

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕПЛОВЫХ И КОГЕРЕНТНЫХ A_{1g} -ФОНОНОВ ТЕЛЛУРИДА ВИСМУТА

О. В. Мисочко , М. В. Лебедев*

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

*Московский физико-технический институт (государственный университет)
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 26 мая 2017 г.

Полносимметричные A_{1g} -фононы были исследованы для равновесного и когерентного состояний решетки Bi_2Te_3 . Изучение равновесных фононов проводилось в частотном домене методом спонтанного рамановского рассеяния, тогда как для когерентных фононов был использован метод активной фемтосекундной спектроскопии, позволяющий реализовать измерения во временном домене. В последнем случае фемтосекундные лазерные импульсы были использованы как для генерации, так и для детектирования когерентных A_{1g} -фононов, наличие у которых хорошо определенной фазы позволило осуществить селективный оптический контроль динамики решетки. Сравнение результатов, полученных в частотном и временном доменах, позволяет предположить, что диагональные и недиагональные элементы матрицы плотности решеточных возбуждений релаксируют с одним и тем же характерным временем соответственно к равновесному и нулевому значениям.

DOI: 10.7868/S0044451018010078

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из направлений физики твердого тела является поиск и изучение новых материалов, демонстрирующих уникальные физические свойства. С фундаментальной точки зрения эти необычные свойства, как правило, обусловлены новой физикой, понимание которой расширяет горизонты нашего познания, а практический аспект исследований обусловлен тем, что использование подобных материалов поможет создать приборы нового поколения, обладающие характеристиками, недоступными для существующих устройств. К таким перспективным материалам относится и класс узкозонных полупроводников с инвертированной запрещенной щелью, так называемых трехмерных топологических изоляторов [1, 2], типичным представителем которых является теллурид висмута Bi_2Te_3 [3]. Этому материалу присущи уникальные термоэлектрические свойства, а в соединении с другими халькогенидами он обладает свойствами материала с фазовым переходом (phase-change material)

[4]. Тем не менее, к настоящему времени основной интерес к Bi_2Te_3 вызван тем, что, будучи изолятором в объеме, он обладает бесщелевыми состояниями на поверхности. Бездиссипативный транспорт спин-поляризованного тока реализуется из-за сильного спин-орбитального взаимодействия, приводящего к инвертированию зон на краях щели и, как следствие, к появлению на поверхности состояний с дисперсией дираковского типа, защищенных от обратного рассеяния. Необычные свойства поверхности, обусловленные топологической защищенностью конуса Дирака вследствие симметрии обращения времени [1, 2], вместе с достаточно большой величиной (0.15 мэВ) объемной энергетической щели открывают потенциальные возможности как для использования Bi_2Te_3 в новых, функционирующих при комнатной температуре, спинтронных и магнитоэлектрических устройствах, так и для создания квантовых компьютеров [4]. Детальные исследования топологических изоляторов современными методами становятся все более интенсивными [1, 2], и можно ожидать, что выяснение особенностей динамики решетки топологического изолятора позволит управлять свойствами этого необычного состояния.

* E-mail: misochko@issp.ac.ru

Многие фундаментальные физические свойства твердых тел полностью определяются характером колебаний атомов [5], т. е. возбуждениями кристаллической решетки (фононами), тогда как ряд других свойств в той или иной степени от них зависит. В равновесном состоянии тепловые, т. е. никак не коррелированные фононы, имеют различные длины волн, распространяются во всевозможных направлениях и, накладываясь друг на друга, приводят к хаотичному смещению отдельных атомов. В этом состоянии матрица плотности фононов имеет диагональный вид:

$$\hat{\rho} = N \sum_{n=0}^{\infty} e^{-n\beta} |n\rangle\langle n|, \quad (1)$$

где каждое энергетическое состояние $|n\rangle$ занято с вероятностью $P_n = Ne^{-n\beta}$, N — константа нормировки, а $\beta \equiv \hbar\Omega/kT$. Здесь и в дальнейшем Ω , T , k и \hbar обозначают соответственно частоту фонона, температуру и постоянные Больцмана и Планка. Матрица плотности теплового состояния не имеет недиагональных элементов, так как в равновесии отсутствуют соотношения между фазами фононов.

Для исследования свойств длинноволновых тепловых фононов идеально подходит эффект спонтанного рамановского (комбинационного) рассеяния света, который сам по себе является необходимым процессом, ответственным за реализацию термодинамически равновесного состояния [6]. При квантовомеханическом описании испускание фотона происходит спонтанно и сопровождается рождением (стоксовый канал) или уничтожением (антистоксовый канал) оптического фонона и поглощением возбуждающего фотона. Рамановское рассеяние в его нерезонансной реализации является единым, одностадийным двухфотонным процессом, в котором моменты создания и уничтожения фотонов и фонона не фиксированы [7, 8]. Поскольку рассеяние происходит с участием фонона, с помощью этого явления можно получать информацию о динамике движения атомов кристалла. В силу того, что процесс спонтанный, среднее число фононов в тепловом состоянии зависит только от температуры и энергии моды, а в рамановском спектре наблюдается значительное превышение интенсивности стоксовой компоненты I_{aS} над антистоксовой компонентой рассеяния I_S ,

$$\frac{I_{aS}}{I_S} \propto \exp\left(-\frac{\hbar\Omega}{\kappa T}\right).$$

Наряду с тепловым (равновесным) состоянием возбуждений решетки, последние могут быть приготовлены в когерентном состоянии. Такое состояние

может быть реализовано фемтосекундными лазерными импульсами, которые переводят фононы в суперпозиционные (когерентные) состояния в процессе «ударного» нестационарного вынужденного рассеяния света, для которого время воздействия меньше обратной частоты комбинационного перехода. В этом случае когерентность возникает в условиях неравновесности, реализуемой внешней накачкой, т. е. в ситуации, которая во многом аналогична эффекту Бенара, концентрационным колебаниям Белоусова – Жаботинского и лазерной генерации [9]. Матрица плотности такого состояния имеет недиагональные элементы, которые отсутствуют для термодинамического равновесия [10],

$$\hat{\rho} = N \sum_{m,n=0}^{\infty} e^{-n\beta} |m\rangle\langle n|, \quad (2)$$

и характеризуют корреляции (взаимодействия) между различными фоковскими состояниями.

Несмотря на то что при комнатной температуре амплитуда вынужденных решеточных колебаний, созданных в процессе нестационарного вынужденного рассеяния света, составляет не более 10^{-4} – 10^{-3} от величины среднеквадратичных тепловых смещений атомов, интенсивности стоксовой и антистоксовой компонент рассеяния, которые для когерентного ансамбля совпадают, на порядки превышают интенсивности, отвечающие рассеянию на тепловых фононах [11]. Подобная нестационарная когерентность кардинально отличается от явлений сверхтекучести и сверхпроводимости, которые являются проявлением квантовых закономерностей в макроскопическом масштабе и в которых когерентность реализуется в условиях равновесия.

Суперпозиционное (когерентное) состояние фононов проявляется во временной модуляции сигнала отражения/пропускания слабого зондирующего импульса, который следует с контролируемой временной задержкой за импульсом возбуждения. Эти осцилляции существуют до тех пор, пока сохраняются фазовые соотношения между состояниями суперпозиции, т. е. пока недиагональные компоненты матрицы плотности не исчезнут. Поэтому время жизни когерентности может быть измерено по затуханию когерентных осцилляций. Метод накачки–зондирования фемтосекундными лазерными импульсами дает прямой доступ к временному домену (time-domain), который при необходимости с помощью преобразования Фурье может быть трансформирован в частотный домен (frequency domain), где происходит измерение спонтанного рассеяния

света. В режиме сверхкоротких импульсов нестационарное вынужденное рассеяние приводит к ряду новых явлений и возможностей. Например, стабильная фаза фононного ансамбля, возникающая при длительности импульса накачки, меньшей обратной частоты фонона, позволяет осуществить когерентный контроль решеточных смещений, который был реализован для целого ряда модельных систем [12].

Фермионы Дирака в топологических изоляторах имеют запрет на обратное рассеяние, но другие процессы рассеяния могут влиять на их предполагаемый баллистический транспорт. Технически можно свести к минимуму или даже полностью устранить дефекты поверхности, но фононы будут присутствовать всегда. Следовательно, электрон-фононное взаимодействие будет доминирующим механизмом рассеяния для дираковских фермионов на этих поверхностях при конечных температурах. Основной проблемой электрон-фононного взаимодействия является выяснение вопроса — какие именно электронные состояния и фононы ответственны за это взаимодействие. Ряд недавних исследований [13–16], похоже, привел к консенсусу о преобладании вклада полносимметричных фононных мод в рассеяние в сильных топологических изоляторах. Поэтому исследование полносимметричных тепловых и когерентных фононов топологического изолятора методами, которые полностью определяются спецификой эффективного электрон-фононного взаимодействия, имеет потенциал для будущих приложений.

