

ПРЯМЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ УЛЬТРАКОРОТКИХ ВРЕМЕН ЖИЗНИ ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ

Недавно были предприняты первые успешные попытки прямого измерения времени жизни поперечных оптических (ТО)-фононов, активных в комбинационном рассеянии (КР)^{1, 2}. Времена жизни оптических фононов в конденсированных средах имеют порядок величины 10^{-12} — 10^{-11} сек, и до сих пор эти ультракороткие временные интервалы измерялись косвенным путем — как обратная величина ширины соответствующих линий спонтанного КР или ширины пиков неупругого рассеяния тепловых нейтронов.

Конечное время жизни оптического фонона обусловлено ангармоническим взаимодействием между нормальными колебаниями в реальном кристалле. Правила отбора ограничивают число возможных взаимодействий, так что доминирующими оказываются процессы, в которых оптический фонон распадается на два или три фонона, принадлежащих акустической ветви³. В случае оптических колебаний молекул жидкости процессом, в основном обуславливающим «естественную» ширину линии спонтанного КР, является диссипативная потеря молекулой колебательного кванта⁴.

К настоящему времени имеется целый ряд работ, в которых содержатся результаты тщательных измерений ширины и формы спектральных линий КР; по ним можно оценить времена жизни фононов, участвующих в рассеянии. Например, по данным работ⁵ можно заключить, что время жизни ТО-фононов с частотой 1332 см^{-1} в алмазе составляет при комнатной температуре $(2.6 \pm 0.3) \cdot 10^{-12}$ сек, а фононов с частотой 1086 см^{-1} в кальците — $(4.0 \pm 0.4) \cdot 10^{-12}$ сек.

Прямое измерение столь коротких времен стало возможным лишь в результате развития техники лазеров с синхронизованными модами, способных генерировать наносекундные импульсы излучения в видимом и инфракрасном диапазонах. Мощные импульсы излучения таких лазеров можно использовать для «ударного» возбуждения нескольких мод оптической ветви фононного спектра среды — посредством нестационарного вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР)⁶, — и затем исследовать динамику затухания этих мод, наблюдая рассеяние на них слабых пробных импульсов света, посылаемых в среду вслед за мощным импульсом накачки с небольшой задержкой во времени⁷.

Подобные схемы с использованием пробного луча применялись в последние годы для определения времени «продольной» релаксации колебательного уровня в молекуле H_2 ($\sim 10^{-5}$ сек)⁸ и для измерения времени жизни акустических фононов при низких температурах в кварце и жидком гелии ($\sim 10^{-7}$ сек)⁹.

Особенностью методики пробного луча в применении к исследованию вынужденных оптических колебаний решетки (т. е. когерентных оптических фононов) является необходимость согласования фазовых соотношений между лучом оптических фононов и лучом пробного света. Условие такого согласования имеет вид¹⁰

$$q_{\Phi} = k_{\text{пр}} - k_{\text{с}}^{\text{пр}}, \quad (1)$$

где $k_{\text{пр}}$, $k_{\text{с}}^{\text{пр}}$ — волновые векторы пробной волны и стоксовой компоненты рассеянного пробного излучения соответственно, $\hbar q_{\Phi}$ — квазиимпульс когерентных фононов, порождаемых в процессе ВКР мощного излучения накачки:

$$q_{\Phi} = k_{\text{н}} - k_{\text{с}}; \quad (2)$$

Здесь $k_{\text{н}}$, $k_{\text{с}}$ — волновые векторы волны накачки и стоксовой компоненты ВКР.

Важность этого согласования фаз связана со следующими обстоятельствами. Как показывает расчет, амплитуда вынужденных решеточных колебаний, «раскачанных» в процессе ВКР даже самых мощных из осуществимых в настоящее время лазерных импульсов, составляет 10^{-3} – 10^{-4} величины среднеквадратичных смещений атомов или ионов, образующих решетку, из положения равновесия вследствие теплового возбуждения при температурах ≥ 100 К. Таким образом, чтобы зарегистрировать заметное возрастание над уровнем спонтанного КР эффективности рассеяния пробного луча, обусловленного его рассеянием на вынужденных решеточных колебаниях, нужно с необходимостью использовать свойство когерентности этих колебаний; это и достигается при выполнении условий (1) — (2).

