

Резонансное лазерно-плазменное возбуждение когерентных терагерцевых фононов в объеме фторсодержащих кристаллов под действием интенсивного фемтосекундного лазерного излучения

Ф.В.Потёмкин, Е.И.Мареев, П.М.Михеев, Н.Г.Ходаковский

Методом накачки и зондирования пробным импульсом была исследована динамика когерентных фононов во фторсодержащих кристаллах в режиме формирования плазмы. В кристалле фторида лития были обнаружены сразу несколько фононных мод, частоты которых являются обертонами основной частоты 0.38 ТГц. В кристалле фторида кальция обнаружены фононы с частотами 1 и 0.1 ТГц, а в кристалле фторида бария – когерентные фононы с частотами 1 ТГц и 67 ГГц. Кроме того, в последнем случае было обнаружено, что амплитуды колебаний фононных мод существенно увеличиваются через 15 пс после лазерного воздействия.

Ключевые слова: фемтосекундная лазерная микроплазма, генерация третьей гармоники, когерентные фононы.

1. Введение

Круг явлений, происходящих при взаимодействии фемтосекундного острогофокусированного лазерного излучения с диэлектриками, достаточно широк: от многофотонной и туннельной ионизации, нагрева электронов плазмы в поле лазерной волны, ударной ионизации и возбуждения когерентных фононов, до распространения ударных волн и формирования остаточных микромодификаций [1–7]. Особое внимание следует уделить динамике когерентных фононов. Они не только дают представление о колебательных спектрах веществ, но могут быть использованы для управления молекулярными и коллективными движениями, получения особых неравновесных состояний и облегчения химических или структурных изменений, которые могут не реализоваться при обычных условиях [8, 9]. Для описания динамики когерентных фононов обычно используются механизм смещения (ДЕСР), теория функционала плотности, зависящего от времени (time-dependent functional density theory) и механизм внутриимпульсного вынужденного комбинационного рассеяния (ISRS) [10–18].

Методы регистрации когерентных фононов можно разделить на два основных класса. К первому классу относятся методы, основанные на измерении изменения оптических свойств материалов, ко второму – методы измерения с временным разрешением параметров терагерцевого излучения, которое генерируется активными ИК фононами. Чаще всего для наблюдения когерентных фононов используется метод зондирования пробным им-

пульсом с регистрацией прошедшего, отраженного или дифрагировавшего лазерного излучения. При интенсивности возбуждающего лазерного излучения, не превышающей порога ионизации вещества, сигнал пробного импульса будет содержать осцилляции с частотой, соответствующей частоте возбуждаемой фононной моды [14, 15].

В настоящей работе исследование динамики когерентных фононов проводится в экстремальных условиях (интенсивность лазерного излучения $\sim 10^{13}$ Вт/см² превышает порог ионизации конденсированного вещества) воздействия лазерного излучения на мишень, при которых в объеме диэлектрика формируется неравновесная электронная микроплазма. Для этих целей используется разработанный нами ранее нелинейно-оптический метод зондирования структуры объема среды с временным разрешением на основе процесса генерации третьей гармоники в сфокусированных лазерных пучках [19–23]. Генерация когерентных фононов приводит к модуляции во времени кубической по полю нелинейной восприимчивости среды. Поэтому энергия третьей гармоники, которая генерируется из области взаимодействия и регистрируется в эксперименте, также будет модулироваться во времени при возбуждении когерентных фононов в среде. Этот метод успешно зарекомендовал себя при исследованиях динамики лазерной плазмы в кристаллическом и плавленном кварце. Отметим, что сигнал третьей гармоники более чувствителен к изменению структуры вещества (ионизации среды, колебаниям ионов), чем сигнал, прошедший через образец, что было продемонстрировано в работах [19–23]. Для регистрации когерентных фононов в методике зондирования пробным импульсом используется дополнительный канал регистрации энергии третьей гармоники, генерируемой пробным импульсом в области колебаний решетки [23–25].

Предметом настоящей работы является исследование процессов возбуждения и релаксации когерентных фононов в режиме формирования лазерной микроплазмы в объеме кристаллических фторсодержащих диэлектриков LiF, CaF₂, BaF₂. В проводимых экспериментах все кристаллы ориентировались таким образом, чтобы хорошо

Ф.В.Потёмкин, Е.И.Мареев. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: potemkin@physics.msu.ru

Н.Г.Ходаковский. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

Поступила в редакцию 10 января 2013 г., после доработки – 11 марта 2013 г.

