

ЗАТУХАНИЕ ФОТОИНДУЦИРОВАННЫХ ОСЦИЛЛЯЦИЙ КОЭФФИЦИЕНТА ОПТИЧЕСКОГО ОТРАЖЕНИЯ ВИСМУТА

А. Л. Семенов*

Ульяновский государственный университет
432970, Ульяновск, Россия

Поступила в редакцию 28 января 2013 г.

Построена модель затухания фотоиндуцированных осцилляций коэффициента R оптического отражения висмута, учитывающая ангармонизм кристаллической решетки. Вычислено характерное время затухания осцилляций R в зависимости от плотности энергии лазерного импульса. Результаты расчетов объясняют данные эксперимента Мисочко и Лебедева [7] по аномально сильному затуханию фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута (время затухания уменьшается более чем на порядок при увеличении плотности энергии лазерного импульса от 0 до 4 мДж/см²).

DOI: 10.7868/S0044451013070110

1. ВВЕДЕНИЕ

Под действием короткого лазерного импульса в висмуте и ряде других материалов возбуждаются когерентные колебания атомов кристаллической решетки (фотоиндуцированные когерентные фононы) [1–7]. Для экспериментального исследования фотоиндуцированных когерентных фононов наряду с рентгенографическим методом [2] широко используется метод оптического зондирования [1, 3–5, 7]. Эксперимент Мисочко и Лебедева [7] по оптическому зондированию фотоиндуцированных когерентных фононов в висмуте при низких температурах показал, что время затухания фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения R уменьшается более чем на порядок при увеличении плотности энергии W лазерного импульса от 0 до 4 мДж/см². Насколько нам известно, причина данного эффекта до сих пор не выяснена. Возможными механизмами увеличения скорости затухания осцилляций R являются нелинейная релаксация когерентных фононов или их дефазировка.

Теория фотоиндуцированных когерентных фононов предложена в статье [1]. Она хорошо согласуется с экспериментом при малых энергиях лазерного импульса, когда нелинейность системы пренебрежимо мала. Нелинейные свойства (зависимость частоты колебаний от плотности энергии лазерного импуль-

са и времени [3, 4], асимметрия фононной линии в фурье-спектре колебаний [4, 5]), появляющиеся при больших энергиях лазерного импульса, объясняются в рамках теории [6], учитывающей ангармонизм кристаллической решетки.

В настоящей работе предлагается модель затухания фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута, в которой время релаксации фотоиндуцированных когерентных фононов предполагается постоянным. Благодаря ангармонизму кристаллической решетки частота фотоиндуцированных когерентных фононов зависит от концентрации фотовозбужденных электронов [6]. При увеличении плотности энергии лазерного импульса градиенты концентрации фотовозбужденных электронов и частоты фотоиндуцированных когерентных фононов вблизи поверхности растут. Это ведет к увеличению скорости дефазировки когерентных фононов и, как следствие, к снижению времени затухания фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения. Рассчитанная в рамках предложенной модели зависимость характерного времени затухания фотоиндуцированных осцилляций коэффициента оптического отражения висмута от плотности энергии лазерного импульса согласуется с экспериментальными данными работы [7].

2. КОЭФФИЦИЕНТ ОПТИЧЕСКОГО ОТРАЖЕНИЯ

Пусть на поверхность висмута, занимающего область $z > 0$, вдоль оси z падает плоская квазимо-

*E-mail: smnv@mail.ru

нохроматическая линейно поляризованная световая волна. Векторы напряженности электрического \mathbf{E} и магнитного \mathbf{H} полей запишем в виде

$$\mathbf{E} = Ae^{-i\omega t}\mathbf{e}_x, \quad \mathbf{H} = Be^{-i\omega t}\mathbf{e}_y,$$

где $A(z, t)$, $B(z, t)$ — медленноменяющиеся во времени амплитуды, ω — циклическая частота светового поля, \mathbf{e}_x , \mathbf{e}_y — орты осей соответственно x и y .

Амплитуды $A(z, t)$, $B(z, t)$ описываются такой системой уравнений, следующей из уравнений Максвелла [8]:

$$\begin{cases} \frac{dA}{dz} = ik_0 B, \\ \frac{dB}{dz} = ik_0 \varepsilon A, \end{cases} \quad (1)$$

где $k_0 = \omega/c$, c — скорость света, $\varepsilon(z, t)$ — комплексная диэлектрическая проницаемость.

