

## Генерация когерентных терагерцовых фононов при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объем кристаллических диэлектриков в режиме формирования плазмы

В. М. Гордиенко, П. М. Михеев, Ф. В. Потемкин<sup>1)</sup>

Физический факультет и Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 12 августа 2010 г.

После переработки 20 сентября 2010 г.

Обнаружена генерация когерентных ТГц фононов в режиме формирования плазмы фемтосекундным лазерным излучением с интенсивностью  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> в объеме кристаллического кварца. Для регистрации использовалась методика зондирования пробным импульсом третьей гармоники. Зарегистрировано плавное увеличение частоты когерентных ТГц фононов с 2.2 до 5.5 ТГц с последующим резким ее уменьшением до 2.2 ТГц вследствие  $\alpha$ - $\beta$  фазового перехода кристаллического кварца. В кристалле ВаF<sub>2</sub> обнаружена генерация 1 ТГц когерентных фононов. В лейкосапфире зарегистрировано плавное изменение частоты когерентных фононов от 2 до 2.5 ТГц. В кристаллах СаF<sub>2</sub> и LiF генерация когерентных фононов при локальном лазерном возбуждении развивается на частотах 2.3 и 0.1 ТГц, соответственно.

При острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения микроджоулевого уровня энергии в объеме конденсированной среды ( $NA > 0.4$ ) интенсивность внутри мишени достигает  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>, что приводит к возникновению экстремального состояния вещества. На временном масштабе длительности импульса наиболее изученными являются следующие процессы, происходящие при взаимодействии лазерного излучения с веществом: многофотонная и туннельная ионизации, нагрев электронов плазмы в поле лазерной волны и ударная ионизация [1, 2]. Последняя стадия взаимодействия лазерного излучения с веществом (распространение ударных волн, формирование и параметры остаточных микромодификаций) на настоящий момент достаточно полно изучена и отражена в обзоре [3]. В то же время процессы, происходящие на временном масштабе до сотни пикосекунд (релаксации электронной плотности и процессы переноса энергии из электронной подсистемы в ионный остов, возбуждение и релаксация когерентных колебаний кристаллической решетки) исследованы недостаточно [4]. На масштабе нескольких пикосекунд энергия эффективно передается от электронов плазмы кристаллической решетке. Это может приводить к фазовым переходам, а также к генерации когерентных фононов в конденсированных средах [5, 6]. Релаксация когерентных фононов может происходить на масштабе времени до сотен пикосекунд. Когерентные колебания решетки, индуцированные интенсивными ультракороткими импуль-

сами, ранее наблюдались в диэлектриках, полупроводниках и металлах [7]. Механизм генерации когерентных фононов обычно описывается в терминах внутриимпульсного вынужденного комбинационного рассеяния света (наиболее употребляемая терминология в англоязычной литературе “Impulsive Stimulated Raman Scattering (ISRS)”) [7–9]. В рамках теории [7] одиночный ультракороткий лазерный импульс, ширина спектра которого превышает или порядка частоты межмолекулярных колебаний, может вызывать пространственно устойчивое коллективное когерентное колебание кристаллической решетки вещества на комбинационно активной колебательной моде. При этом когерентные фононы в кристаллах регистрировались при умеренной интенсивности возбуждающего лазерного импульса, существенно ниже порога формирования плазмы в среде. Частота когерентных ТГц фононов обычно имеет постоянное значение, но в некоторых случаях регистрируется частотный сдвиг. Например, изменение частоты когерентных фононов от 6.5 до 7 ТГц и от 3.6 до 3 ТГц было зафиксировано в образцах Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и Те, соответственно [5, 7, 9]. В этих экспериментах доля энергии лазерного излучения, поглощенная средой, составляет менее 1%. В случае большего энерговклада в вещество (например, при формировании плазмы) частотные сдвиги могут быть выражены сильнее. Природа регистрируемых частотных сдвигов до конца непонятна. Возможное объяснение их наличия связывается с двумя факторами: апериодический режим колебаний и изменение “температуры” кристаллической решетки при сильном возмущении среды [7].