известные фоновые колебания, возникающие на комбинационно активной моде с симметрией T_{2g} , не присутствовали в выходном сигнале и сигнале третьей гармоники. Отличительной особенностью рассматриваемых сред по сравнению с кристаллическим кварцем, который был исследован в предыдущих наших работах, является отсутствие «мягких» фоновых мод и низкотемпературных фазовых переходов.

2. Эксперимент

В экспериментах использовалось излучение хром-форстеритовой фемтосекундной лазерной системы ($\lambda = 1.24$ мкм, $\tau = 140$ фс, $E = 0.1-5$ мкДж, контраст по интенсивности ~ 250). Применение излучения ближнего ИК диапазона расширяет возможности метода зондирования пробным импульсом, поскольку третья гармоника излучения попадает в область прозрачности большого числа сред. Схема эксперимента представлена на рис.1. Пластина $\lambda/2$ с призмой Глана 1 использовалась для плавного изменения энергии лазерного излучения от 0.1 до 5 мкДж. Далее излучение заводилось в схему интерферометра Майкельсона и с помощью полупрозрачной пластинки 2 направлялось в равных частях в пробный и возбуждающий каналы. Излучение в пробном канале ослаблялось нейтральным светофильтром 3. Излучение пробного и возбуждающего импульсов с ортогональными поляризациями остро фокусировалось линзой Philips CAU033 в объем кристаллического диэлектрика (LiF, CaF₂, BaF₂) 8. Излучение пробного канала отделялось от основного излучения по поляризации с использованием призмы Глана 1. В эксперименте одновременно измерялись энергии падающего и прошедшего через образец пробного импульсов с помощью германиевых фотоприемников 4, а также энергия третьей гармоники пробного излучения с помощью работающего в токовом режиме ФЭУ 6, перед которым устанавливался полосовой фильтр ($\lambda = 410 \pm 5$ нм) 5. Энергии возбуждающего и пробного импульсов выбирались соответственно выше и ниже порога формирования плазмы в кристаллическом диэлектрике. За счет перемещения образца в плоскости, перпендикулярной направлению распространения лазерного излучения, с помощью моторизованного транслятора с шагом 20 мкм был ре-

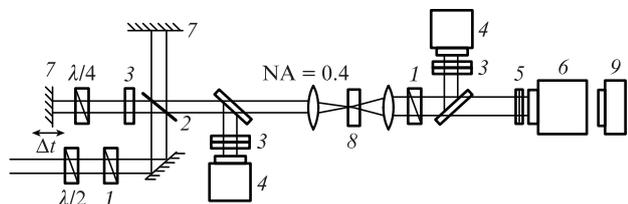


Рис.1. Экспериментальная схема:

1 – призмы Глана; 2 – делитель пучка 50/50; 3 – нейтральные светофильтры; 4 – германиевые фотодетекторы Thorlabs PDA50B-EC; 5 – полосовой фильтр (410 ± 5 нм); 6 – ФЭУ Hamamatsu H5784-04; 7 – серебряные зеркала; 8 – образец для исследования; 9 – ПЗС-камера.

ализован одноимпульсный режим взаимодействия лазерного излучения с веществом мишени. Время задержки между возбуждающим и пробным импульсами изменялось в зондирующем канале интерферометра Майкельсона путем автоматизированного перемещения зеркала с шагом 2.5 мкм (8.3 фс) в диапазоне 0–300 пс.

3. Результаты

Все кристаллы, исследованные в настоящей работе, относятся к группе Fm–3m и имеют тип симметрии O_h . При этом типе симметрии возможны нормальные колебания с симметрией A_{1g} , A_{1u} , A_{2g} , A_{2u} , E_u , E_g , T_u , T_g , T_{2u} и T_{2g} [26]. Генерация когерентных фононов происходит на комбинационно активных модах. Для этих кристаллов таковыми являются моды с симметрией A_{1g} , E_g и T_{2g} . Для A_{1g} -колебаний рамановский тензор полностью симметричен, E_g -колебания вырождены дважды, а T_{2g} -колебания – трижды [26]. Соответствующие тензоры приведены в табл.1.