Очевидно, прямой метод измерения времени жизни фононов имеет определенные преимущества по отношению к косвенным методам. Во-первых, прямые измерения в известном смысле обоснованы бы возможностью использования результатов косвенных измерений. Во-вторых, сравнение данных прямых измерений времени релаксации со спектральными данными позволило бы в ряде случаев оценить вклад однородного и неоднородного уширений в общую спектральную ширину линии спонтанного рассеяния. И, наконец, измерение времени жизни фононов, относящихся к сильно возбужденным модам (как это имеет место в процессе нестационарного ВКР и ВРМБ) дало бы возможность непосредственно наблюдать «включение» дополнительных механизмов затухания фононов — таких, как вынужденный параметрический распад фононов оптической ветви на пары акустических фононов¹¹ и др. В качестве пробного луча удобно брать вторую оптическую гармонику небольшой доли излучения лазера, осуществляющего накачку, и наблюдать стоксово (или антистоксово) рассеянное пробное излучение, интересующая главным образом зависимостью его интенсивности от величины временной задержки τ пробного импульса по отношению к импульсу накачки.

В направлении фазового синхронизма (1) — (2) интегральная (по времени) интенсивность пробного стоксова импульса выражается следующей формулой:

$$W_{\text{с}}(\tau) \approx \left[\frac{2\pi}{cn_{\text{с}}} N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_0 \right]^2 l^2 \frac{2\hbar\omega_{\text{с, пр}}^2}{\omega_0 T_2} \int_0^{\infty} J_{\text{пр}}(\eta) d\eta \times \\ \times \int_{\eta-t_p}^{\eta} e^{-2t/T_2} dt \int_0^l dz I_0^2 \left(\sqrt{\frac{2z}{T_2} \int_{\eta-t}^{t_p} g_0 J_{\text{н}}(t') dt'} \right); \quad (3)$$

здесь $J_{\text{н}}(t)$, $J_{\text{пр}}(t)$ — интенсивности импульсов накачки и пробного излучения соответственно, $\eta = t - (z/v)_0$ — «местное время» волны, распространяющихся вдоль оси Oz ; $(\partial \alpha / \partial q)_0$ — производная электронной поляризуемости по ядерной координате, N — число рассеивающих центров в единице объема, l — длина области взаимодействия пробного излучения с лучом оптических фононов, g_0 — стационарный фактор нарастания стоксовой компоненты ВКР накачки, ω_0 — частота фононов, T_2 — время (поперечной) релаксации колебаний решетки, $I_0(x)$ — модифицированная функция Бесселя.

При достаточно больших задержках, $\tau \gg t_p$ (где t_p — эффективная длительность импульсов), формулу (3) можно представить в следующем виде:

$$W_{\text{с}}(\tau) \approx N \frac{\hbar\omega_{\text{с, пр}}}{cn_{\text{с}}\omega_0 T_2} g_0 l^2 e^{-2\tau/T_2} \int_0^{\infty} J_{\text{пр}}(t') e^{-2t'/T_2} dt' \times \\ \times \int_0^{t_p} e^{2\theta/T_2} d\theta \int_0^l dz I_0^2 \left(\sqrt{\frac{2z}{T_2} g_0 \int_{\theta}^{t_p} J_{\text{н}}(t') dt'} \right), \quad (4)$$

откуда ясно видно, что интегральная интенсивность рассеянного пробного излучения уменьшается экспоненциально с ростом τ . При малых значениях t_p/T_2 , экспериментально снимаемая зависимость $W_c(\tau)$, из (4) нетрудно определить время T_2 .

Как уже указывалось, типичные значения времени T_2 для конденсированных сред таковы: $T_2 = (1-10) \cdot 10^{-12}$ сек. В то же время длительность импульсов генерации лазеров с синхронизованными методами обычно составляет величину $t_p \approx (5-10) \cdot 10^{-12}$ сек, т. е. отношение t_p/T_2 не является малым. Оказывается, однако, что даже такая неблагоприятная ситуация не ограничивает возможностей метода, если только задние фронты импульсов спадают достаточно быстро, как $\exp(-t^2/t_p^2)$.

Исходя из формулы (3), можно показать, что при использовании достаточно длинных импульсов накачки и пробного излучения, $t_p \gg T_2$, форма получающейся кривой $W_c(\tau)$ совпадает с временной формой импульса накачки, т. е. применение «пробной» методики позволяет эффективно исследовать временную структуру самих импульсов накачки.