В области $z < 0$, где $\varepsilon = 1$, решение системы уравнений (1) имеет вид

$$\begin{aligned} A(z, t) &= A_1 \exp(ik_0 z) + A_2 \exp(-ik_0 z), \\ B(z, t) &= A_1 \exp(ik_0 z) - A_2 \exp(-ik_0 z), \end{aligned} \quad (2)$$

где A_1 , A_2 — константы, не зависящие от z . Из уравнений (2) с учетом условия непрерывности функций $A(z, t)$, $B(z, t)$ на границе $z = 0$ получаем коэффициент оптического отражения висмута

$$R = \left| \frac{A_2}{A_1} \right|^2 = \left| \frac{A(0, t) - B(0, t)}{A(0, t) + B(0, t)} \right|^2. \quad (3)$$

Рассмотрим теперь свойства висмута.

3. УРАВНЕНИЕ ДЛЯ СМЕЩЕНИЯ АТОМОВ ВИСМУТА

Кристаллическую решетку висмута можно получить из простой кубической решетки посредством малых смещений атомов. Для этого нужно сместить две ГЦК-подрешетки висмута относительно друг друга вдоль одной из главных пространственных диагоналей (пайерлсовское искажение) и слегка растянуть решетку вдоль этой же диагонали [9]. При этом атомы висмута, расположенные в виде цепочек, параллельных тригональной оси кристалла (главной пространственной диагонали), попарно сближаются. Координата x_j j -го атома Vi в цепочке записывается в форме

$$x_j = jr_0 + (-1)^j x, \quad (4)$$

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

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{x}} - \frac{\partial L}{\partial x} = Q, \quad (5)$$

где Q — обобщенная диссипативная сила, соответствующая обобщенной координате x ;

$$L = \sum_n \frac{m\dot{x}_n^2}{2} - F \quad (6)$$

— функция Лагранжа; m — масса атома;

$$F(x, n) = F(x, 0) + (A_0 + A_1 x) n. \quad (7)$$

Здесь n — концентрация фотовозбужденных электронов, A_0 , A_1 — коэффициенты разложения;

$$F(x, 0) = F_0 + \sigma x^2 - \chi x^2 \ln \frac{\rho}{x} \quad (8)$$

— термодинамический потенциал висмута в отсутствие фотовозбужденных электронов [9]; F_0 не зависит от x ; σ , χ , ρ — положительные константы. Последнее слагаемое в правой части выражения (7) описывает изменение потенциала F при возбуждении электронной подсистемы [1].

Равновесное смещение $x = x_0$ в отсутствие фотовозбужденных электронов определяется из условия минимума термодинамического потенциала $F(x, 0)$ (8):

$$\left. \frac{\partial F(x, 0)}{\partial x} \right|_{x=x_0} = 0. \quad (9)$$

Подставляя (8) в (9), получаем

$$\rho = x_0 \exp \left(\frac{\sigma}{\chi} + \frac{1}{2} \right). \quad (10)$$

Исключая из уравнения (8) константу ρ (10), находим

$$F(x, 0) = F_0 - \chi x^2 \left(\ln \frac{x_0}{x} + \frac{1}{2} \right). \quad (11)$$

Подставляя выражение (6) в уравнение Лагранжа (5), с учетом (7), (11), в приближении времени релаксации ($Q \sim \dot{x}$) имеем

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} = \Omega_0^2 \left(x \ln \frac{x_0}{x} - x_0 \theta n \right), \quad (12)$$

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

$$\Omega_0 = \sqrt{2\chi/mN} \quad (13)$$

— циклическая частота когерентных фононов при $n = 0$; N — концентрация атомов висмута.

4. УРАВНЕНИЕ ДЛЯ КОНЦЕНТРАЦИИ ФОТОВОЗБУЖДЕННЫХ ЭЛЕКТРОНОВ И ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ

Зависимость концентрации n фотовозбужденных электронов от времени подчиняется кинетическому уравнению [10]

$$\dot{n} = \frac{(1-R)\alpha I}{\hbar\omega} \exp(-\alpha z) - \frac{n}{\tau_0} + D\Delta n, \quad (14)$$

где α — коэффициент оптического поглощения, I — интенсивность светового поля, τ_0 — характерное время жизни неравновесных электронов, D — коэффициент диффузии.

Диэлектрическая проницаемость фотовозбужденного висмута приближенно может быть записана в виде

$$\varepsilon(z, t) = \varepsilon_0 \left(1 + g \frac{x - x_0}{x_0} \right) + \varepsilon_1, \quad (15)$$

где ε_0 — диэлектрическая проницаемость в отсутствие фотовозбуждения;

$$g = \frac{x_0}{\varepsilon_0} \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} \Big|_{x=x_0}, \quad (16)$$

$\varepsilon_1(n)$ — добавка, связанная с изменением степени заполнения электронных состояний при фотовозбуждении. Слагаемое $\varepsilon_1(n)$ не вносит вклад в осциллирующую часть коэффициента оптического отражения и в дальнейшем не рассматривается.