Для определения порога формирования плазмы во фторсодержащих кристаллах в экспериментах регистрировались энергии основного излучения и третьей гармоники, прошедших через образец, в зависимости от энергии лазерного излучения (рис.2). Для экспериментов с временным разрешением энергии возбуждающего импульса выбиралась выше порога формирования плазмы, а энергия пробного импульса – ниже. Пороги ионизации E_1 и E_2 для кристалла BaF₂, определенные по порогу генерации третьей гармоники лазерного излучения и по порогу поглощения лазерной энергии, составили 1 и 1.1 мкДж соответственно (рис.2,а); для кристалла CaF₂ пороги $E_1 = 0.8$ мкДж и $E_2 = 1.1$ мкДж (рис.2,б), а для кристалла LiF имеем $E_1 = 2.5$ мкДж и $E_2 = 3.5$ мкДж (рис.2,в).

Для исследования процессов энергопереноса из лазерно-индуцированной плазмы, созданной в объеме фторсодержащих кристаллов, в фоновую подсистему были проведены эксперименты при различных энергиях возбуждающего импульса. Регистрировались сигналы пропускания и третьей гармоники пробного импульса в зависимости от задержки последнего относительно возбуждающего импульса (рис.3). Поскольку сигнал третьей гармоники более чувствителен к изменению свойств среды, далее на рис.4–6 зависимость пропускаемого сигнала на длине волны возбуждающего излучения от времени не приведена.

3.1. Кристалл BaF₂

В сигнале третьей гармоники пробного импульса наблюдаются когерентные колебания разных фоновых мод. Спектральный анализ этого сигнала подтверждает наличие в нем двух квазигармонических составляющих с постоянными частотами $\Omega = 1$ ТГц и ~ 67 ГГц (ошибка при оценке по спектру равна 20 ГГц) (рис.4), соответствующими комбинационным сдвигам 33 см⁻¹ [27] и 2.1 см⁻¹ [28], наблюдаемым в кристалле BaF₂. Отсутствие T_{2g} -моды на частоте 241 см⁻¹ [29] связано с ориентацией кристалла,

Табл.1. Тензоры комбинационно активных мод для кристаллов, относящихся к группе Fm–3m (a, b, c, d – константы).

A_{1g}	E_g	E_g	T_{2g}	T_{2g}	T_{2g}
a	b	$3^{1/2}b$	$-$	$-$	$-$
$-$	$-$	$-$	$-$	d	d
$-$	$-$	$-$	d	$-$	$-$
$-$	$-$	$-2b$	$-$	d	$-$