Целью данной работы является сравнение времен продольной и поперечной релаксаций матрицы плотности решеточных возмущений для случая полносимметричных фононов теллурида висмута. Продольная релаксация (релаксация диагональных элементов), контролируемая диссипативным процессом энергетической релаксации, определяется обратной шириной фононной линии, регистрируемой методом спонтанного рассеяния. Поперечная релаксация, сводящаяся к исчезновению недиагональных элементов матрицы плотности, может быть измерена непосредственно как время жизни когерентных фононов, создаваемых фемтосекундными лазерными импульсами.

2. ДЕТАЛИ ЭКСПЕРИМЕНТА

В данной работе исследовался кристалл теллурида висмута, выращенный методом Бриджмена, аналогичный образцам, ранее использованным в работах [17, 18]. Оптически гладкая базисная поверх-

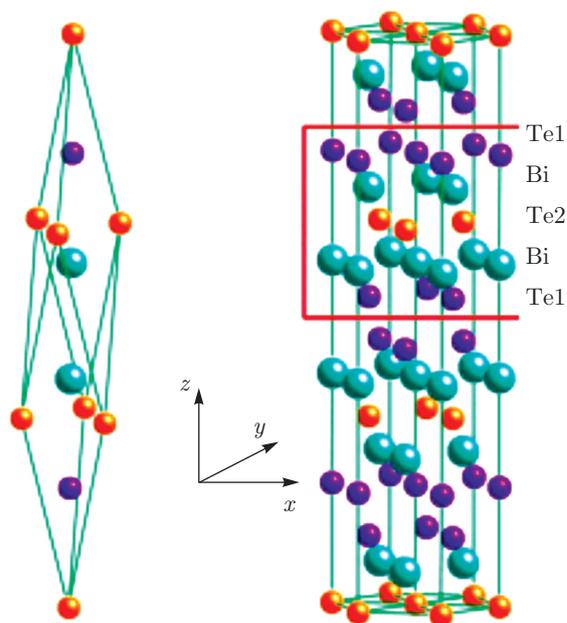


Рис. 1. (В цвете онлайн) Примитивная тригональная ячейка и гексагональная кристаллическая структура Bi_2Te_3 , в которой один из квинтетов выделен красными линиями

ность (111), перпендикулярная тригональной оси, получалась перед каждым экспериментом методом эксфолиации. Слоистое соединение Bi_2Te_3 кристаллизуется в ромбоэдрической структуре $D_{3d}^5(R\bar{3}m)$, которую можно представить в виде гексагональной с элементарной ячейкой, содержащей три пятислойных блока (квинтета), см. рис. 1. Внутри каждого квинтета атомы связаны ковалентными и ионными связями, тогда как межблоковое взаимодействие имеет ван-дер-ваальсовский характер. Топологическое поверхностное состояние теллурида висмута имеет правильную коническую форму только вблизи точки Дирака, которая расположена ниже уровня Ферми. При удалении от точки Дирака сечение конуса начинает гексагонально искажаться и вблизи дна зоны проводимости принимает форму снежинки.

Анализ распределения зарядовой плотности дираковского состояния показал, что оно образовано в основном орбиталями полуметалла Bi и орбиталями краевых атомов халькогена Te1 [19]. Поскольку примитивная ячейка Bi_2Te_3 содержит 5 атомов, разложение по неприводимым представлениям точечной группы D_{3d} дает для фононов в Γ -точке зоны Бриллюэна 15 мод, две из которых являются полносимметричными $A_{1g}(\Gamma_1^+)$. Последние являются комбинационно-активными и, как следствие, могут быть исследованы в частотном домене ме-

тодом рамановского рассеяния [6], а во временном домене — методом накачки-зондирования фемтосекундными лазерными импульсами [12].

В данной работе рамановское рассеяние света измерялось в геометрии обратного рассеяния при помощи тройного микроспектрометра Microdil-28. Возбуждение осуществлялось линией 532.1 нм твердотельного лазера с мощностью, меньшей 1 мВт, сфокусированной 50-кратным объективом. Спектры регистрировались многоканальным детектором на основе ПЗС-матрицы (прибор с зарядовой связью), охлаждаемым жидким азотом. Место возбуждения (характерный размер лазерного пятна меньше 3 мкм) контролировалось с помощью микроскопической приставки, позволяющей возбуждать в различных измерениях одну и ту же область кристалла. Поляризация рассеянного света не контролировалась, поскольку полносимметричные моды изотропны для базисной плоскости.

Для исследования когерентной динамики решетки использовался метод накачки с последующим зондированием задержанными во времени фемтосекундными лазерными импульсами. При малой интенсивности возбуждающего излучения сигнал пробного импульса содержит осцилляции с амплитудой, пропорциональной интенсивности накачки, и частотой, соответствующей частоте возбуждаемой фононной моды. В невырожденной схеме, использованной в данной работе, два лазера на титанате сапфира обеспечивали импульсы с длинами волн $\lambda = 830$ нм (накачка) и $\lambda = 818$ нм (зонд) длительностью, не превышающей 50 фс, и частотой следования 1 ГГц. Частоты следования импульсов лазеров были сдвинуты на несколько килогерц для обеспечения электронной временной задержки (асинхронное оптическое детектирование [18]). Интенсивность возбуждающего импульса, как правило, превышала интенсивность зонда на порядок, а размер области возбуждения был больше области зондирования, чтобы свести к минимуму влияние неоднородности возбуждения.

В эксперименте измерялась разность коэффициентов отражения возбужденного $R(t > 0)$ и невозбужденного $R_0(t < 0)$ кристаллов как функция времени t между накачкой и зондированием, которая затем нормировалась на коэффициент отражения невозбужденного образца. При этом использовалась геометрия с коллинеарными электрическими векторами импульсов накачки и зондирования, перпендикулярными тригональной оси кристалла, а при детектировании поляризационный анализ зонда не проводился (изотропное детектирование).

Для осуществления когерентного контроля импульс накачки расщеплялся на два идентичных импульса одинаковой интенсивности и поляризации при помощи интерферометра Майкельсона [20]. Варьированием одного из плеч интерферометра достигалось необходимое временное разделение импульсов накачки $\tau_{1,2}$. Эта линия задержки состояла из глухого зеркала, расположенного на прецизионном микрометрическом столике, и обеспечивала временное разрешение с погрешностью, меньшей 3 фс. Также следует отметить, что все основные эксперименты как во временном, так и в частотном доменах проводились при комнатной температуре. Более подробно детали эксперимента изложены в работах [17, 18, 20].

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Начнем с исследований частотного домена, в котором вся информация содержится в спектре равновесных фононов. На рис. 2 представлен типичный неполяризованный стоковый спектр спонтанного рамановского рассеяния Bi_2Te_3 . Спектр получен при возбуждении кристалла линией $\lambda = 532.1$ нм, поляризованной вдоль бинарной оси; при этом анализ поляризации рассеянного света не проводился. Отсутствие поляризационного анализа не влияет на интенсивности полносимметричных мод, поскольку их рамановский тензор изотропен в базисной плоскости ab , однако не позволяет однозначно судить об интенсивности низкосимметричных E_g -фононов [18]. Относительные интенсивности фононных линий практически не зависели от места на кристалле, что подтверждает его однородность. Увеличение интенсивности возбуждения приводило к повреждению кристалла, при этом спектр модифицировался кардинальным образом за счет сегрегированных атомов теллура [18]. Поэтому все измерения проводились при мощности возбуждения, меньшей 1 мВт, и хорошо воспроизводились.