На рис. 1 приведена экспериментальная кривая зависимости эффективности рассеяния пробного рассеяния от задержки τ , полученная в работе ² при «высвечивании» когерентных оптических колебаний молекул этилового спирта (линия $\bar{\nu} = 2928$ см⁻¹) с помощью пробного луча. Поскольку длительность импульсов лазера, используемого

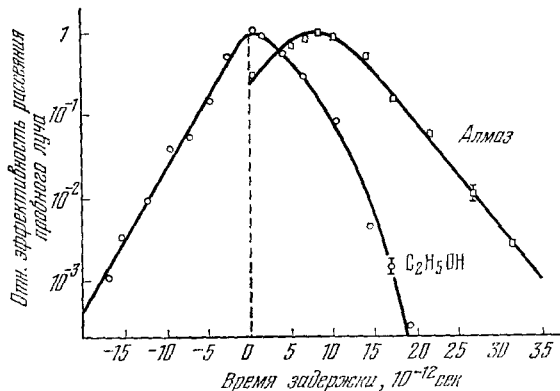


Рис. 1. Зависимость эффективности рассеяния пробного луча $W_c(\tau)/W_c(t_p)$ от задержки пробного импульса по отношению к импульсу накачки для этилового спирта и алмаза (по ²).

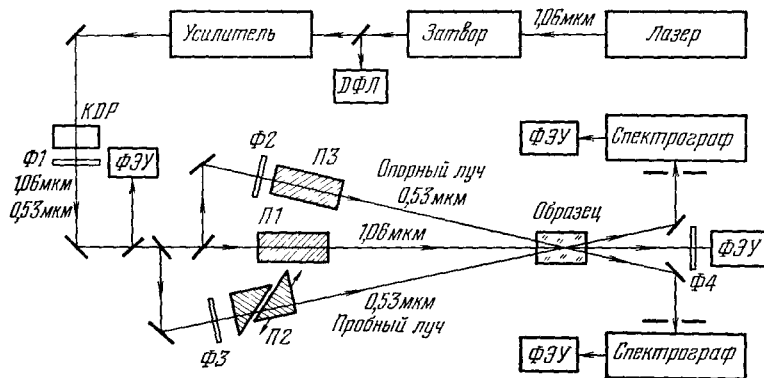


Рис. 2. Схема экспериментальной установки ² (ДФЛ — ячейка для фотографирования треков двухфотонной люминесценции; КДР — кристалл удвоителя частоты лазерного излучения; Ф1-4 — фильтры; П1 и П3 — фиксированные оптические задержки; П2 — переменная оптическая задержка).

в этом эксперименте, была ~ 8 псек, а время $T_2 \approx 0,26$ псек, приведенная кривая соответствует просто временной структуре лазерного импульса. Кстати, из графика отчетливо видно, что задний фронт импульса накачки (положительные задержки τ) спадает очень быстро — по гауссовой экспоненте.

Схема экспериментальной установки, которая использовалась в работах ², приведена на рис. 2. Лазер на стекле, активированном неодимом, работал в режиме

самосинхронизации мод и испускал пучок пикосекундных импульсов со средней длиной волны $1,06 \text{ мкм}$. Стоящий за ним электрооптический затвор выделял из этого пучка единственный импульс. Затем пучок излучения проходил через усилитель и удвоитель частоты, в котором небольшая часть лазерного импульса преобразовывалась в зеленый свет с длиной волны $0,53 \text{ мкм}$, после чего с помощью селективно отражающих зеркал пробное излучение выводилось из пучка и под заданным углом (определяемым условиями фазового синхронизма (1) — (2)) направлялось в исследуемый образец, где импульс накачки возбуждал коллимированный луч оптических фононов. Оптическая задержка пробного импульса осуществлялась с помощью подвижной призмы П2.

Полученные в работах ^{1,2} характерные кривые хорошо иллюстрируют процесс нестационарного возбуждения и затухания ТО-фононов в кальците и алмазе (см. рис. 1), а также в четыреххлористом углероде.

Измеренные времена релаксации имеют следующую величину: в кальците $T_2 = (8,5 \pm 2,0) \cdot 10^{-12} \text{ сек}$ (линия $\bar{\nu} = 1086 \text{ см}^{-1}$, $T = 297^\circ \text{ К}$), в алмазе $T_2 = (2,9 \pm 0,3) \times 10^{-12} \text{ сек}$ (линия $\bar{\nu} = 1332 \text{ см}^{-1}$, $T = 300^\circ \text{ К}$), в $\text{CCl}_4 T_2 = (4,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-12} \text{ сек}$ (линия $\bar{\nu} = 459 \text{ см}^{-1}$, $T = 300^\circ \text{ К}$). Последние две величины хорошо согласуются с данными спонтанного КР, но первая более чем в два раза превышает значение T_2 , полученное из спектральных измерений.