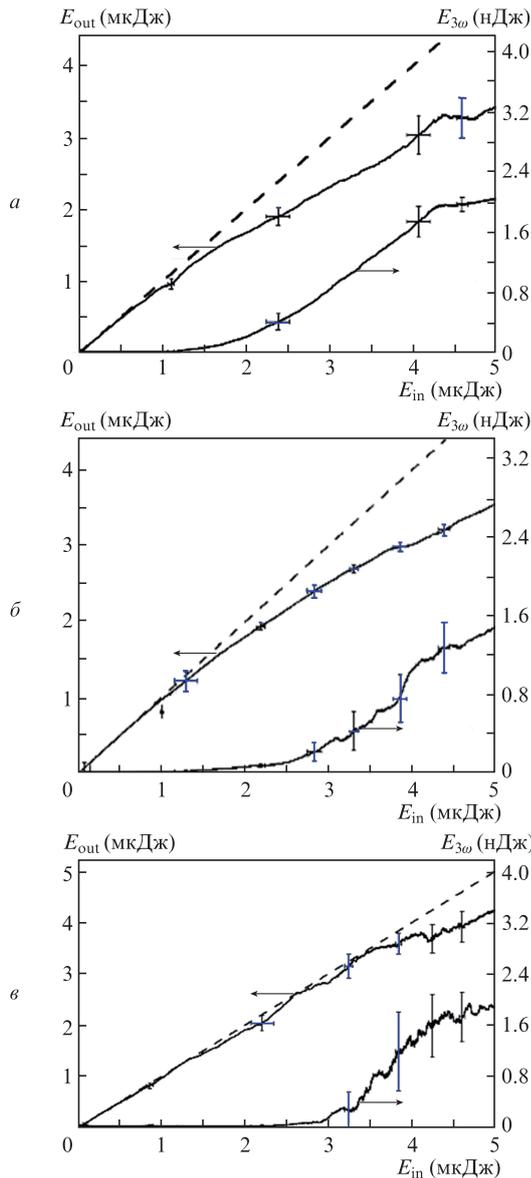


Рис.2. Зависимости энергии прошедшего лазерного импульса E_{out} и энергии его третьей гармоники $E_{3\omega}$ от энергии лазерного излучения E_{in} для кристаллов ВаF₂ (а), СаF₂ (б) и LiF (в). Штриховая линия соответствует отсутствию поглощения.

т. к. действующая сила $F = \sum_{uv} (\partial \chi_{uv} / \partial Q) E_u E_v$ (E_{uv} – компоненты оптической накачки, Q – нормальная координата, χ_{uv} – линейная восприимчивость [15]), а тензор комбинационного рассеяния имеет только две отличные от нуля компоненты. Тогда интеграл

$$\int_{-\infty}^t \frac{F(r, \tau) \sin[\Omega(t - \tau)]}{\Omega} d\tau$$

(r – радиус-вектор, t – время) обращается в нуль и колебания не возникают.

При меньшей энергии возбуждающего импульса (1.4 мкДж) наблюдается только высокочастотная фононная мода с частотой 1 ТГц (зависимости не приведены). Эта компонента связана с A_{1g} -колебаниями, которые происходили на примерно такой же частоте в других кристаллах, относящихся к группе O_h [30]. Также в ходе эксперимента было обнаружено, что в кристалле ВаF₂ существенно увеличивается амплитуда колебаний сигнала третьей

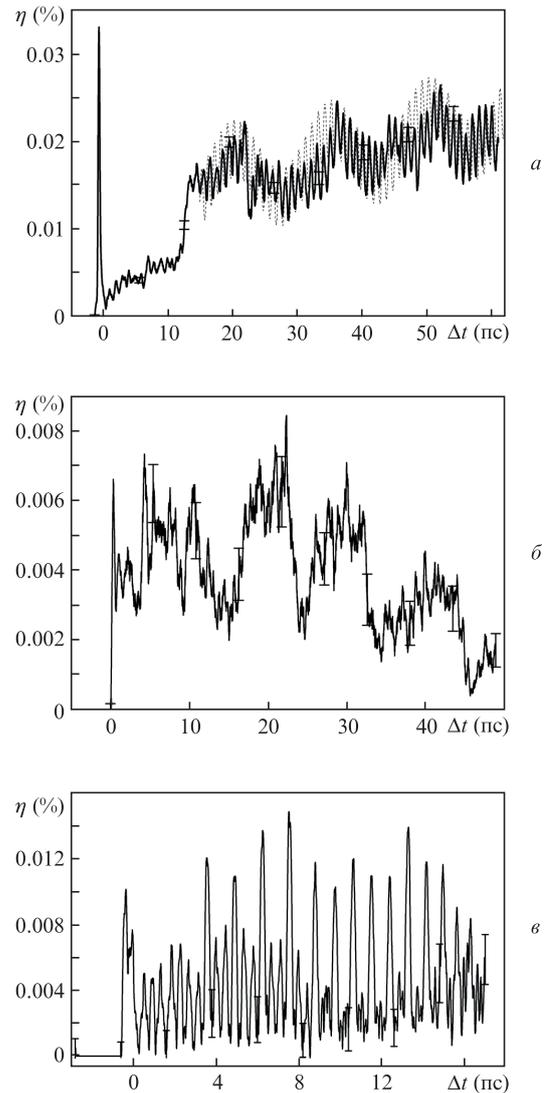


Рис.3. Зависимости эффективности генерации третьей гармоники η пробного импульса в кристаллах ВаF₂ при энергии возбуждающего импульса $E_{in} = 2$ мкДж (а), СаF₂ при $E_{in} = 4$ мкДж (б) и LiF при $E_{in} = 3.6$ мкДж (в) от задержки между пробным и возбуждающим импульсами Δt .