<sup>1)</sup> e-mail: potemkin@automationlabs.ru

Генерация когерентных фононов приводит к модуляции во времени кубической по полю нелинейной восприимчивости среды  $\chi^{(3)}(t) = \chi_0^{(3)} + (\partial\chi^{(3)}/\partial Q) \times Q(t)$ , где  $(\partial\chi^{(3)}/\partial Q)$  – комбинационная нелинейность,  $Q(t)$  – колебание кристаллической решетки [7]. Поэтому эффективность любого нелинейно-оптического процесса, работающего на нелинейности третьего порядка, например, процесса генерации третьей гармоники (ГТГ), также должна модулироваться со временем при возбуждении когерентных фононов в среде.

Поэтому для изучения процесса генерации и релаксации когерентных фононов в режиме формирования лазерно-индуцированной плазмы предлагается использовать нелинейно-оптический метод зондирования структуры объема среды с временным разрешением на базе процесса генерации третьей гармоники, который успешно использовался в исследованиях динамики лазерной плазмы в плавном кварце [10]. Суть метода заключается в следующем. Стандартная методика регистрации коллективных колебаний кристаллической решетки методом зондирования пробным импульсом с измерением поглощения его энергии [5, 7] дополняется каналом регистрации энергии третьей гармоники, генерируемой пробным импульсом в области колебаний решетки. Сигнал третьей гармоники более чувствителен к изменению структуры вещества (ионизации среды, колебаниям ионов), что было продемонстрировано нами ранее в работе [11].

В настоящей работе наблюдается генерация когерентных фононов с частотами от 0.1 до 5.5 ТГц, возбужденных в кристаллических диэлектриках  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{LiF}$ ,  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$  и лейкосапфире в режиме формирования лазерной плазмы.

**Экспериментальная схема.** В экспериментах использовалось излучение Cr:Forsterite фемтосекундной лазерной системы ( $\lambda = 1.24 \mu\text{м}$ ,  $\tau = 140 \text{ фс}$ ,  $E = 0.1\text{--}5 \text{ мкДж}$ , контраст по интенсивности  $\sim 250$ ). Отметим, что использование излучения Cr:Forsterite фемтосекундной лазерной системы ближнего ИК диапазона расширяет возможности метода, поскольку его третья гармоника попадает в область прозрачности большого класса сред. Экспериментальная схема представлена на рис.1.

В схеме интерферометра Майкельсона возбуждающий и пробный импульсы с ортогональными поляризациями остро фокусировались в объем кристаллического диэлектрика ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{LiF}$ ,  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$  или лейкосапфира) с помощью линзы Philips CAУ033 ( $\text{NA} \sim 0.4$ , измеренные значения диаметра и длины перетяжки для кристаллического кварца соответ-

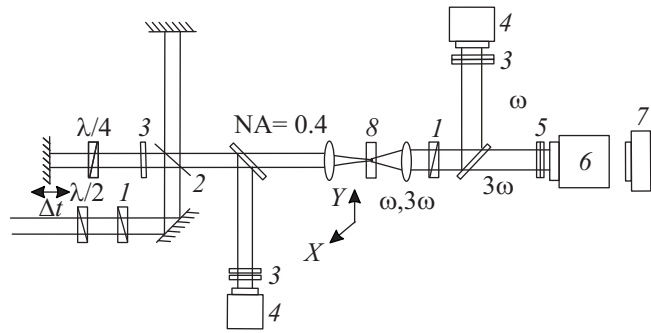


Рис.1. Экспериментальная схема: 1 – призмы Глана, 2 – делитель пучка 50/50, 3 – нейтральные светофильтры, 4 – Thorlabs PDA50B-EC германиевые фотодетекторы, 5 – полосовой фильтр  $410 \pm 5 \text{ нм}$ , 6 – Hamamatsu H5784-04 ФЭУ, 7 – ПЗС камера, 8 – образец