В спектре Bi_2Te_3 доминируют три фононные моды с частотами 59.8, 101.3 и 134.5 см^{-1} ($1 \text{ ТГц} = 33.3 \text{ см}^{-1}$), две из которых (первая и последняя) соответствуют полносимметричным модам $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$. Низкочастотная мода спектра с частотой 35.9 см^{-1} , интегральная интенсивность которой на порядок меньше интенсивности высокочастотных мод, как и мода с частотой 101.3 см^{-1} , относится к дважды вырожденным E_g -фононам. Несмотря на то что существует целый ряд исследований спонтанного рамановского рассеяния в Bi_2Te_3

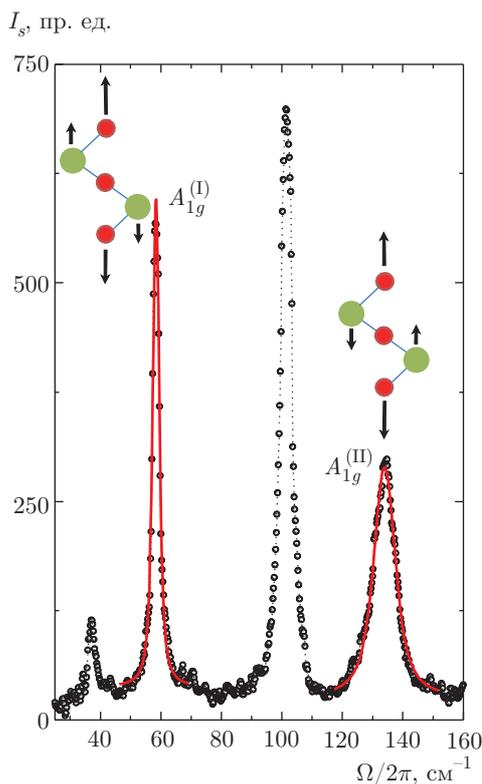


Рис. 2. (В цвете онлайн) Стоксова компонента неполяризованного рамановского спектра, полученная при возбуждении базисной плоскости ab монокристалла Bi_2Te_3 . Сплошные красные линии представляют собой результат подгонки полностью симметричных мод контурами Фойгта, открытые кружки — экспериментальные точки. На вставках схематически показан характер движения атомов в каждой из мод

[18, 21–25], который демонстрирует практически совпадающие частоты фононных мод, ширины фононных линий и их интенсивности сильно различаются. Это обусловлено тем, что ширина линии и определяемая ей интегральная интенсивность во многом зависят от спектрального разрешения прибора, и соответствующие корректировки зачастую сравнимы с естественной шириной линии, тогда как определение позиций линий не требует подобной коррекции. Для определения интенсивности, позиции и спектральной ширины полностью симметричных фононных мод их пики аппроксимировались контурами Фойгта, которые являются сверткой функции Лоренца, ответственной за фононный контур, и функции Гаусса, описывающей спектральное разрешение прибора (в нашем случае не хуже 1.5 см^{-1}). Результат этой подгонки показан на рис. 2 сплошными линиями для обеих мод полной симметрии, а полученные в результате подгонки параметры тепловых фононов приведены в таблице.

В полностью симметричных модах атомы смещаются вдоль тригональной оси Bi_2Te_3 [21]. При этом в низкочастотной моде $A_{1g}^{(I)}$ атомы Bi и Te1 двух внешних слоев квинтета движутся в фазе, тогда как в высокочастотной моде $A_{1g}^{(II)}$ движение происходит в противофазе (см. вставки на рис. 2), что объясняет различие и порядок следования их частот. Атомы Te2, расположенные в центре инверсии, не принимают участия в рамановских модах. Интегральные интенсивности полностью симметричных мод сравнимы, однако интенсивность высокочастотной моды $A_{1g}^{(II)}$ несколько больше. Это может быть следствием того, что $A_{1g}^{(II)}$ -фонон модулирует связь Bi–Te2, имеющую ковалентный характер, тогда как низкочастотная мода меняет межслоевое расстояние Te2–Te2, которое контролируется взаимодействием Ван-дер-Ваальса. Полная ширина на уровне половинной интенсивности высокочастотной моды $A_{1g}^{(II)}$ (9.7 см^{-1}) больше ширины низкочастотной моды $A_{1g}^{(I)}$, для которой она не превышает 3.7 см^{-1} . Согласно соотношению неопределенности, это отвечает большему времени жизни ($\tau = 4.53 \text{ пс}$) синфазного движения атомов, что может быть обусловлено спецификой дисперсии исследуемых оптических мод и плотностью состояний акустических мод, участвующих в ангармоническом распаде. Действительно, процессом, в основном определяющим естественную ширину линии стоксовой компоненты рассеяния, является диссипативная потеря модой колебательного кванта [6]. При этом конечное время жизни оптического фонона обусловлено ангармоническим взаимодействием, в котором доминирующими оказываются процессы распада на два или три фонона, принадлежащих акустической ветви. Помимо этого, глубина δ проникновения света в теллуриде висмута на данной длине волны порядка 10 нм [26], что может приводить к возбуждению фононных мод с конечными квазиимпульсами и, вследствие их дисперсии, к уширению спектральных линий [27]. Однако ряд существующих расчетов динамики решетки [19, 28, 29] предсказывает вблизи Γ -точки зоны Бриллюэна более сильную дисперсию $\Omega(k)$ для низкочастотной моды $A_{1g}^{(I)}$, тогда как эксперимент свидетельствует о более быстром распаде высокочастотной моды $A_{1g}^{(II)}$. Учет спин-орбитального взаимодействия [29] ведет к достаточно сильной дисперсии обеих мод с различной зависимостью наклона оптической ветви $\partial\Omega(k)/\partial k$, однако при этом частота низкочастотной моды $A_{1g}^{(I)}$, для которой $\partial\Omega(k)/\partial k < 0$, не совпадает с экспериментально определяемым значением.

Таблица. Параметры полностью симметричных фононов, определяемые из данных частотного (рамановское рассеяние) и временного (накачка–зондирование) доменов. Времена жизни для данных рамановского рассеяния определялись из соотношения $\tau = 2/\Delta\Omega$, в котором $\Delta\Omega$ — ширина лоренцевского вклада спектральной линии на половинной интенсивности. В последнем столбце приведены соотношения для интегральных интенсивностей рамановских линий и когерентных амплитуд обеих мод

Мода	Частота, ТГц		Время жизни, пс		Отношение $A_{1g}^{(I)}/A_{1g}^{(II)}$ интенсивностей и амплитуд	
	Рамановское рассеяние	Накачка–зондирование	Рамановское рассеяние	Накачка–зондирование	Рамановское рассеяние	Накачка–зондирование
$A_{1g}^{(I)}$	1.79 ± 0.03	1.82 ± 0.05	4.53 ± 0.10	4.61 ± 0.10	0.9 ± 0.3	1.47 ± 0.25
$A_{1g}^{(II)}$	4.03 ± 0.04	4.02 ± 0.10	1.71 ± 0.10	1.62 ± 0.20		

Рассмотрев характеристики тепловых фононов, полученные в частотном домене, обратимся к свойствам когерентных фононов, которые получают методом накачки–зондирования фемтосекундными лазерными импульсами. Как мы уже видели, времена жизни оптических фононов находятся в пикосекундном диапазоне, и в частотном домене, к которому относится рамановская спектроскопия, измеряются косвенным путем — как обратная величина ширины соответствующей линии рассеяния. Очевидно, что прямое измерение времени жизни фононов, которое требует временного разрешения, по крайней мере на пикосекундном уровне, имеет преимущество по отношению к косвенному методу и позволяет не только проверить результат последнего, но и, в ряде случаев, уточнить процессы, определяющие время жизни решеточных возбуждений.

Для исследования когерентной динамики решетки использовался метод активной спектроскопии, в котором неравновесное, когерентное состояние решетки создавалось мощным фемтосекундным импульсом накачки, а его кинетика отслеживалась по изменению сигнала отражения слабого зондирующего импульса. Использование сверхкоротких лазерных импульсов позволяет инициировать и управлять движением атомов кристаллической решетки [12]. Действительно, фотоны лазерного импульса с частотами, различающимися на величину кванта решеточных колебаний, приводят к генерации когерентных фононов, т. е. колебаний решетки, при которых все атомы движутся синхронно, поскольку решетка после воздействия импульса накачки находится в квантовой суперпозиции основного и возбужденных состояний.

Для прозрачных кристаллов механизм генерации когерентности описывается в терминах

внутриимпульсного вынужденного комбинационного рассеяния света (в англоязычной литературе — *interpulse (or impulsive) stimulated Raman scattering*, что иногда переводится на русский как «ударное» рассеяние) [30]. Для непрозрачных сред, к которым относится и теллурид висмута, для полностью симметричных мод реализуется механизм смещения (*displacive excitation of coherent phonons* [31]).

В рамановской модели сверхкороткий импульс, ширина спектра которого сравнима с частотой фонона, приводит к когерентному колебанию решетки на любой из комбинационно-активных мод. Вынуждающей силой в этом случае являются множественные пары компонент электромагнитного поля, разнесенных на частоту фонона, который возбуждается динамически [12, 30, 32].

В модели смещения возникновение осцилляций объясняется иным способом. Считается, что лазерный импульс накачки, приводя к увеличению концентрации носителей, меняет экранировку, что ведет к изменению равновесных межъядерных расстояний. Атомы решетки, оказавшись на склоне межатомного потенциала, начинают движение к новому, смещенному положению равновесия и, вследствие инерции, продолжают колебательное движение после его достижения. Такое возбуждение имеет кинематический характер, так как атомы начинают движение с нулевой скоростью.