Возможно, что это — первое свидетельство изменения механизма затухания оптических фононов, принадлежащих к сильно возбужденным модам. Действительно, в процессе ВКР в поле мощных сверхкоротких импульсов накачки (с потоком энергии в них порядка 10^{10} вт/см^2) генерируется поток ТО-фононов с плотностью $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$, причем в силу малой расходимости стока и лазерного лучей обычно возбуждается лишь несколько десятков мод фононного спектра (соответствующих малому фазовому объему — порядка 10^{-15} объема зоны Бриллюэна — в пространстве квазимпульсов фононов). Это обстоятельство приводит к тому, что числа заполнения возбужденных мод имеют гигантскую величину $\sim 10^{10}$, по сравнению с типичным равновесным значением 10^{-3} при комнатной температуре и 10^{-11} при температуре жидкого азота. В условиях такого сильного возбуждения нескольких фононных мод, как показывают расчеты ¹¹, может протекать ранее не наблюдавшийся процесс вынужденного параметрического распада оптических фононов с почти нулевыми квазимпульсами на два коротковолновых фонона, принадлежащих акустическим ветвям, с противоположно направленными волновыми векторами. Ожидалось, что этот вынужденный процесс приведет к значительному сокращению эффективного времени жизни оптических фононов.

Однако прямые измерения не обнаружили уменьшения времени жизни «горячих» фононов *) и даже свидетельствуют о существовании механизма, который удлиняет время жизни фононов в сильно возбужденных оптических модах — обстоятельство, нуждающееся в дальнейшем объяснении.

Кстати, вызывает затруднение и интерпретация результатов недавно проведенных прямых измерений времени жизни акустических фононов ⁹, возбуждаемых с помощью ВРМБ в плавленом кварце при гелиевых температурах: прямые измерения, проведенные в условиях высокой плотности когерентных продольных акустических (LA)-фононов, дали величину $T_2 \approx 3,4 \cdot 10^{-7} \text{ сек}$, тогда как косвенное определение (из измерения теплопроводности), относящееся к равновесному распределению фононов, приводит к величине по крайней мере в десять раз меньшей.

Возможно, обнаруженное удлинение времени жизни фононов, принадлежащих к сильно возбужденным модам, связано с явлением, аналогичным известному идуцированному просветлению среды под воздействием интенсивного лазерного излучения.

Заканчивая этот небольшой реферат, хотелось бы отметить, что техническое выполнение описанных опытов по прямому измерению ультракоротких времен жизни фононов в различных средах является трудной экспериментальной задачей, но полученные важные результаты и интересные перспективы применения этого метода служат достойным вознаграждением современным и будущим исследователям.

Н. И. Коротеев

*) Впрочем, высокая плотность фононных состояний акустического спектра в этих кристаллах вблизи точки $\omega_0/2$ может нейтрализовать влияние параметрической генерации акустических фононов на время жизни фононов в возбужденных модах оптической ветви. По-видимому, Джордмейн и Колла ¹² наблюдали этот вынужденный эффект, исследуя крылья бесфононной линии люминесценции примесных центров типа N3 в алмазе.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. R. R. Alfano, S. L. Shapiro, Phys. Rev. Lett. **26**, 1247 (1971).
2. D. von der Linde et al., *ibid.* **26**, 954; **27**, 802 (1971).
3. Дж. Займан, Электроны и фононы, М., ИЛ, 1962, стр. 125.
4. М. М. Сушинский, Спектры комбинационного рассеяния молекул и кристаллов, М., «Наука», 1969, стр. 343.
5. A. K. McQuillan et al., Phys. Rev. **A1**, 628 (1970); K. Park, Phys. Lett. **A25**, 490 (1967).
6. С. А. Ахманов, и др., ЖЭТФ **59**, 485 (1970).
7. С. А. Ахманов и др., Вынужденное комбинационное рассеяние и нестационарное возбуждение колебательных уровней в кристаллах, Аннотации докладов, представленных на V Всесоюзную конференцию по нелинейной оптике (Кишинев, 1970 г.), М., Изд-во МГУ, 1970, стр. 107.
8. F. De Martini, J. Ducuing, Phys. Rev. Lett. **17**, 117 (1966).
9. W. Heinicke et al., *ibid.* **22**, 170 (1969); Light Scattering in Solids (Proc. 2nd Intern. Conference, Paris, July 1971), ed. by M. Balkanski, P., Flammarion Sciences, 1971, p. 430.
10. J. A. Giordmaine, W. Kaiser, Phys. Rev. **144**, 676 (1966).
11. R. Orbach, IEEE Trans. Sonics Ultrason. **SU-14**, 140 (1967).
12. M. J. Colles, J. A. Giordmaine, Phys. Lett. **27**, 670 (1971).