5. УСЛОВИЯ ЧИСЛЕННОГО АНАЛИЗА

Численный анализ проводился для следующих значений параметров при низких температурах: частота когерентного фона при малом уровне фотовозбуждения $\nu_0 = \Omega_0/2\pi \approx 3.02$ ТГц [7]; равновесное смещение атомов Вi из эквидистантного положения в отсутствие фотовозбуждения $x_0 \approx 0.019$ нм [11] ($x_0 = (r_2 - r_1)/4$, где $r_1 \approx 0.552$ нм, $r_2 \approx 0.628$ нм — соответственно минимальное и максимальное расстояния между атомами Вi вдоль тригональной оси); время жизни когерентного фона при малом уровне фотовозбуждения $1/\gamma \approx 35$ пс [7]; коэффициент $\theta \approx 1.3 \cdot 10^{-22}$ см³ [6]; коэффициент оптического отражения $R \approx 0.7$ [1], коэффициент оптического поглощения $\alpha \approx 6 \cdot 10^5$ см⁻¹ [5], энергия фотонов $\hbar\omega \approx 1.55$ эВ [7]; характерное время жизни неравновесных электронов $\tau_0 \sim 10^{-8}$ с [12] (по данным затухания фотопроводимости); коэффициент диффузии

$D = 1.4$ см²/с [13]; коэффициент $g = -0.4$ (определялся из условия $dR/dW \approx 10^{-3}$ см²/мДж [7]); диэлектрическая проницаемость в отсутствие фотовозбуждения $\varepsilon_0 = (1.6 + 3.82i)^2$ [5].

Уравнения (1), (3), (12), (14), (15) в области $z > 0$ решались для случая возбуждения гауссовским световым импульсом с интенсивностью

$$I(t) = \frac{2W}{\sqrt{\pi} \tau_p} \exp \left(- \left(\frac{2t}{\tau_p} \right)^2 \right), \quad (17)$$

где W , $\tau_p = 45$ фс [7] — соответственно плотность энергии и длительность импульса. Предполагалось выполнение следующих начальных и граничных условий:

$$n(z, t = 0) = 0, \quad n(z \rightarrow \infty, t) = 0, \quad \frac{\partial n(z, t)}{\partial z} \Big|_{z=0} = 0, \quad (18)$$

$$x(z, t = 0) = x_0, \quad \frac{\partial x(z, t)}{\partial t} \Big|_{t=0} = 0, \quad (19)$$

$$A(z \rightarrow \infty, t) \rightarrow \exp(i\sqrt{\varepsilon_0} k_0 z), \quad B(z \rightarrow \infty, t) \rightarrow \sqrt{\varepsilon_0} \exp(i\sqrt{\varepsilon_0} k_0 z). \quad (20)$$

Уравнения (20) описывают затухающую волну, бегущую в направлении оси z .

6. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Полученный численным методом график зависимости относительного изменения коэффициента оптического отражения висмута $(R - R_0)/R_0$ от времени t после облучения коротким лазерным импульсом (17) с плотностью энергии $W = 4$ мДж/см² показан на рис. 1. Здесь R_0 — коэффициент оптического отражения висмута в отсутствие фотовозбуждения. На рисунке видно, что эволюция коэффициента оптического отражения приближенно описывается уравнением

$$\frac{R(t) - R_0}{R_0} = a(t) + b(t) \cos(\Omega t + \varphi), \quad (21)$$

где Ω , φ — соответственно циклическая частота и начальная фаза осцилляций; $a(t)$, $b(t)$ — медленно меняющиеся функции времени.