Несмотря на то что в обеих моделях генерация когерентных фононов осуществляется за счет электрон-фононного взаимодействия, существует мнение, что эти два вида создания когерентности фундаментально различны [33], которое оспаривается в целом ряде работ [34–39], делающих попытку описать их в рамках единого механизма. В унифицированной модели предполагается, что различие между «удар-

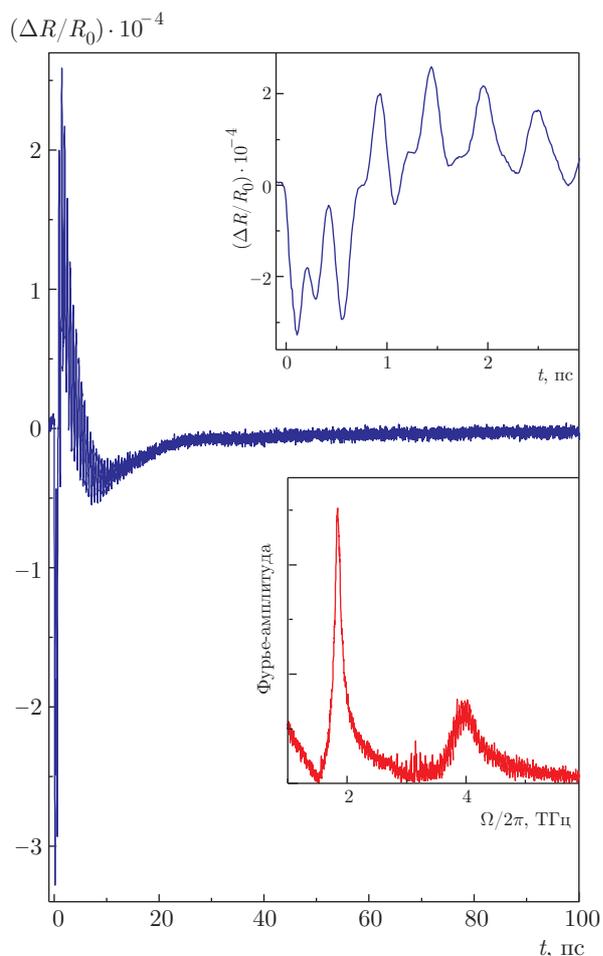


Рис. 3. Разрешенное во времени дифференциальное отражение $\Delta R/R_0$ от базисной плоскости ab монокристалла Bi_2Te_3 . Верхняя вставка показывает осцилляции при малых временных задержках, тогда как на нижней вставке приведен фурье-образ кинетики фотоиндуцированного отражения

ным» рамановским рассеянием и механизмом смещения обусловлено различной природой промежуточных электронных состояний (виртуальные или реальные), принимающих участие в генерации когерентных фононов, а механизм смещения может быть сведен к резонансному случаю рамановского рассеяния [34], но только с учетом процессов «горячей» люминесценции [8, 32].

На рис. 3 представлен типичный результат измерений время-разрешенного оптического отклика $\Delta R/R_0$ при возбуждении и последующем зондировании Bi_2Te_3 фемтосекундными импульсами. Использование невырожденной схемы накачки–зондирования позволило исключить возникновение когерентного артефакта вблизи нулевых временных за-

держек [40] и получать информацию о параметрах фонона при помощи одной компоненты тензора поляризуемости (накачка и зондирование имеют одну поляризацию, поэтому возбуждается и зондируется только одна компонента α_{xx}).

Как следует из рис. 3, после воздействия импульса накачки происходит резкий спад отражения за времена, меньшие 100 фс, что меньше полупериода любой из полносимметричных мод. Этот спад отражения обусловлен возбуждением носителей заряда в объемную и поверхностные зоны проводимости с их дальнейшей термализацией и формированием фермиевского распределения с высокой температурой [41]. Релаксация к равновесному значению занимает несколько пикосекунд и имеет аperiodический характер, свидетельствующий о том, что электронное движение является передемпфированным [42]. Затухание релаксационного отклика меньше критического, поскольку дифференциальное отражение восстанавливается до величин, характерных для невозбужденного кристалла за время порядка нескольких пикосекунд, однако «проскакивает» его по инерции. Релаксационное изменение коэффициента отражения, скорее всего, связано с амбиполярной диффузией носителей из области возбуждения, электрон-дырочной рекомбинацией и электрон-фононным взаимодействием, ведущим к остыванию электронного газа за счет генерации некогерентных фононов и, соответственно, к нагреву решетки. Окончание этих процессов, происходящее в диапазоне временных задержек порядка нескольких десятков пикосекунд, означает достижение термодинамического равновесия между решеточной и электронной подсистемами.

На релаксационный (некогерентный) отклик фотоиндуцированного отражения Bi_2Te_3 наложены осцилляции, происходящие при малых временных задержках с большей, а при больших задержках с меньшей частотой. Это ведет к характерной картине биений (поляризационные биения), которая быстро исчезает (см. верхнюю вставку на рис. 3) в силу различных времен когерентности и амплитуд мод, дающих вклад в биения. Фурье-спектр фотоиндуцированного отражения, показанный на нижней вставке на рис. 3, содержит два пика, частоты которых, 1.8 и 4.0 ТГц, совпадающие в пределах экспериментальной ошибки с данными рамановского рассеяния, соответствуют полносимметричным модам $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$ Bi_2Te_3 . Эти частоты, вместе или по отдельности, регистрировались рядом групп, исследующих когерентную динамику решетки Bi_2Te_3 [18, 23, 43–46].

Следует отметить, что в фурье-спектре отсутствует мода $E_g^{(II)}$, рамановская поляризуемость которой не меньше поляризуемостей полносимметричных мод (см. рис. 2). Более сильные шумы вблизи 3 ТГц в спектре Фурье имеют хорошую воспроизводимость, однако ни в одном из экспериментов эти шумы не приводили к формированию спектральной линии. Отметим, что генерация и детектирование низкосимметричных когерентных мод E_g в Vi_2Te_3 были реализованы в работе [46] при смене длины волны возбуждения и понижении температуры, а также при использовании анизотропного детектирования, позволяющего дискриминировать полносимметричные моды [23]. Пиковая амплитуда низкочастотной моды $A_{1g}^{(I)}$ фурье-спектра в 4 раза больше, чем амплитуда высокочастотной моды $A_{1g}^{(II)}$, тогда как полуширина этой моды приблизительно в три раза меньше, а площади пиков полносимметричных мод $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$ различаются почти в полтора раза. Следует отметить, что пиковые и интегральные амплитуды мод зависели от диапазона, для которого проводилось преобразование Фурье, и эта зависимость была особенно ощутимой для временных диапазонов, сравнимых со временем жизни высокочастотной моды $A_{1g}^{(II)}$.

Для Vi_2Te_3 температура Дебая равна 165 К [4], поэтому при комнатной температуре все моды решетки, включая полносимметричные, возбуждены до прихода импульса накачки. Однако, поскольку тепловые фононы находятся в стационарных состояниях, их вклад в нормированное, дифференциальное времяразрешенное отражение проявляется только во времени жизни когерентных фононов, которое лимитируется упругими столкновениями в фононном газе. При этом основной вклад во время жизни когерентной моды дает взаимодействие с модами резервуара. С понижением температуры частоты и времена жизни обеих полносимметричных мод увеличиваются [46], а с ростом возбуждения мода $A_{1g}^{(II)}$ демонстрирует большую ангармоничность, проявляющаяся в нелинейности отклика и возникновении чирпа частоты осцилляций [18, 45].

