

КОНТРОЛЬ ДЕФАЗИРОВКИ КОГЕРЕНТНЫХ ФОНОНОВ, ВОЗБУЖДАЕМЫХ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ, В НЕПРОЗРАЧНЫХ КРИСТАЛЛАХ

O. B. Mисочко*

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 21 августа 2018 г.,
после переработки 5 февраля 2019 г.
Принята к публикации 5 февраля 2019 г.

Методом невырожденного возбуждения и зондирования фемтосекундными лазерными импульсами исследована дефазировка когерентных фононов в полуметаллах и полупроводниках. На основе изучения зависимостей времени жизни когерентных фононов различной симметрии от длительности возбуждающего импульса, температуры кристалла и величины когерентной амплитуды, определяемых как методом когерентного контроля, так и длительностью импульса возбуждения, показано, что дефазировка когерентных фононов в линейном режиме контролируется состоянием окружения (резервуара), под которым понимается совокупность решеточных и электронных состояний, не вовлеченных в когерентное движение.

DOI: 10.1134/S0044451019060026

1. ВВЕДЕНИЕ

Известно, что лазерные импульсы позволяют управлять движением атомов в твердых телах [1–4]. Это стало возможным благодаря достижениям лазерной технологии, позволившим создавать импульсы, длительность которых меньше, чем характерное время (период) вращательных или колебательных движений в твердых телах. Использование таких сверхкоротких импульсов позволило визуализировать движение атомов и наблюдать в реальном времени колебания кристаллической решетки (фононы). Возможность инициировать и контролировать движение атомов кристалла перспективна как для фундаментальных исследований, так и для ряда приложений, связанных с созданием всевозможных наноустройств [4]. Актуальность таких исследований обусловлена тем, что когерентные, сжатые и запутанные состояния фононов [5], безусловно, будут использоваться как при изучении конденсированного состояния, так и при создании твердотель-

ных квантовых приборов, включая элементы квантовых компьютеров, и инженерии квантовых состояний.

После взаимодействия со сверхкоротким лазерным импульсом система комбинационно-активных фононов кристалла оказывается в суперпозиционном состоянии, свойства которого зависят от фазовых соотношений решеточных мод, образующих фононный ансамбль [1–5]. Созданный сверхкоротким импульсом волновой пакет — когерентная суперпозиция возбужденных решеточных состояний, т. е. линейная комбинация их волновых функций с весовыми множителями, равными амплитудам вероятностей возбуждения соответствующих состояний, существует до тех пор, пока сохраняются фазовые соотношения между компонентами пакета. Устойчивая фаза, возникающая при длительности τ_p импульса накачки меньшей обратной частоты фонара Ω^{-1} , $\tau_p \leq \Omega^{-1}$, открывает возможности когерентного контроля как решеточных смещений [6–8], так и неопределенности положения атомов в кристалле. Последнее к настоящему времени было реализовано для целого ряда прозрачных [9, 10] и непрозрачных [5, 11, 12] материалов. Действительно, когерентные фононы (КФ) — в некотором смысле колеба-

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

тельные аналоги лазеров, — и их способность интерферировать позволяет контролировать средние расстояния между атомами кристаллической решетки. Более того, сжатие фононов [5, 9–12] позволяет манипулировать тепловыми и квантовыми флуктуациями решеточной подсистемы, обеспечивая, в частности, перспективу для экспериментов, направленных на преодоление стандартного квантового предела, определяемого нулевыми колебаниями [5]. Исследование согласованных колебаний атомов, обладающих высокой степенью пространственной и временной когерентности, является информативным методом изучения свойств кристаллической решетки. Оно позволяет изучать оптические свойства конденсированных сред на различных стадиях колебательного движения, что существенно расширяет возможности спектроскопии возбуждений кристаллической решетки, позволяя анализировать дефазировку колебаний, передачу энергии, взаимодействие колебательных мод и другие процессы, рассмотрение которых в рамках стационарной спектроскопии часто оказывается затруднительным.

Необходимым условием возбуждения КФ является наличие комбинационно-активных решеточных переходов в кристаллах на частотах, содержащихся в спектре возбуждающего лазерного импульса, с длительностью короче периода фона. При распространении лазерного импульса сверхмалой длительности в прозрачных средах происходит так называемое «ударное» вынужденное комбинационное рассеяние света [1], в результате которого все атомы решетки получают импульс, инициирующий их колебательное движение относительно равновесных позиций. Наиболее распространенным описанием генерации КФ в непрозрачных кристаллах является механизм смещения положения равновесия [13]. В этом случае электроны поглощают лазерное излучение, переходя со связывающих орбиталей валентной зоны на разрыхляющие орбитали зоны проводимости. В результате связи между атомами решетки модифицируются, меняя форму потенциальной кривой. Оказавшись на склоне потенциала, атомы решетки начинают движение к новому положению равновесия и, достигнув его, вследствие своей инерции продолжают движение, что и является причиной генерации когерентных возбуждений решеточной подсистемы. Отметим, что данный механизм смещения позволяет генерировать когерентное движение только полносимметричных фононных мод [13]. В случае кристаллов с пайерлсовскими искажениями, к которым относятся полуметаллы и ряд полупроводников, механизм смещения в некотором смысле явля-

ется анти-пайерлсовским переходом, поскольку возбуждение КФ стремится повысить симметрию кристалла [14].