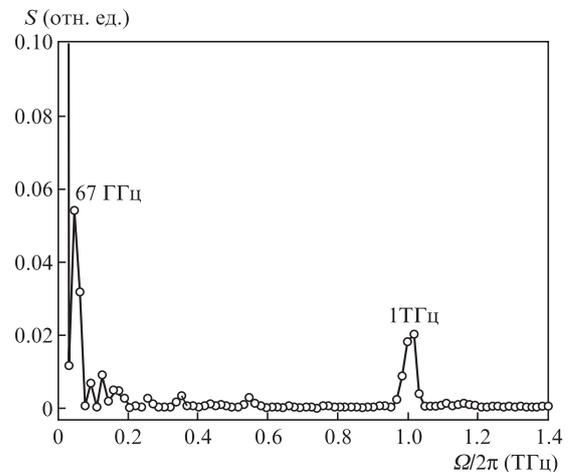


Рис.4. Спектральная плотность мощности S сигнала третьей гармоники для кристалла ВаF₂ при энергии возбуждающего импульса $E_{in} = 2$ мкДж.

гармоники пробного импульса при задержках более 15 пс, т.е. когерентные фононы «раскачиваются» не сразу с приходом возбуждающего лазерного импульса, а с задержкой, связанной с передачей энергии электронов плазмы фононной подсистеме (рис.3,а). Эту задержку можно оценить из теории деформационного потенциала [31]. В рамках этой теории транспортное время релаксации τ_k , характеризующее время передачи энергии электронов плазмы акустическим фононам, оценивается по формуле

$$\frac{1}{\tau_k} = \frac{|\xi|^2 m_e \theta_k}{\pi \rho c_s^2 \hbar^3},$$

где ξ – константа деформационного потенциала; m_e – масса электрона; $\theta_k = k_B T$; T – температура кристаллической решетки; k_B – постоянная Больцмана; ρ – плотность кристалла фторида бария; c_s – скорость звука в среде [31]. Для данной оценки использовались следующие параметры: $|\xi| \approx 10$ эВ, что соответствует по порядку величины энергии электрона во внешней атомной оболочке, $T \approx 300$ К, $\rho \approx 4.8$ г/см³, $c_s \approx 4.29$ км/с. Волновой вектор электронов плазмы k рассчитывался исходя из их кинетической энергии, равной ~ 4 эВ. При данных параметрах транспортное время составило 13 пс, что достаточно хорошо согласуется с наблюдаемой в эксперименте временной задержкой.

3.2. Кристалл CaF₂

Для кристалла CaF₂ наблюдается схожая с кристаллом фторида бария картина. В этом кристалле в сигнале третьей гармоники также присутствуют низкочастотные колебания с частотой 100 ± 20 ГГц (рис.5), соответствующие комбинационному сдвигу 3 см^{-1} , характерному для акустических фононов [28].

На фоне низкочастотных колебаний в сигнале третьей гармоники пробного импульса наблюдаются зашумленные высокочастотные колебания с различными частотами. Фильтрация этого сигнала в полосе частот $0.8\text{--}1.2$ ТГц позволяет выделить слабоинтенсивную спектральную компоненту с частотой ~ 1 ТГц.

3.3. Кристалл LiF

В кристалле LiF во временном сигнале третьей гармоники пробного импульса присутствуют когерентные колебания разных фононных мод. Спектральный анализ

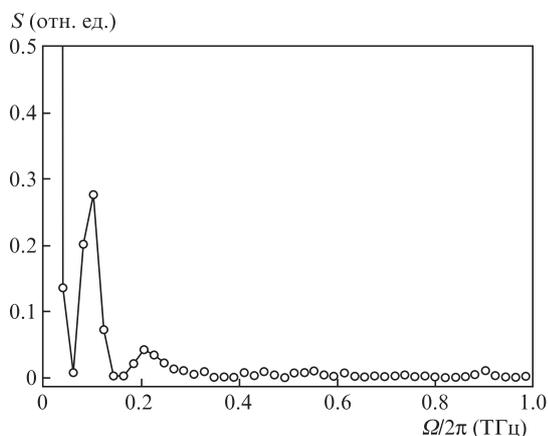


Рис.5. Спектральная плотность мощности S сигнала третьей гармоники пробного импульса в кристалле CaF₂ при энергии возбуждающего импульса $E_{in} = 4$ мкДж.