Параметры когерентных фононов, наблюдаемых во временном домене, определялись из экспериментальных данных двумя различными способами. В первом случае кинетика фотоиндуцированного отражения $\Delta R/R_0$ подгонялась двумя демпфированными гармоническими осцилляторами и набором экспоненциальных членов:

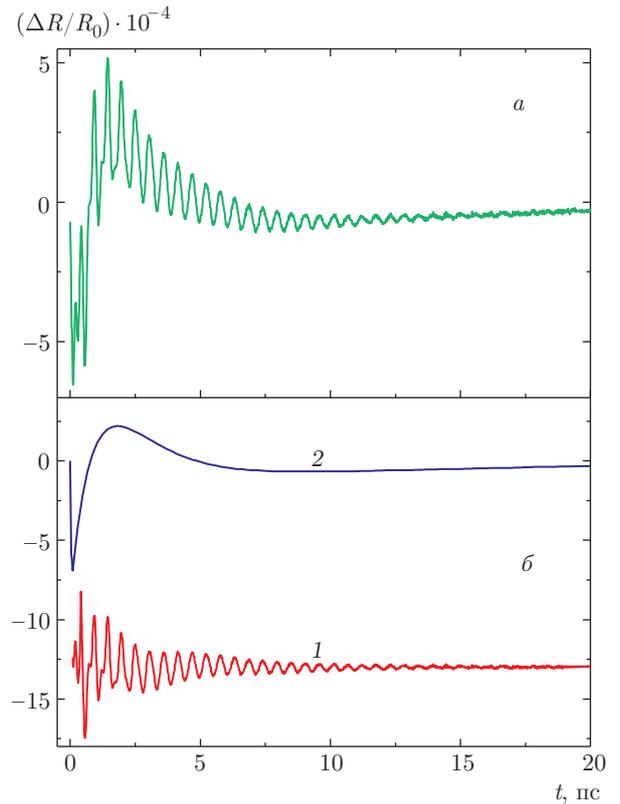


Рис. 4. а) Кинетика фотоиндуцированного отражения $\Delta R/R_0$ (а) и ее разложение (б) на когерентную (решеточную, кривая 1) и некогерентную (электронную, кривая 2) компоненты. На рис. б компоненты разнесены по оси ординат

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \sum_i \left[B_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i^{(el)}}\right) + A_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \sin(\Omega_i t + \varphi_i) \right], \quad (3)$$

где B_i — амплитуды электронных вкладов, $\tau_i^{(el)}$ — характерные времена изменения и восстановления некогерентной компоненты, A_i — когерентная амплитуда, Ω_i — круговая частота, τ_i — время когерентности, а φ_i — начальная фаза соответствующего полносимметричного A_{1g} -фонона.

Подобная аппроксимация позволяет сравнить когерентный и некогерентный вклады, которые оказываются соизмеримыми, что иллюстрирует рис. 4. Во втором случае для определения параметров полносимметричных фононов сигнал фотоиндуцированного отражения обрабатывался полосовым фильтром с нижней и верхней частотами среза соответственно 1 и 10 ТГц. Такая фильтрация позволяла удалить релаксационную компоненту и

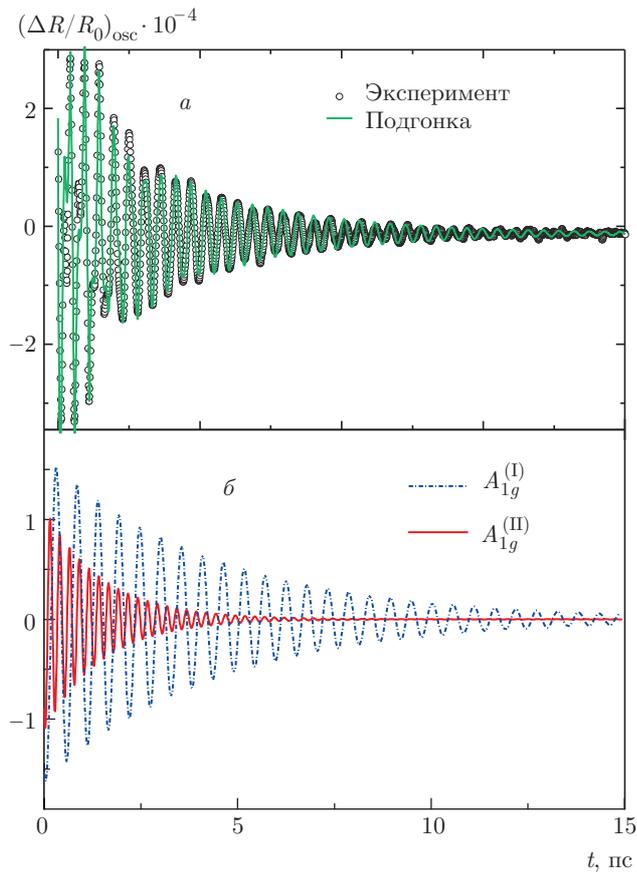


Рис. 5. (В цвете онлайн) *а*) Когерентная часть сигнала фотоиндуцированного отражения $\Delta R/R_0$ после обработки полосовым фильтром (значки) и ее подгонка двумя затухающими синусоидами (зеленая линия). *б*) Выделенные из когерентной компоненты вклады полностью симметричных мод $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$

высокочастотные шумы и не влияла на параметры осцилляций.

Отфильтрованный сигнал $(\Delta R/R_0)_{osc}$, показанный на рис. 5а, аппроксимировался двумя затухающими синусоидами, представляющими собой второй член формулы (3). Поскольку оба метода давали практически неразличимые параметры когерентных фононов, в дальнейшем будем приводить результаты только второго метода. Эти когерентные амплитуды, частоты и времена жизни когерентных фононов $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$ приведены в таблице. Отметим, что начальные фазы обеих полностью симметричных мод были близки к $\pi/2$, что можно увидеть из разложения когерентной части сигнала на компоненты (рис. 5б), а отношение когерентных амплитуд мод $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$ превышало единицу. Относительная ошибка в определении начальной фазы и когерентной амплитуды

была больше для высокочастотной моды $A_{1g}^{(II)}$ в силу увеличенного отношения длительности импульса к периоду осцилляций и меньшего времени жизни.

Из сравнения данных временного и частотного доменов, представленных в таблице, также следует, что времена жизни и частоты практически совпадают для когерентных и тепловых фононов. Тем не менее следует отметить, что частота тепловых фононов $A_{1g}^{(I)}$ систематически несколько меньше частоты, измеряемой во временном домене, хотя это различие не сильно превышает ошибку измерений. Это различие может быть вызвано различными длинами волны света и, как следствие, различной глубиной проникновения света в экспериментах частотного и временного доменов. В этом случае вклад поверхностных состояний увеличивается для измерений в частотном домене, поскольку для него глубина проникновения меньше [26]. Действительно, из измерений времяразрешенной фотоэмиссии и расчетов методом функционала плотности известно, что частота поверхностной моды $A_{1g}^{(I)}$ в топологическом изоляторе испытывает незначительное смягчение [16], поскольку для нее уменьшается ван-дер-ваальсовское взаимодействие, играющее роль возвращающей силы. Для примера, смягчение частоты поверхностной моды $A_{1g}^{(I)}$ до 0.2 ТГц было зафиксировано как для монокристалла [16] методом фотоэмиссии с угловым разрешением, так и в рамановских исследованиях нанослоев Bi_2Se_3 [47].

Поскольку для высокочастотной моды $A_{1g}^{(II)}$ время когерентности существенно меньше времени жизни низкочастотных осцилляций $A_{1g}^{(I)}$, можно предположить, что ее параметры определяются с большей погрешностью. Чтобы уточнить эти параметры, был осуществлен оптический контроль фотоиндуцированного отражения с целью исключить вклад низкочастотной моды $A_{1g}^{(I)}$ в когерентный отклик. Для когерентного контроля использовалась двухимпульсная схема накачки, в которой первый лазерный импульс готовит когерентное состояние решетки, тогда как второй импульс усиливает или ослабляет осцилляции, созданные первым импульсом [12, 20]. Это отчасти похоже на интерференцию двух световых волн с постоянной разностью фаз, при которой суммарная интенсивность света в одних местах увеличивается, а в других уменьшается, с той лишь разницей, что интерференция в нашем случае происходит во времени, а не в пространстве и интерферируют не световые волны, а волны упругой деформации. В двухимпульсной схеме эксперимента появляется новый управляющий параметр $\tau_{1,2}$ — время за-