ствуют 2 и  $60 \mu\text{м}$ ). В эксперименте регистрировались энергии возбуждающего импульса, пробного импульса, прошедшего через образец, и сигнала третьей гармоники, генерируемой пробным импульсом в области зондирования. Энергии возбуждающего и пробного импульсов выбирались соответственно выше и ниже порога формирования плазмы в кристаллическом диэлектрике. Излучение пробного импульса и его третьей гармоники выделялось с использованием призмы Глана. Энергия третьей гармоники пробного импульса, выделяемая полосовым фильтром ( $\lambda = 410 \pm 5 \text{ нм}$ ), измерялась с помощью ФЭУ. Лазерное излучение распространялось вдоль оси Z образца. За счет перемещения образца с помощью моторизованного транслятора с шагом  $20 \mu\text{м}$  в плоскости перпендикулярной направлению распространения лазерного излучения, был реализован одноимпульсный режим взаимодействия лазерного излучения с веществом мишени. Время задержки между возбуждающим и пробным импульсами изменялось в зондирующем канале интерферометра Майкельсона с помощью автоматизированного перемещения зеркала с шагом  $2.5 \mu\text{м}$  ( $7.5 \text{ фс}$ ). Более детальное описание экспериментальной схемы дано в работе [10].

**Результаты.** Для определения порога формирования плазмы в кристаллическом кварце, а также энергий возбуждающего и пробного импульсов измерялась энергия третьей гармоники в зависимости от энергии лазерного излучения (рис.2).

Был определен порог формирования плазмы, при измерении энергии третьей гармоники он составил  $E_1 = 2.5 \text{ мкДж}$ , а при измерении нелинейного пропускания –  $E_2 = 3.5 \text{ мкДж}$ . Для дальнейших экспериментов энергия возбуждающего импульса выбиралась  $3.2 \text{ мкДж}$ . Энергия пробного импульса в этом случае составляла  $1 \text{ мкДж}$ , что ниже порога формирования плазмы.

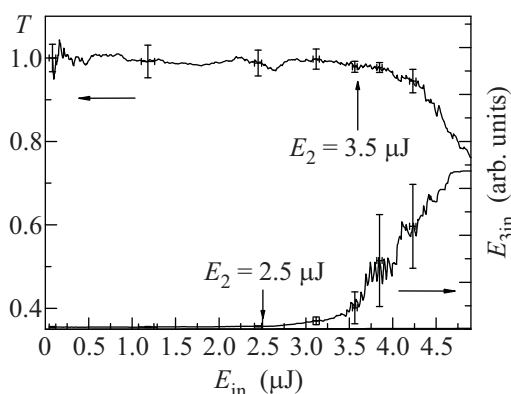


Рис.2. Зависимость проходящей энергии  $E_{out}$  и энергии третьей гармоники  $E_{3\omega}$  от энергии лазерного излучения в образце кристаллического кварца

Временные зависимости эффективности ГТГ и пропускания пробного импульса представлены на рис.3.

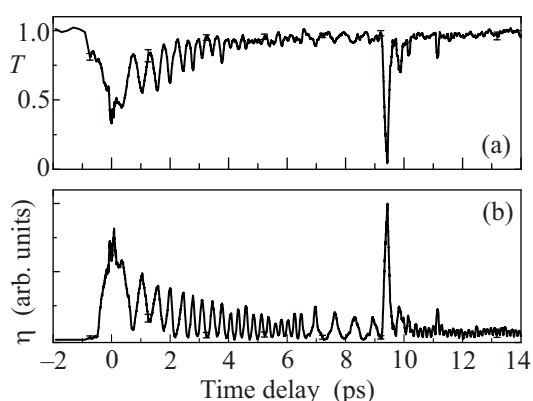


Рис.3. Временные зависимости: (а) эффективности третьей гармоники  $\eta = E_{3\omega}/E_{out}$  и (б) пропускания  $T = E_{out}/E_{in}$  в образце кристаллического кварца при энергии возбуждающего импульса 3.2 мкДж. Количество экспериментальных точек в каждой кривой составляет 50000

В сигналах третьей гармоники и пропускания присутствуют сильные осцилляции на пикосекундном масштабе времен. В течение 1 пс после взаимодействия лазерного излучения с веществом электронная плотность, индуцированная возбуждающим импульсом, полностью релаксирует [10]. Модуляция нелинейной восприимчивости среды за счет генерации когерентных ТГц фононов и изменения показателя преломления из-за наведенного эффекта Керра [7] ведет к наблюдаемым осцилляциям в сигналах. Форма сигнала пропускания подобна наблюдаемым в работах [5, 7, 12], где осцилляции объяснялись механизмом генерации когерентных фононов. Отметим,