Зависимость амплитуды осцилляций $b(t)$ для различных значений плотности энергии W лазерного импульса показана на рис. 2, на котором видно, что при увеличении W затухание осцилляций R постепенно отклоняется от экспоненциального, а скорость

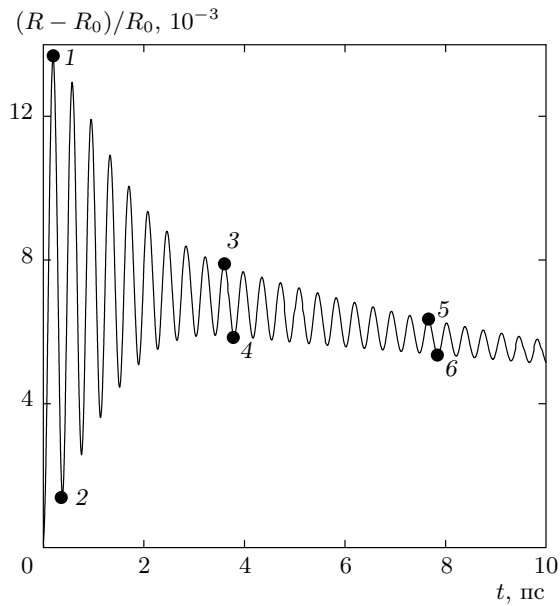


Рис. 1. График зависимости относительного изменения коэффициента оптического отражения висмута $(R - R_0)/R_0$ от времени t после облучения коротким лазерным импульсом с плотностью энергии $W = 4$ мДж/см². Точками 1–6 обозначены моменты времени, для которых приведены зависимости 1–6 на рис. 4

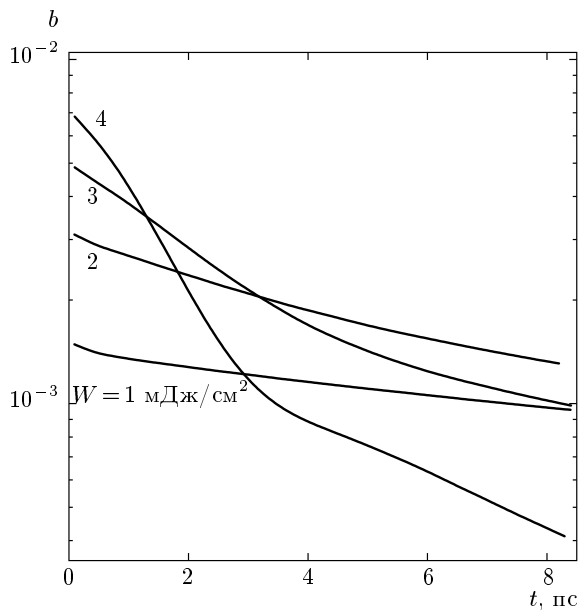


Рис. 2. Зависимость амплитуды $b(t)$ осцилляций относительного изменения коэффициента оптического отражения висмута $(R - R_0)/R_0$ для различной плотности энергии лазерного импульса

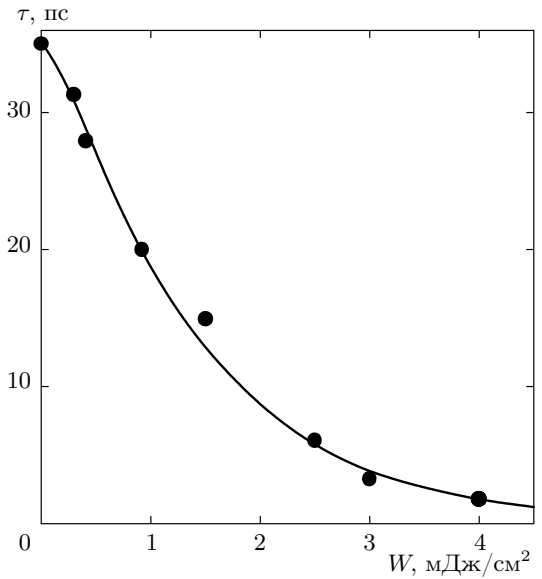


Рис. 3. График зависимости характерного времени τ затухания осцилляций коэффициента оптического отражения от плотности энергии W лазерного импульса. Линия — расчет по формуле (22), точки — экспериментальные данные работы [7]

затухания нарастает. Для $W = 4$ мДж/см² хорошо различимы два этапа эволюции $b(t)$. На первом этапе (при $t < 3.7$ пс) время затухания осцилляций R значительно меньше, чем на втором (при $t > 3.7$ пс). Для всех W с течением времени скорость затухания осцилляций R падает.

Характерное время τ затухания осцилляций коэффициента оптического отражения R (время, в течение которого амплитуда осцилляций убывает в $e \approx 2.72$ раза [7]) вычислялось по формуле

$$b(\tau) = b(0)/e. \tag{22}$$

Рассчитанный по формуле (22) график зависимости $\tau(W)$ и экспериментальные точки работы [7] показаны на рис. 3, на котором видно, что теория и эксперимент хорошо согласуются.