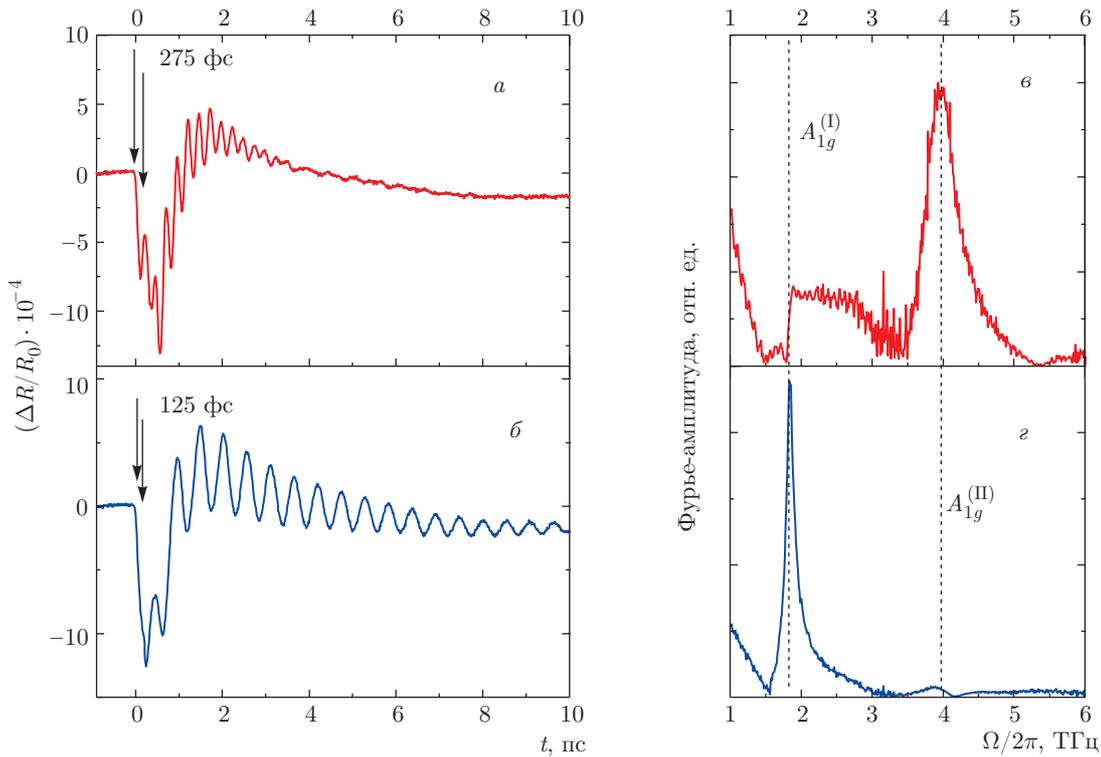


Рис. 6. Когерентный контроль, иллюстрирующий подавление низкочастотной $A_{1g}^{(I)}$ (а) и высокочастотной $A_{1g}^{(II)}$ (б) мод. Выбирая управляющие параметры $\tau_{1,2} = 275$ фс и $\tau_{1,2} = 125$ фс, практически совпадающие с полупериодами осцилляций $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$, удается подавить низкочастотный (а) и высокочастотный (б) вклады, что можно легко увидеть как по исчезновению картины биений при малых временных задержках, так и из фурье-спектров откликов, показанных на рис. в и г. В последних доминирует только одна полностью симметричная мода, тогда как другая практически исчезает, что следует из качественного сравнения с фурье-спектром нижней вставки на рис. 3

держки между импульсами, поскольку кристалл возбуждают не одним, а двумя импульсами с контролируемой задержкой между ними. Нас интересуют высокочастотные осцилляции $A_{1g}^{(II)}$, время расфазировки которых значительно меньше, чем время расфазировки низкочастотных осцилляций $A_{1g}^{(I)}$, и поэтому их вклад в фотоиндуцированное отражение существен только при малых временах задержки. Выбирая управляющий параметр $\tau_{1,2} = 275$ фс, практически совпадающий с полупериодом низкочастотных осцилляций $A_{1g}^{(I)}$, и равные интенсивности импульсов накачки, нам удалось подавить $A_{1g}^{(I)}$ -вклад, что можно легко увидеть как по исчезновению картины биений, так и из фурье-спектра отклика, приведенных на рис. 6.

Однако время жизни и частота $A_{1g}^{(II)}$ -фононов, полученные после подавления низкочастотных осцилляций, практически совпадают с параметрами, определяемыми из сигнала одноимпульсной методики. Тем не менее с помощью данного метода мож-

но существенно повысить точность определения параметров решеточной динамики, а также создавать состояния с заданными свойствами. Действительно, известно, что модификация топологических свойств может быть реализована за счет различного рода деформаций [1], таких как гидростатическое сжатие или одноосная деформация, в результате которых происходит статическое изменение параметров кристаллической структуры. Такая же, но только динамическая и управляемая модификация параметров возможна за счет когерентных фононов, которые модулируют величину объемной энергетической щели и меняют дисперсию электронных зон [12, 32].

Результаты оптического контроля полностью симметричных мод могут быть поняты в рамках модели смещения [31] следующим образом. Первый импульс накачки помещает атомы на склон потенциала, и через половину периода они оказываются в точке классического поворота на противоположном склоне. В это время второй импульс, возбуждая

необходимое число носителей в лежащие выше зоны, сдвигает минимум потенциала именно в эту точку. Поскольку в точке поворота кинетическая энергия атомов равна нулю, оказавшись в минимуме потенциала, они прекращают движение. Аналогичным образом можно увеличивать амплитуду осцилляций, смещая потенциал в моменты времени, кратные периоду осцилляций [12].

Изменив управляющий параметр на $\tau_{1,2} = 125 \approx \pi/\Omega_{A_{1g}^{(II)}}$, мы можем подавить высокочастотные осцилляции $A_{1g}^{(II)}$, что иллюстрирует рис. 6б. Таким образом, оптический контроль позволяет дискриминировать когерентное возбуждение различных мод и создавать состояния, в которых атомы движутся заданным способом. Другими словами, когерентный контроль играет роль фильтра, позволяющего создавать состояния с заданными свойствами. При этом степень когерентности макроскопического состояния, пропорциональная амплитуде осцилляций, зависит только от суммарной энергии возбуждающих импульсов, но не от средней энергии моды, которая определяется спектром возбуждающих импульсов [48]. Поскольку в данной работе использовались лазерные импульсы длительностью 50 фс, спектр которых в предположении гауссовой формы импульса не превышает 5 ТГц, когерентная суперпозиция реализовывалась только для вакуумного $|0\rangle$ и первого возбужденного $|1\rangle$ состояний фононной моды, тогда как вклад более высокоэнергетичных $n > 1$ состояний практически отсутствовал, по крайней мере для моды $A_{1g}^{(II)}$.

Следует отметить, что управляя величинами амплитуд мод $A_{1g}^{(I)}$ и $A_{1g}^{(II)}$ в экспериментах по когерентному контролю, мы не наблюдали изменения электронного отклика, который оставался одним и тем же в пределах экспериментальной ошибки. Это не согласуется с результатами работы [44], в которой наблюдалась модификация релаксационного электронного отклика Bi_2Te_3 при изменении величины когерентной амплитуды моды $A_{1g}^{(I)}$. Данное различие, скорей всего, обусловлено величиной решеточных смещений, которые в нашей работе были на один-два порядка меньше, чем в упомянутом выше исследовании. Можно предположить, что эксперимент [44] проводился в нелинейном режиме, в котором рост когерентной амплитуды и релаксационной компоненты с ростом степени возбуждения происходит с различными скоростями [49]. Известно, что в этом случае второй импульс возбуждения меняет различным образом когерентную и некогерентную компоненты сигнала [20], что и наблюдалось в ра-

боте [44] для теллурида висмута, а ранее [20] для монокристаллов висмута.

Отметим, что очевидная, но наивная аналогия сдвига потенциала для объяснения когерентного контроля, как и аналогия о раскачивании качелей при параметрическом резонансе, часто используемая для рамановского возбуждения когерентности, при всей своей очевидности имеет ограниченное применение, поскольку объясняет изменение средней энергии решеточных колебаний, а не исчезновение или рост их когерентности. Она справедлива только для случая, когда средняя энергия моды много больше величины колебательного кванта [48], тогда как в нашем случае их соотношение много меньше единицы.

Для построения адекватной модели контроля необходимо определить природу когерентных осцилляций, а именно, установить, являются ли они квантовым или классическим явлением. Однако проблема идентификации природы когерентных фононов остается спорной до настоящего времени [50, 51]. Действительно, перевести возбуждения решетки в когерентное состояние, сформировав волновой пакет, в котором движение атомов коррелировано, можно двумя различными способами. Одним способом является синхронизация фононных мод оптической ветви с различными волновыми векторами [50], а другим способом может быть создание макроскопического заполнения одной фононной моды с нулевым волновым вектором [51]. В первом случае состояние решетки является классическим, тогда как во втором случае реализуется квантовое состояние Глаубера [52]. Действительно, в первом случае волновой пакет создается из состояний сплошного спектра, тогда как во втором случае он формируется из состояний дискретного спектра (одно-, двух-, трех- и т. д. фононных состояний). Очевидно, что условие неразличимости фононов — отличительная черта квантовомеханического описания — присутствует в глауберовском состоянии и отсутствует при синхронизации фононных мод с различными волновыми векторами.