В подавляющем большинстве исследований КФ вопрос о времени жизни когерентности оставался, как правило, недостаточно изученным [1–4]. Для непрозрачных кристаллов с ростом степени возбуждения, контролируемой интенсивностью импульсов накачки, когерентная динамика становится весьма сложной, демонстрируя зависящую от времени (chirpированную) частоту [15, 16], неэкспоненциальную релаксацию [17] и другие, весьма интересные, но не до конца понятые эффекты [18–20]. Поэтому есть все основания ожидать, что именно исследования дефазировки КФ, возбуждаемых в линейном режиме (когда частота и время жизни КФ не зависят от интенсивности накачки, а их амплитуда растет линейно [4, 17]), позволят прояснить вклады энергетической релаксации и чистой дефазировки во время жизни КФ. Недостаток информации о времени жизни КФ во многом обусловлен тем, что несмотря на достаточно долгую историю исследований когерентной динамики решетки [1–4] вопрос о природе когерентности фононов остается открытым [8, 17, 21–24]. Несколько упрощая ситуацию, можно сказать, что на данный момент не ясно, имеем ли мы дело с макроскопическим заполнением единственной фононной моды [23] или со сфазированными фононами различных решеточных мод [24]. Решение этой проблемы имеет фундаментальное значение, поскольку при макроскопическом заполнении одной моды фононы тождественны (неразличимы), и поэтому можно ожидать возникновения существенно квантовых эффектов, тогда как при фазировке различных мод фононный ансамбль может демонстрировать только классическое поведение [8, 17, 21, 22].

Сверхкороткие лазерные импульсы могут возбуждать несколько энергетических состояний фононной системы одновременно. Так как длительность лазерного импульса и его энергетическая ширина связаны соотношением неопределенности «энергия–время», импульс возбуждения длительностью 50 фс имеет ширину порядка 10 ТГц. После действия такого импульса накачки решеточная подсистема может с разной вероятностью находиться в любом из состояний, попадающих в этот энергетический интервал. Если рассматривать фотоиндуцированные осцилляции отражения классически (волновой пакет, созданный сверхкоротким лазерным импульсом, образован совокупностью сферовидных фононов с различными волновыми векторами [24]), то такой волновой пакет, образованный состояни-

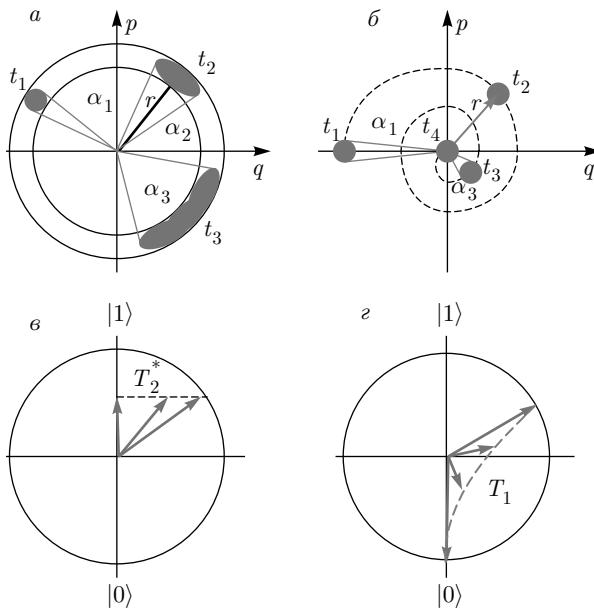


Рис. 1. (В цвете онлайн) Схематическая иллюстрация чистой дефазировки (*а*, *в*) и энергетической релаксации (*б*, *г*) КФ при их классическом (*а*, *б*) и квантовомеханическом (*в*, *г*) представлениях. На нижних панелях приведено схематическое сечение сферы Блоха, полюса которой соответствуют вакуумному $|0\rangle$ и однофононному $|1\rangle$ состояниям, и демпфирующие процессы в блоховском представлении. Процессы поперечной релаксации (*в*), ответственные за T_2^* , сохраняют z -компоненту вектора Блоха $r^2 = x^2 + y^2 + z^2$, а процессы продольной релаксации (*г*), контролирующие T_1 , приводят к изменению z -компоненты вектора

ями сплошного спектра, может быть представлен в фазовом пространстве, одно измерение которого описывает изменение межатомных расстояний q , а другое — изменение импульсов p атомов кристалла (рис. 1).