что сигнал пропускания не отображает чистого поглощения пробного импульса ввиду наличия его рассеяния на фононах. Каждый минимум в сигнале пропускания пробного импульса абсолютно соответствует максимуму эффективности ГТГ, поскольку увеличение показателя преломления соответствует росту асимметрии и, как следствие, эффективности процесса ГТГ [10]. Стоит отметить, что процесс генерации третьей гармоники является более чувствительным и контрастным методом регистрации когерентных фононов (рис.3).

С помощью частотно-временного анализа были получены зависимости частоты фононов от временной задержки между возбуждающим и пробным импульсами (рис.4).

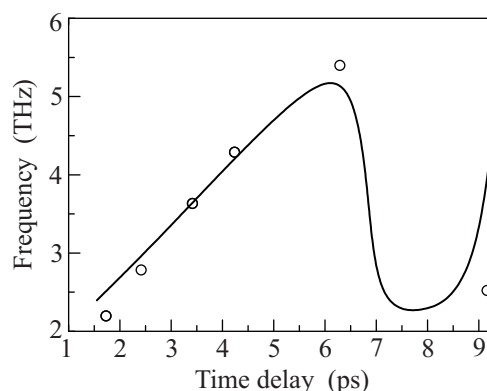


Рис.4. Частотно-временной анализ сигналов эффективности ГТГ  $\eta = E_{3\omega}/E_{\omega}$  (линия) и пропускания  $T = E_{out}/E_{in}$  (светлые точки) в кристаллическом кварце

Амплитуда сигнала третьей гармоники уменьшается одновременно с увеличением частоты от 2.2 до 5.5 ТГц на временах задержек вплоть до 6.5 пс (больше, чем наблюдались ранее [5, 12]). Экспериментальные результаты позволяют предположить, что в кристаллическом кварце в режиме сильного возбуждения дисперсия фононов играет важную роль. Наблюдаемое увеличение частоты когерентных фононов может быть связано с движением фононов по дисперсионной кривой [13] за счет постепенного остывания (уменьшения “температуры”) кристаллической решетки [14], а также, в какой-то мере, по причине аperiodического характера коллективных колебаний решетки в режиме сильного возбуждения. На временах задержек больше 6.5 пс наблюдается уменьшение частоты до 2.2 ТГц. Скачкообразное поведение частоты когерентных ТГц фононов может быть объяснено переходом фонона на другую дисперсионную кривую благодаря  $\alpha$ - $\beta$  фазовому переходу в образце кристаллического кварца [15]. По сравнению

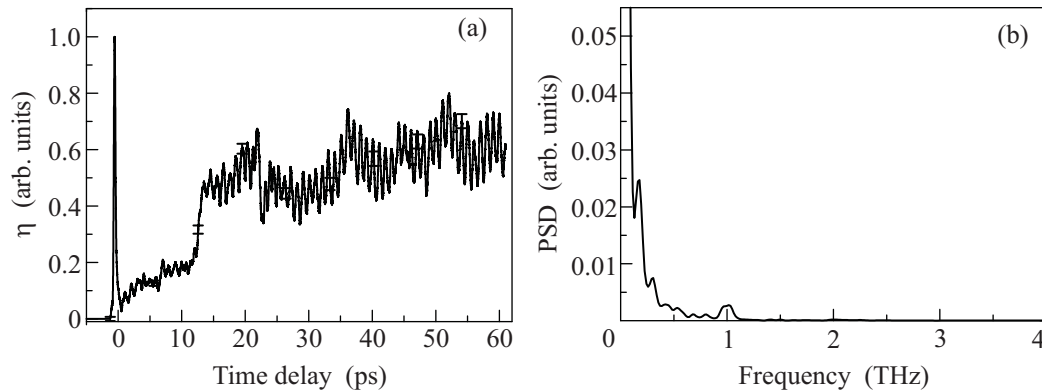


Рис.5. (а) Временная зависимость третьей гармоники пробного импульса в кристалле ВаF<sub>2</sub> при энергии возбуждающего импульса 2 мкДж и (б) спектральная плотность мощности этого сигнала

с  $\alpha$ -кварцем (SiO<sub>2</sub>), в  $\beta$ -кварце симметрия решетки включает в себя ячейку Si<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, то есть колеблющаяся масса в случае  $\beta$ -конфигурации в 2 раза больше, чем в  $\alpha$ -кварце. Поэтому, изменение частоты когерентных фононов с 5.5 до 2.2 ТГц, то есть более чем в 2 раза, связано именно с другой симметрией кристаллической решетки.