На основе экспериментальных данных работы мы, конечно, не сможем ответить на вопрос, какая из гипотез [50, 51] является более верной. Тем не менее, заметим, что для непрозрачных кристаллов, у которых глубина δ проникновения света много меньше длины волны света, и мы всегда имеем дело не с состояниями одной фононной моды с нулевым волновым вектором, а с набором мод, волновые векторы которого распределены в интервале δ^{-1} [6]. Поэтому следует различать макроскопическую когерент-

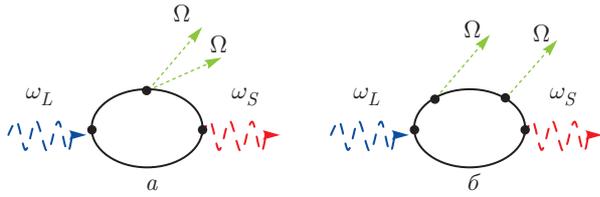


Рис. 7. Фейнмановская диаграмма рамановского рассеяния на бифонеоне (а) и на двух некоррелированных фононах (б). Штриховая волнистая линия — фотон, точечная прямая — фотон, символ • — вершина взаимодействия

ность, определяемую числом сфазированных мод, и когерентность микроскопическую, контролируруемую числом уровней каждой моды, между которыми возникают фазовые соотношения при реализации квантовой суперпозиции [48]. Мы можем увеличить последнюю, если включим в суперпозицию не только основное и первое возбужденное, но и лежащие выше состояния. Для этого нам понадобятся лазерные импульсы, спектр которых значительно шире, чем энергия фонона. Более точно, нам нужны импульсы, в которых имеется достаточное число пар фотонов, энергии которых различаются на удвоенную, утроенную и т. д. энергию решеточного кванта. Реализовать такие импульсы можно либо увеличением интенсивности накачки, оставляя длительность импульса неизменной, либо укорочением длительности импульса при его неизменной энергии.

Действительно, увеличивая интенсивность накачки и переходя в нелинейный режим [49], мы зарегистрировали в висмуте когерентные осцилляции не только полносимметричного A_{1g} -фонона с частотой около 3 ТГц, но и его первого обертона [53, 54]. Вклад последнего был на два–три порядка меньше вклада основной гармоники, но убедительно свидетельствовал, что в суперпозиционном состоянии находятся не только соседние уровни моды, но и уровни, различающиеся на удвоенную энергию кванта решеточных возбуждений.

Объяснить этот результат можно в рамках унифицированного рамановского механизма создания когерентности. Для этого достаточно учесть вклад в рассеяние фейнмановских диаграмм, приведенных на рис. 7а. В отличие от стандартной диаграммы, описывающей двухфононное рассеяние как итерацию однофононных процессов, диаграмма на рис. 7а отвечает за создание бифонеона [55], поскольку фазы обеих компонент возбуждения, рожденных в один и тот же момент времени, совпадают [6]. Это становится очевидным при сравнении с диаграммой на рис. 7б, из которой следует, что в итерационном, кас-

кадном процессе фононы рождаются в различные моменты времени и, как результат, не могут иметь общую фазу. Поскольку каскадный процесс меняет населенности, но не создает когерентности, которая возникает только для прямых процессов, вклад диаграмм на рис. 7б существен только для частотного, но не временного домена.

С другой стороны, при использовании импульсов длительностью, меньшей 10 фс [56], в кремнии и арсениде галлия наблюдались когерентные гармоники, вплоть до седьмого порядка, соответственно для трижды вырожденного F_{2g} -фонона и фотон-плазмонной ЛО-моды. Это означает, что суперпозиционное состояние решеточных возбуждений этих полупроводников включало, по крайней мере, семь энергетических уровней. С учетом того, что энергии основных гармоник составляли соответственно 15.6 и 7.8 ТГц, данный эксперимент продемонстрировал создание частотных решеток с шириной спектра 100 и 60 ТГц. А с учетом того, что в когерентном состоянии распределение фононов по энергетическим уровням определяется распределением Пуассона [10], для которого среднее совпадает с дисперсией, число фононов в моде увеличивается по сравнению со случаем, когда в когерентной суперпозиции участвуют только основное и первое возбужденное состояния.

Кроме того, следует отметить, что в большинстве исследований временного домена сравнение с данными рамановского рассеяния происходит после трансформации временной кинетики в частотный диапазон при помощи интегрального фурье-преобразования. При обосновании подобного сравнения не нужно забывать, что информация о параметрах фононов получается в этих двух различных, но связанных доменах разными способами. В частотном домене (спонтанное рамановское рассеяние) спектральный анализ завершается измерением с применением квадратичного детектора интенсивности спектра $I(\omega)$, который, в соответствии с теоремой Винера–Хинчина, является фурье-преобразованием корреляционной функции

$$I(\omega) = \int \langle E(t)E^*(t + \tau) \rangle e^{-i\omega\tau} d\tau. \quad (4)$$

Здесь угловые скобки обозначают статистическое усреднение, а ω — круговую частоту светового поля. Во временном домене при использовании метода накачка–зондирование изучаются флуктуации интенсивности, поскольку излучение сначала преобразуется в сигнал квадратичного детектора, а спектральному анализу, если это необходимо, подверга-

ется уже этот сигнал [57, 58]. Перестановка детектирующих и спектроанализирующих элементов в эксперименте приводит к увеличению разрешения за счет переноса спектрального анализа в низкочастотный диапазон.

Поскольку сигнал детектора пропорционален интенсивности света, $I(t) \propto |E(t)|^2$, преобразованной в частотный диапазон является величина $\langle I(t) \rangle \langle I(t + \tau) \rangle$. Только в случае «статистического» метода накачки-зондирования [59], в котором наряду со средними значениями интенсивности для каждой временной задержки измеряется и ее дисперсия, мы получаем доступ к коррелятору интенсивность-интенсивность $\langle I(t)I(t + \tau) \rangle$. Спектр интенсивности, получаемый в результате фурье-преобразования при замене полевой коррелятора на $\langle I(t)I(t + \tau) \rangle$ в выражении (4), безусловно, связан со спектром поля.

Однако интенсивность спектра и спектр интенсивности несут одну и ту же информацию только для гауссовых процессов, когда все корреляционные функции могут быть выражены через парный полевой коррелятор [57]. Фемтосекундные импульсы, полученные синхронизацией мод, вряд ли могут быть рассмотрены как гауссов процесс (их интенсивность не является простой суммой интенсивностей отдельных мод), поэтому фурье-спектр временного домена вовсе не обязан совпадать со спектром поля, измеряемым методом спонтанного рамановского рассеяния.

Тем не менее проведенные эксперименты с фононами Bi_2Te_3 позволяют проверить соотношение для характерных времен продольной релаксации диагональных элементов и поперечной релаксации недиагональных элементов матрицы плотности фононного ансамбля. Если мы аппроксимируем фононную моду двухуровневой системой, состоящей из основного (вакуумного) и первого возбужденного уровней, то эти времена, T_1 и T_2 , при феноменологическом рассмотрении описывают соответственно энергетические релаксации населенности верхнего уровня к равновесному значению и когерентности (поляризации) к нулевому значению.

Подобное упрощение ситуации (замена гармонического осциллятора набором двухуровневых систем), скорее всего, оправдано, поскольку ширина спектра использованных в работе лазерных импульсов позволяет создать когерентную суперпозицию только для двух уровней. Согласно рассмотрению Кубо [60], диагональные и недиагональные элементы матрицы плотности релаксируют к равновесию с одним и тем же характерным временем $\tau = T_1 = T_2$.

Однако существует мнение [61], что соотношение времен релаксации имеет вид $T_2 = 2T_1$, что интуитивно следует из того факта, что энергия является квадратичной функцией канонических переменных, тогда как когерентность связана с осцилляторными координатами линейно.

Поскольку ширина спектральной линии равновесного фонона определяется диссипативным процессом энергетической релаксации, логично связать ее с релаксацией диагональных элементов матрицы плотности (недиагональные элементы в этом случае равны нулю). Время жизни когерентных фононов контролируется их расфазировкой и определяется релаксацией недиагональных элементов матрицы плотности. Из эксперимента следует, что эти времена для полносимметричных фононов Bi_2Te_3 практически совпадают, т. е. распад диагональных и недиагональных элементов в отсутствие внешнего воздействия происходит с одинаковой скоростью, что согласуется с предложением Кубо [60]. Следует отметить, что аналогичное соотношение между временем жизни когерентного фонона и обратной шириной линии теплового фонона в висмуте наблюдалось в широком диапазоне температур — от гелиевой до комнатной [62].

Однако следует также отметить, что в большинстве исследований методом накачки-зондирования времена жизни когерентных фононов отличаются от времен энергетической релаксации тепловых фононов [12], которые, как правило, берутся из литературных данных по рамановскому рассеянию. Отчасти это может быть объяснено тем, что целый ряд экспериментальных условий, как и образцы исследований, были различны для исследований временного и частотного доменов. Тем не менее более подробное обсуждение этого вопроса выходит за рамки данной работы, преследовавшей несколько другие цели, а именно, экспериментальное сравнение времен энергетической и фазовой релаксаций для тепловых и когерентных фононов одного и того же кристалла Bi_2Te_3 из данных частотного и временного доменов.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При помощи оптического исследования в частотном и временном доменах проведено сравнение полносимметричных тепловых и когерентных фононов топологического изолятора Bi_2Te_3 . Измерения в частотном домене проводились методом спонтанного рамановского рассеяния, а времена жизни тепло-

вых фононов определялись как обратная полуширина спектральной линии. Времена жизни когерентных фононов, созданных фемтосекундными лазерными импульсами, измерялись во временном диапазоне методом накачки–зондирования из затухания когерентных осцилляций.