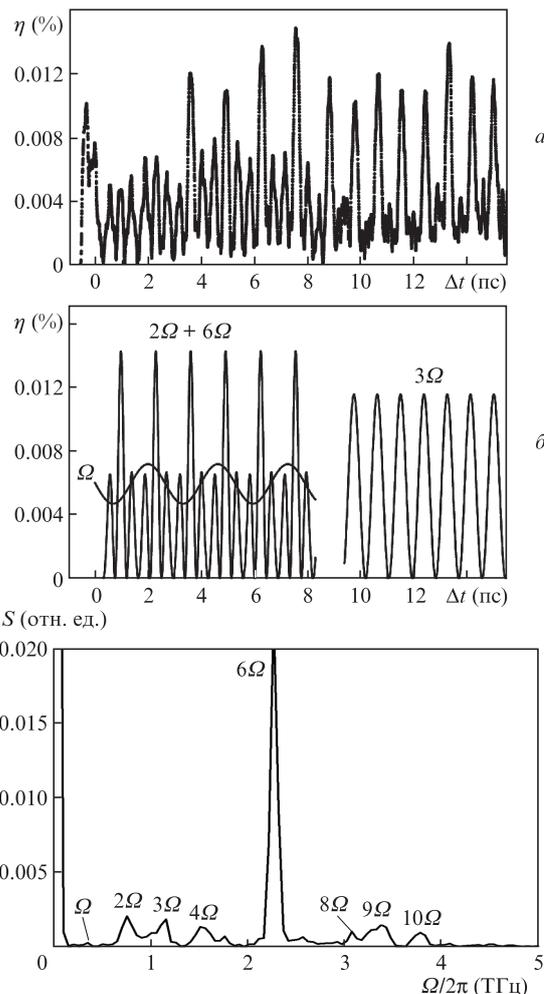


Рис.6. То же, что и на рис.3,в (а), модельный сигнал с указанием частот фононных мод (б) и спектральная плотность S сигнала третьей гармоники пробного импульса (в) в кристалле LiF.

экспериментальных данных показал, что создание микроплазмы в объеме кристалла LiF приводит к возбуждению сразу нескольких фононных волн, частоты которых являются гармониками основной частоты 0.38 ТГц [1, 32] (рис.6). В ходе эксперимента наблюдалась перекачка энергии из одной фононной моды в другую. Обмен энергией и наличие нескольких гармоник основной частоты возможны в режиме ангармонического взаимодействия, которое реализуется при сильном возбуждении, когда колебания ионов становятся ангармоническими [32]. Например, во временном интервале $0\text{--}9$ пс в сигнале третьей гармоники присутствует сразу несколько фононных мод – основная ($\Omega = 0.38$ ТГц) и мода на частоте 2Ω с модуляцией на частоте 6Ω . Однако начиная с временной задержки 9 пс фононные моды с частотами Ω , 2Ω и 6Ω исчезают и проявляется мода с частотой $3\Omega = 1.14$ ТГц. Ангармоническое возбуждение кристаллической решетки LiF происходит в результате большого удельного энерговклада вследствие релаксации лазерно-индуцированной плазмы.

4. Заключение

В настоящей работе исследовались процессы возбуждения и релаксации когерентных фононов для трех образцов фторсодержащих кристаллов. Впервые в регистри-

руемых сигналах третьей гармоники пробного импульса для образцов BaF_2 и CaF_2 наблюдалось значительное увеличение амплитуды фононных волн с временной задержкой относительно момента воздействия. В кристалле LiF был обнаружен обмен энергией между фононными модами, который возможен только в режиме ангармонических колебаний фононных волн. Важно отметить, что существенным отличием наших экспериментов по генерации когерентных фононов от канонических [15, 30] являлись наличие лазерно-индуцированной плазмы и использование режима экстремального воздействия лазерного излучения на мишень. Было показано, что формируемая в микрообъеме кристаллических диэлектриков лазерно-индуцированная плазма оказывает существенное влияние на процессы возбуждения и релаксации когерентных фононов.

