Оставляя для будущего исследования выяснение вопроса о том, к какому конкретному классу неклассических состояний принадлежит состояние, реализуемое в Sb сверхкороткими импульсами, отметим, что, похоже, оно относится к классу запутанных состояний Эйнштейна–Подольского–Розена. Для этих состояний  $\hat{X}_1 - \hat{X}_2 \rightarrow 0$ ,  $\hat{P}_1 + \hat{P}_2 \rightarrow 0$ , где  $\hat{X}_i$  и  $\hat{P}_i$  являются операторами координаты и момента двух хорошо разделенных в фазовом пространстве частей волнового пакета [20]. Запутанность фононных состояний может быть обусловлена тем, что они создаются коррелированными фотонами, фазы которых синхронизованы в пределах ультракороткого импульса. Следует отметить, что запутанность колебательных состояний для нелинейной молекулы была детально проанализирована в работе [21].

Таким образом, когерентность в системе фононов возникает в результате многофононных процессов в пределах „континуума“ фононных мод, определяемого глубиной проникновения света. При этом происходит

синхронизация фаз, но не для фононов с различными волновыми векторами, а для одно- и двухфононных мод [19], а фононы с одинаковыми по модулю и различными по знаку волновыми векторами в пределах  $\Delta q = \pm 1/2\delta$  оказываются коррелированными по фазе. Время затухания осцилляций определяется потерей фазовой памяти (начальной фазы) процесса, приведшего к их генерации.

## 6. Выводы

Методом „накачка–зондирование“, дополненным спектральным анализом, обнаружено, что начальная фаза  $A_{1g}$  когерентного фонона Sb зависит от длины волны зондирующего света. Это свидетельствует о том, что спектр зондирующего импульса (так же как его интегральная интенсивность) является функцией временной задержки между возбуждающим и зондирующим импульсом. Сдвиг начальной фазы когерентного фонона для стоксовой и антистоксовой компонент зондирующего импульса может служить еще одним доказательством (в дополнение к обнаруженным ранее в [4,12,19]) неклассической природы состояния кристаллической решетки, создаваемого сверхкороткими лазерными импульсами. Механизм возникновения быстрых временных осцилляций должен быть приписан биениям расщепленных основного и возбужденного состояний, которые детектируются в процессе фазозависимого комбинационного рассеяния света.

## Список литературы

- [1] L. Dhar, J.A. Rogers, K.A. Nelson. *Chem. Rev.* **94**, 1, 157 (1994).
- [2] R. Merlin. *Solid State Commun.* **102**, 2–3, 207 (1997).
- [3] T. Dekorsy, G.C. Cho, H. Kurz. In: *Light Scattering in Solids VIII* / Ed. M. Cardona, G. Güntherodt. Springer, Berlin (2000). P. 169.
- [4] О.В. Мисочко. *ЖЭТФ* **92**, 2, 246 (2001).
- [5] H.J. Zeiger, J. Vidal, T.K. Cheng, E.P. Ippen, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B* **45**, 1, 768 (1992).
- [6] A.V. Kuznetsov, C.J. Stanton. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 24, 3243 (1994).
- [7] R. Scholz, T. Pfeifer, H. Kurz. *Phys. Rev. B* **47**, 24, 16 229 (1993).
- [8] W.A. Kutt, W. Albercht, H. Kurz. *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-28**, 2434 (1992).
- [9] T.K. Cheng, S.D. Brorson, S. Kazeroonian, J.S. Moodere, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus, E.P. Ippen. *Appl. Phys. Lett.* **57**, 10, 1004 (1990).
- [10] T.K. Cheng, J. Vidal, H.J. Zeiger, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus, E.P. Ippen. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 16, 1923 (1991).
- [11] G.A. Garrett, T.F. Albrecht, J.F. Whitaker, R. Merlin. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 17, 3661 (1996).
- [12] O.V. Misochko, K. Kisoda, K. Sakai, H. Nakashima. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 8, 961 (2000).
- [13] T.E. Stevens, J. Kuhl, R. Merlin. *Phys. Rev. B* **65**, 14, 14 4304 (2002).

- [14] M.F. DeCamp, D.A. Reis, P.H. Bucksbaum, R. Merlin. *Phys. Rev. B* **64**, 9, 092 301 (2001).
- [15] J. Stock, W. Domcke. *Phys. Rev. A* **45**, 5, 3032 (1992).
- [16] B. Fain, V. Khidekel, S.H. Lin. *Phys. Rev. A* **49**, 2, 1498 (1994).
- [17] Н.И. Коротеев, И.Л. Шумай. *Физика мощного лазерного излучения*. Наука, М. (1991).
- [18] M.J.J. Vrakking, D.M. Villeneuve, A. Stolow. *Phys. Rev. A* **54**, 1, R 37 (1996).
- [19] О.В. Мисочко, М. Hase, М. Kitajima. *Письма в ЖЭТФ* **78**, 12, 85 (2003).
- [20] B. Julsgaard, A. Kozhokin, E.S. Polzik. *Nature* **413**, 400 (2001).
- [21] Z. Kis, J. Janszky, P. Adam, An.V. Vinogradov, T. Kobayashi. *Phys. Rev. A* **54**, 6, 5110 (1996).