Показано, что частоты тепловых и когерентных полносимметричных фононов равны, а потеря фазовой информации в когерентном состоянии происходит за время, совпадающее со временем энергетической релаксации. Отметим, что равенство времен энергетической релаксации и расфазировки наблюдалось как для низкочастотной $A_{1g}^{(I)}$, так и для высокочастотной $A_{1g}^{(II)}$ мод. Полученный результат свидетельствует о том, что распад диагональных и недиагональных элементов матрицы плотности фононного ансамбля в отсутствие внешнего воздействия происходит с одинаковой скоростью, что согласуется с предложением Кубо [60]. Также продемонстрировано, что наличие хорошо определенной фазы у когерентных A_{1g} -фононов позволяет осуществить селективный оптический контроль динамики решетки, создавая решеточные состояния с необходимыми (наперед заданными) свойствами. Оба результата являются новыми и углубляют осмысление когерентной динамики решетки.

Исследование выполнено при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 17-02-00002-а) и Правительства РФ (соглашение № 05.Y09.21.0018).

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Z. Hasan and C. L. Kane, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 3045 (2010).
2. С. И. Веденеев, *УФН* **187**, 411 (2017).
3. Y. L. Chen, J. G. Analytis, J.-H. Chu et al., *Science* **325**, 178 (2009).
4. H. J. Goldsmid, *Materials* **7**, 2577 (2014).
5. Дж. Займан, *Электронны и фононы. Теория явлений переноса в твердых телах*, пер. с англ. под ред. В. Л. Бонч-Бруевича, Изд-во иностр. лит., Москва (1962).
6. M. Cardona, in *Light Scattering in Solids I*, ed. by M. Cardona, Springer, Berlin (1983).
7. Y. R. Shen, *Phys. Rev. B* **9**, 622 (1974).
8. A. A. Melnikov, O. V. Misochko, and S. V. Chekalin, *Phys. Lett. A* **375**, 2017 (2011).
9. Г. Хакен, *Синергетика*, Мир, Москва (1980).
10. В. П. Шлях, *Квантовая оптика в фазовом пространстве*, Физматлит, Москва (2005).
11. J. A. Giordmaine and W. Kaiser, *Phys. Rev.* **44**, 676 (1966).
12. K. Ishioka and O. V. Misochko, in *Progress in Ultrafast Intense Laser Science V*, ed. by K. Yamanouchi, A. Giullietti, and K. Ledingham, Springer Ser. in Chem. Phys., Berlin (2010), p. 23.
13. X. Zhu, L. Santos, C. Howard et al., *Phys. Rev. Lett.* **108**, 185501 (2012).
14. C. Howard and M. El-Batanouny, *Phys. Rev. B* **89**, 075425 (2014).
15. M. V. Costache, I. Neumann, J. F. Sierra et al., *Phys. Rev. Lett.* **112**, 086601 (2014).
16. J. A. Sobota, S.-L. Yang, D. Leuenberger et al., *Phys. Rev. Lett.* **113**, 157401 (2014).
17. J. Flock, T. Dekorsy, and O. V. Misochko, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 011902 (2014).
18. O. V. Misochko, J. Flock, and T. Dekorsy, *Phys. Rev. B* **91**, 174303 (2015).
19. V. Chis, I. Yu. Sklyadneva, K. A. Kokh et al., *Phys. Rev. B* **86**, 174304 (2012).
20. О. В. Мисочко, Р. Лу, М. Хасе, М. Китажима, *ЖЭТФ* **131**, 275 (2007).
21. W. Richter, H. Kohler, and C. R. Becker, *Phys. Stat. Sol. (b)* **84**, 619 (1977).
22. W. Kullmann, J. Geurts, W. Richter et al., *Phys. Stat. Sol. (b)* **125**, 131 (1984).
23. J. Li, Ph. D. Thesis, University of Michigan (2012).
24. O. V. Misochko, K. Kisoda, K. Sakai et al., *Appl. Phys. Lett.* **76**, 961 (2000).
25. V. V. Atuchin, T. A. Gavrilova, K. A. Kokh et al., *Sol. St. Comm.* **152**, 1119 (2012).
26. D. L. Greenaway and G. Harbeke, *J. Phys. Chem. Sol.* **26**, 1585 (1965).
27. O. V. Misochko and E. Y. Sherman, *Physica C* **222**, 219 (1994).
28. V. Wagner, G. Dolling, B. M. Powel, and G. Landweh, *Phys. Stat. Sol. (b)* **85**, 311 (1978).
29. W. Cheng and S.-F. Ren, *Phys. Rev. B* **83**, 094301 (2011).

30. L. Dhar, J. A. Rogers, and K. A. Nelson, *Chem. Rev.* **94**, 167 (1994).
31. H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng et al., *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
32. O. V. Misochko and M. V. Lebedev, *Phys. Rev. B* **94**, 184307 (2016).
33. N. Bloembergen, *Rev. Mod. Phys.* **71**, S283 (1999).
34. G. A. Garrett, T. F. Albrecht, J. F. Whitaker, and R. Merlin, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3661 (1996).
35. R. Merlin, *Sol. St. Comm.* **102**, 207 (1997).
36. T. E. Stevens, J. Kuhl, and R. Merlin, *Phys. Rev. B* **65**, 144304 (2002).
37. D. M. Riffe and A. J. Sabbah, *Phys. Rev. B* **76**, 085207 (2007).
38. J. J. Li, J. Chen, D. A. Reis et al., *Phys. Rev. Lett.* **110**, 047401 (2013).
39. K. G. Nakamura, Y. Shikano, and Y. Kayanuma, *Phys. Rev. B* **92**, 144304 (2015).
40. М. В. Лебедев, О. В. Мисочко, Т. Декорси, Н. Георгиев, *ЖЭТФ* **127**, 308 (2005).
41. J. L. Wang, L. Guo, C. Ling et al., *Phys. Rev. B* **93**, 155306 (2016).
42. М. В. Лебедев, О. В. Мисочко, *ФТТ* **51**, 1735 (2009).
43. A. Q. Wu, X. Xu, and R. Venkatasubramanian, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 011108 (2008).
44. J. L. Wang, L. Guo, C. H. Liu et al., *Appl. Phys. Lett.* **107**, 063107 (2015).
45. N. Kamaraju, S. Kumar, and A. K. Sood, *Europhys. Lett.* **92**, 47007 (2010).
46. О. В. Мисочко, А. А. Мельников, С. В. Чекалин, А. Ю. Быков, *Письма в ЖЭТФ* **102**, 262 (2015).
47. J. Zhang, Z. Peng, A. Soni et al., *Nano Lett.* **11**, 2407 (2011).
48. S. Mukamel and Y. J. Yan, *J. Phys. Chem.* **95**, 1015 (1991).
49. О. В. Мисочко, М. В. Лебедев, *ЖЭТФ* **136**, 931 (2009).
50. R. Scholz, T. Pfeifer, and H. Kurz, *Phys. Rev. B* **47**, 16229 (1993).
51. A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3243 (1994).
52. R. J. Glauber, *Phys. Rev.* **130**, 2529 (1963).
53. О. В. Мисочко, М. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, *Phys. Lett. A* **321**, 381 (2004).
54. О. В. Мисочко, *ЖЭТФ* **145**, 262 (2014).
55. О. В. Мисочко, J. Hu, and K. G. Nakamura, *Phys. Lett. A* **375**, 4141 (2011).
56. M. Hase, M. Katsuragawa, A. M. Constantinescu, and H. Petek, *New J. Phys.* **15**, 055018 (2013).
57. Е. Б. Александров, Ю. М. Голубев, А. В. Ломакин, В. А. Носкин, *УФН* **140**, 547 (1983).
58. О. В. Мисочко, *ЖЭТФ* **119**, 285 (2001).
59. F. Randi, M. Esposito, F. Giusti et al., *Phys. Rev. Lett.* **119**, 187403 (2017).
60. R. Kubo, *J. Phys. Soc. Jpn.* **12**, 570 (1957).
61. В. Л. Вакс, В. В. Митюгов, *УФН* **169**, 1163 (1999).
62. M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, and S. Nakashima, *Phys. Rev. B* **58**, 5448 (1998).