На рис. 4 показаны графики зависимости относительного смещения атомов висмута $(x - x_0)/x_0$ от координаты z для $W = 4$ мДж/см² в моменты времени, соответствующие точкам 1–6 рис. 1. Кривые 1, 2 на рис. 4 характеризуют начало эволюции системы, когда фаза когерентных фононов почти не зависит от координаты z . С течением времени кривые эволюционируют по схеме $1 \rightarrow 3 \rightarrow 5$, $2 \rightarrow 4 \rightarrow 6$. Переход $1 \rightarrow 3$, $2 \rightarrow 4$ иллюстрирует дефазировку когерентных фононов (нарастание зависимости фазы когерентных фононов от z). Он характеризуется быстрым уменьше-

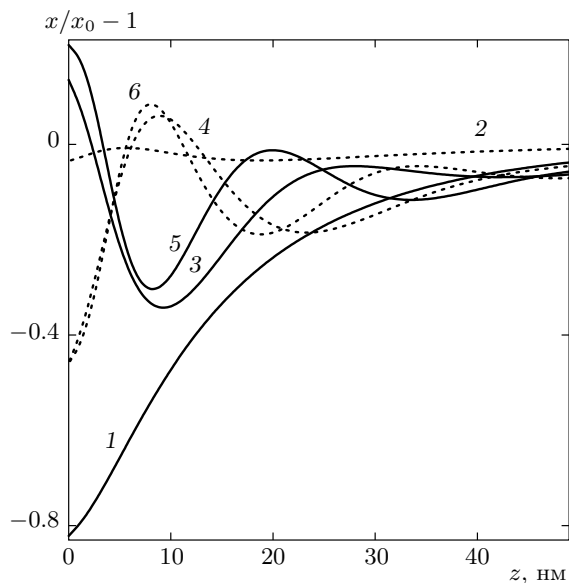


Рис. 4. Графики зависимости относительного смещения $(x - x_0)/x_0$ атомов висмута от координаты z для плотности энергии лазерного импульса $W = 4$ мДж/см² в моменты времени, соответствующие точкам 1–6 на рис. 1 (номер кривой соответствует номеру точки на рис. 1)

нием амплитуды колебаний коэффициента оптического отражения R висмута (см. рис. 1, 2). Дефазировка обусловлена тем, что концентрация n фотовозбужденных электронов и, следовательно [6], частота когерентных фононов вблизи поверхности сильно зависят от z .

Через время $t \approx 3$ пс, благодаря диффузии, концентрация $n(z)$ в приповерхностном слое висмута выравнивается. Вследствие этого дефазировка когерентных фононов замедляется, и при переходе 3→5, 4→6 кривые на рис. 4 вблизи поверхности искажаются незначительно. Скорость затухания амплитуды b осцилляций коэффициента оптического отражения R при этом уменьшается (см. рис. 1, 2).

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе предложена модель затухания фотоиндуцированных осцилляций коэффициента

оптического отражения висмута, согласующаяся с подходом, развитым в работе Мисочко и Лебедева [7]. Затухание определяется релаксацией и дефазировкой фотоиндуцированных когерентных фононов. Время релаксации фононов $1/\gamma \approx 35$ пс [7] постоянно, а скорость дефазировки падает с течением времени t или при уменьшении плотности энергии W лазерного импульса. Рассчитанная в рамках предложенной модели зависимость $\tau(W)$ характерного времени затухания осцилляций R согласуется с экспериментом [7].

ЛИТЕРАТУРА

1. H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng et al., *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
2. K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde, *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, R1517 (2004).
3. О. В. Мисочко, М. В. Лебедев, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 148 (2009).
4. А. А. Мельников, О. В. Мисочко, В. О. Компанец, А. Л. Добряков, С. В. Чекалин, *ЖЭТФ* **138**, 486 (2010).
5. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067401 (2002).
6. А. Л. Семенов, *ФТТ* **53**, 2222 (2011).
7. О. В. Мисочко, М. В. Лебедев, *ЖЭТФ* **136**, 931 (2009).
8. М. Б. Виноградова, О. В. Руденко, А. П. Сухоруков, *Теория волн*, Наука, Москва (1990).
9. Л. А. Фальковский, *УФН* **94**, 3 (1968).
10. В. И. Емельянов, Д. В. Бабак, *ФТТ* **41**, 1462 (1999).
11. E. D. Murray, D. M. Fritz, J. K. Wahlstrand, S. Fahy, and D. A. Reis, *Phys. Rev. B* **72**, 060301(R) (2005).
12. J. C. G. de Sande, M. S. Balmaseda, and J. M. G. Perez, *Phys. Rev. B* **50**, 1861 (1994).
13. M. Hase, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 109702 (2004).