Оценим величину поглощенной энергии ионами в области формирования плазмы. Для энергии возбуждающего импульса 3.2 мкДж поглощенная энергия составила  $W = 0.1$  мкДж (рис.2). В приближении полной передачи поглощенной энергии от электронов к ионам средняя температура ионов может быть оценена как  $T \sim W/(N \times V) \sim 1000$  К, где  $V = 120$  мкм<sup>3</sup> ( $2 \times 2 \times 30$  мкм) – область формирования плазмы,  $N = 5 \cdot 10^{22}$  см<sup>-3</sup> – концентрация ионов. Резкое изменение частоты когерентных фононов может быть объяснено возможным фазовым переходом  $\alpha$ -кварца в  $\beta$ -кварц при температуре 846 К за счет постепенной передачи энергии от электронов плазмы в фононную подсистему, а также вследствие того факта, что температура перехода может уменьшаться из-за увеличения неоднородности структуры образца [14]. Ранее подобный фазовый переход регистрировался в образце Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [5].

Для временной задержки 9 пс наблюдается пикообразное поведение временных сигналов пропускания и эффективности ГТГ пробного импульса. На временах задержек более 9 пс осцилляции в обоих сигналах пропадают (рис.3). Уменьшение энергии возбуждающего импульса до энергии, соответствующей порогу формирования плазмы, приводит к тому, что пик на временах задержек  $\sim 9$  пс не проявляется, несмотря на сохраняющиеся слабые осцилляции в сигналах. Из этого следует, что это пороговый эффект, и он может быть связан с локальным разрывом связей в решетке кристаллического кварца. Отметим, что конечной

стадией взаимодействия фемтосекундного лазерного излучения с образцом кристаллического кварца является формирование микромодификации [10], что может служить дополнительным основанием к возможному разрыву связей по причине локального плавления кристаллической решетки.

Следующие эксперименты проводились для образца ВаF<sub>2</sub>. Порог формирования плазмы в кристалле ВаF<sub>2</sub> составил 1 мкДж. Экспериментальная зависимость третьей гармоники пробного импульса от временной задержки при двукратном превышении энергии возбуждающего импульса над порогом (2 мкДж) представлена на рис.5.

Частотно-временной анализ выявил наличие осциллирующего характера сигнала третьей гармоники с характерным временем 1 пс (рис.5). Вплоть до временной задержки 15 пс эффективность ГТГ растет незначительно с увеличением задержки без каких-либо колебаний в сигнале, что может быть объяснено передачей энергии от электронной на фононную подсистему, то есть увеличением асимметрии. Колебательный характер возникает на временной задержке 15 пс. Таким образом, характерное время передачи энергии от электронной на фононную подсистему составило 15 пс. В результате раскачка ионов в своих узлах ведет к генерации 1 ТГц когерентных фононов, но по сравнению с образцом кристаллического кварца характерный период осцилляций сохраняет свое значение, что согласуется с результатами других научных групп [7]. Кроме того, во временном сигнале третьей гармоники пробного импульса наблюдается более низкочастотная составляющая (рис.5b), для определения природы которой требуется более детальный анализ.

В следующих экспериментах исследовались процессы передачи энергии в образцах лейкосапфира, CaF<sub>2</sub> и LiF.