1. Gattass R.R., Mazur E. *Nat. Photonics*, **2**, 219 (2008).
2. Ueki H., Kawata Y., Kawata S. *Appl. Opt.*, **35**, 2457 (1996).
3. Audebert P., Daguzan Ph., dos Santos A., Gauthier J.C., Geindre J.P., Guizard S., Hamoniaux G., Krastev K., Martin P., Petite G., Antonetti A. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 1990 (1994).
4. Burenkov I.A., Popov A.M., Tikhonova O.V., Volkova E.A. *Laser Phys. Lett.*, **7**, 409 (2010).
5. Varró S., Gál K., Földes I.B. *Laser Phys. Lett.*, **1**, 111 (2004).
6. Sun Q., Jiang H., Liu Y., Wu Z., Yang H., Gong Q. *Front. Phys. China*, **1**, 67 (2006).
7. Cho S., Kumagai H., Midorikawa K. *Opt. Commun.*, **207**, 243 (2002).
8. Nelson K.A., Weiner A.M., Leaird D.E., Wiederrecht G.P. *Science*, **247**, 1317 (1990).
9. Bunkin A.F., Pershin S.M., Nurmatov A.A. *Laser Phys. Lett.*, **3**, 181 (2006).
10. Bartels R.A., Backus S., Murnane M.M., Kapteyn H.C. *Chem. Phys. Lett.*, **374**, 326 (2003).
11. Hellwarth R.W. *Phys. Rev.*, **130**, 1850 (1963).
12. Carman R.L., Shimizu F., Wang C.S., Bloembergen N. *Phys. Rev. A*, **2**, 60 (1970).
13. Ruhman S., Joly A.G., Nelson K.A. *J. Quantum Electron.*, **24**, 460 (1988).
14. Yan Y., Gamble E.B., Nelson K.A. *J. Chem. Phys.*, **83**, 5391 (1985).
15. Merlin R. *Solid State Commun.*, **102**, 207 (1997).
16. Zeiger H., Cheng T., Ippen E., Vidal J., Dresselhaus G., Dresselhaus M. *Phys. Rev. B*, **54**, 105 (1996).
17. Stevens T.E., Kuhl J., Merlin R. *Phys. Rev. B*, **65**, 3 (2002).
18. Riffe D.M., Sabbah A.J. *Phys. Rev. B*, **76**, 085207 (2007).
19. Гордиенко В.М., Михеев П.М., Потемкин Ф.В. *Письма в ЖЭТФ*, **92**, 553 (2010).
20. Михеев П.М., Потемкин Ф.В. *Вестник Моск. ун-та. Сер. Физика. Астрономия*, **1**, 19 (2011).
21. Гордиенко В.М., Потемкин Ф.В., Михеев П.М. *Письма в ЖЭТФ*, **90**, 286 (2009).
22. Gordienko V.M., Khodakovskij N.G., Mikheev P.M., Potemkin F.V. *J. Russ. Laser Res.*, **30**, 599 (2009).
23. Potemkin F.V., Mikheev P.M. *Eur. Phys. J. D*, **66**, 248 (2012).
24. Cheng T.K., Acioli L.H., Vidal J., Zeiger H.J., Dresselhaus G., Dresselhaus M.S., Ippen E.P. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 1901 (1993).
25. Konorov S.O. et al. *Laser Phys. Lett.*, **1**, 37 (2004).
26. Herzberg G. *Molecular Spectra and Molecular Structure* (New Jersey–New York–Toronto–London, Van Nostrand Reinhold Comp., 1963).
27. Kadlec F., Simon P., Raimboux N. *J. Phys. Chem. Solids*, **60**, 861 (1999).
28. Taylor P., Loudon R. *Adv. Phys.*, **13**, 424 (2006).
29. Tu J., Sievers A. *Phys. Rev. B*, **66**, 1 (2002).
30. Garrett G.A., Albrecht T.F., Whitaker J.F., Merlin R. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 3661 (1970).
31. Harrison W. *Solid State Theory* (New York–London–Toronto: McGraw-Hill Book Comp., 1970, pp 365–421).
32. Dove M. *Introduction to Lattice Dynamics* (Cambridge–New York–Melbourn: Cambridge University Press, 1993, pp 101–132).