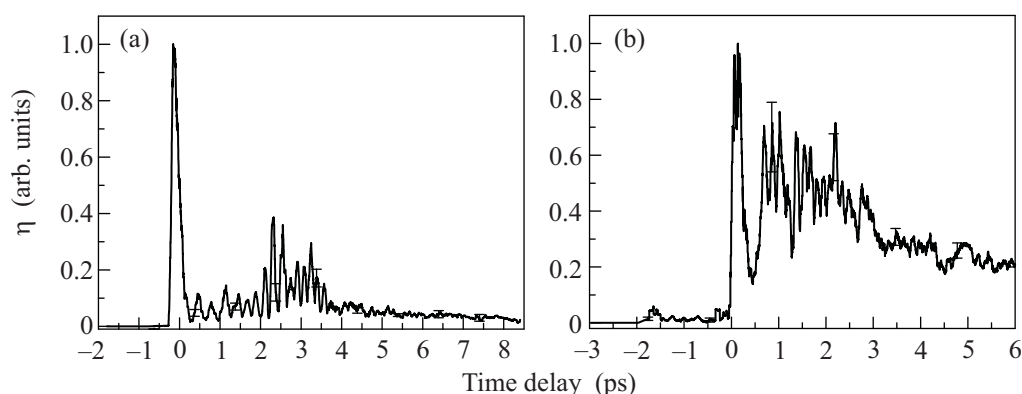


Рис.6. Временные зависимости эффективности третьей гармоники  $\eta = E_{3\omega}/E_{out}$  в образце лейкосапфира при энергиях возбуждающего импульса (а) 1.4 мкДж и (б) 2 мкДж

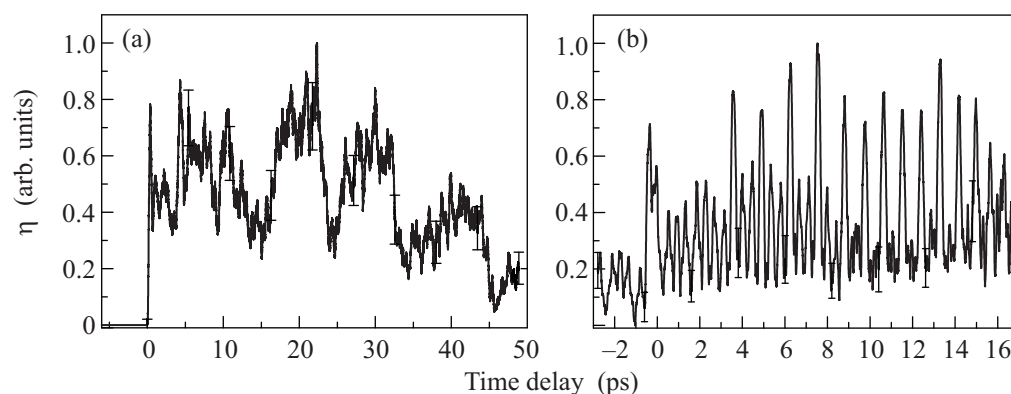


Рис.7. Временные зависимости эффективности третьей гармоники  $\eta = E_{3\omega}/E_{out}$  в (а) кристалле  $\text{CaF}_2$  при энергии 4 мкДж и (б) в кристалле  $\text{LiF}$  при энергии 3.6 мкДж

Порог формирования плазмы в образце лейкосапфира по энергии составил 1 мкДж. В кристалле лейкосапфира можно наблюдать те же осцилляции во временном сигнале третьей гармоники пробного импульса, что и в образцах кристаллического кварца и  $\text{BaF}_2$ . В зависимостях (рис.6) мы можем выделить две наиболее значимые области: последовательное увеличение сигнала ГТГ до времен задержек 2 пс и спад с характерным временем  $\sim 2$  пс. На возрастающем фронте осцилляции выделить не представляется возможным, то есть эта область связана с последовательной передачей энергии от электронной в фононную подсистему. После того как энергия эффективно передается в фононную подсистему, начинается процесс раскачки ионов в узлах кристаллической решетки, что приводит к генерации когерентных фононов, а во временном сигнале третьей гармоники пробного импульса – к появлению гармонической составляющей. Частотно-временной анализ позволил различить при меньшей энергии возбуждающего импульса в сигнале третьей гармоники пробного импульса

наличие плавного изменения частоты от 2 до 2.5 ТГц. При большей энергии (рис.6b) процесс раскачки колебаний ионов в своих узлах виден хуже, но, тем не менее, собственная частота колебаний фононов сохраняется,  $\sim 2$  ТГц. Также принципиальным является то, что максимум во временном сигнале третьей гармоники пробного импульса достигается при различных временах задержек в случае различных энергий возбуждающего импульса (рис.6). Это можно объяснить тем, что передача энергии от электронной в фононную подсистему является более эффективной в случае большей энергии (2 мкДж), вкладываемой в микрообъем.

Эксперименты по  $\text{CaF}_2$  и  $\text{LiF}$  дают следующие результаты (рис.7).

Пороги формирования плазмы в кристаллах  $\text{CaF}_2$  и  $\text{LiF}$  соответственно равны 0.8 и 2.5 мкДж. Временные сигналы третьей гармоники пробного импульса в образцах  $\text{CaF}_2$  и  $\text{LiF}$ , как и в случаях других кристаллических сред, содержат колебания. В кристалле  $\text{LiF}$  зарегистрированы колебания когерентных фононов с

частотой 2.3 ТГц. В кристалле  $\text{CaF}_2$  зарегистрированные колебания являются более низкочастотными (0.1 ТГц). В измеренных временных сигналах пропускания пробного излучения в образцах  $\text{LiF}$  и  $\text{CaF}_2$  регистрировался постепенный спад, что может служить дополнительным аргументом к наличию рассеяния при раскачке ионов в узлах кристаллической решетки.

Таким образом, в работе продемонстрирована возможность генерации когерентных ТГц фононов на пикосекундном масштабе времен в режиме формирования плазмы, созданной фемтосекундными лазерными импульсами с интенсивностью до  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>. По нашему мнению, процесс генерации когерентных фононов за счет передачи энергии от лазерно-индуцированной плазмы в ионный остов должен носить общий характер в кристаллах. Предварительные результаты в кристалле  $\text{BaF}_2$  продемонстрировали генерацию когерентных фононов с постоянной частотой 1 ТГц. Время передачи энергии от электронной подсистемы в ионный остов в кристалле  $\text{BaF}_2$  составило 15 пс. В лейкосапфире зарегистрировано плавное изменение частоты от 2 до 2.5 ТГц. В кристаллах  $\text{CaF}_2$  и  $\text{LiF}$  генерация когерентных фононов при локальном лазерном возбуждении развивается на частотах 2.3 и 0.1 ТГц, соответственно.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований #08-02-00673.

1. P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1990 (1994).
2. Q. Sun, H. Jiang, Y. Liu et al., *Front. Phys. Chin.* **1**, 67 (2006).
3. R. R. Gattass and E. Mazur, *Nature Photon.* **2**, 219 (2008).
4. Sung Hak Cho, Hiroshi Kumagai, and Katsumi Midorikawa, *Proc. SPIE* **4830**, 557 (2003).
5. T. K. Cheng, L. H. Acioli, J. Vidal et al., *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1901 (1993).
6. David W. Ward, Jaime D. Beers, T. Feurer et al., *Optics Lett.* **29**, 2671 (2004).
7. R. Merlin, *Solid State Comm.* **102**, 207 (1997).
8. K. von Volkman, T. Kampfrath, M. Krenz et al., *Springer Series in Chemical Physics* **92**, 235 (2009).
9. Marc M. Wefers, Hitoshi Kawashima, and Keith A. Nelson, *J. Chem. Phys.* **108**, 10248 (1998).
10. V. M. Gordienko, F. V. Potemkin, and P. M. Mikheev, *JETP Letters* **90**, 263 (2009).
11. V. M. Gordienko, N. G. Khodakovskij, P. M. Mikheev, and F. V. Potemkin, *Journal of Laser Physics Research* **30**, 599 (2009).
12. S. Hunsche, K. Wienecke, T. Dekorsky, and H. Kurz, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1815 (1995).
13. B. Dornert, H. Grimmer, and H. Rzanyg, *J. Phys. C: Solid St. Phys.* **13**, 6607 (1980).
14. S. M. Shapiro, D. C. O'Shea, and H. Z. Cummins, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 361 (1967).
15. Peter J. Heaney, David R. Veblen, *American Mineralogist* **76**, 1018 (1991).