На рис. 1 оси q и p масштабированы так, что q^2 представляет потенциальную энергию, p^2 — кинетическую энергию, а полная энергия определяется выражением $r^2 = q^2 + p^2$, где r — расстояние до начала системы координат [25]. Если энергия каждой компоненты пакета сохраняется (значение r не изменяется во времени), а угол α , который охватывает все компоненты волнового пакета из начала фазового пространства и характеризует ширину распределения обобщенных координат и импульсов, также не меняется с течением времени, мы имеем дело со стационарной когерентностью. Если $d\alpha/dt \neq 0$, то с течением времени ансамбль осцилляторов заполнит полное изознергетическое кольцо с углом $\alpha = 2\pi$. Такой ансамбль будет называться неко-

герентным, или полностью «дефазированным». Если допустить взаимодействие когерентного ансамбля с некогерентным окружением (другие решеточные моды, свободные носители, примеси и дефекты решетки, не участвующие в когерентном движении), то при статистических упругих столкновениях с резервуаром компоненты пакета не меняют колебательной энергии, $r^2 = \text{const}$, но фаза каждой отдельной компоненты изменяется на небольшое случайное значение. Эта компонента перейдет к другому положению в фазовом пространстве, тем не менее сохранив ту же энергию.

Эволюция когерентного ансамбля в этом процессе дефазировки показана на рис. 1 a , из которого следует, что угол α растет ($\alpha(t_1) < \alpha(t_2) < \alpha(t_3)$ для $t_3 > t_2 > t_1$). При этом каждая компонента пакета все равно будет выполнять гармонические колебания, но ее фазу нельзя предсказать, поскольку упругие столкновения происходят статистически. Аналогичный эффект расплывания волнового пакета будет иметь место, если частоты колебаний его компонент несколько различаются. В этом случае дефазировка волнового пакета происходит за счет дисперсии фононной моды вблизи центра зоны Бриллюэна [26].

Помимо упругих столкновений при взаимодействии с некогерентным резервуаром могут реализоваться и неупругие взаимодействия. Их эффект называется диссипацией (энергетической релаксацией) и иллюстрируется на рис. 1 b , из которого следует, что фононный ансамбль с течением времени теряет энергию и приближается по спирали к центру фазового пространства. При этом у ансамбля сохраняется ширина по координатам q и p , так как фаза каждой отдельной компоненты не изменяется, но в силу потери энергии ($r \rightarrow 0$) происходит уширение угла α (раствор конуса при неизменной площади основания растет при уменьшении высоты). Поэтому дефазировка напрямую связана с диссипацией и не может быть предотвращена. Когда колебательный ансамбль достигает центра фазового пространства, величина α равна 2π . Чтобы отличить дефазировку, вызванную диссипацией, от дефазировки, представленной на рис. 1 a , последнюю часто называют чистой дефазировкой.

При квантовом рассмотрении КФ (состояние Глаубера, контролируемое многофононными процессами [23]) суперпозиция решеточных мод образована различными фононными состояниями (вакуумным, одно-, двух-, трехфононными состояниями, которые попадают в энергетический интервал спектра импульса накачки) с нулевым волновым вектором.

В случае, когда волновой пакет образован состояниями дискретного спектра, процессы демпфирования разрушают когерентность и переводят суперпозиции в статистические смеси. Поскольку смеси состояний имеют вектор Блоха $r < 1$, эти процессы демпфирования не сохраняют модуль блоховского вектора. На рис. 1 ε, φ показаны два разных типа демпфирования, которые могут произойти в этом случае. Рисунок 1 ε иллюстрирует эффект демпфирования путем чистого дефазирования. Эти T_2^* -процессы разрушают когерентность без изменения населенности (релаксируют только недиагональные компоненты матрицы плотности), и поэтому они соответствуют переходу от поверхности сферы Блоха к ее центру при постоянной величине z -компоненты вектора Блоха $r^2 = x^2 + y^2 + z^2$.

На рис. 1 φ показан другой эффект затухания осцилляций, обусловленный процессами изменения населенности (T_1 -процессы). Поскольку эти процессы меняют относительные населенности состояний (диагональные компоненты матрицы плотности), они также изменяют z -компоненту вектора Блоха. Тот факт, что чистая дефазировка (T_2^* -процессы) сохраняет z , тогда как T_1 -процессы не сохраняют, объясняет, почему эти процессы называются соответственно поперечной и продольной релаксациями. На рис. 1 φ видно, что продольная релаксация одновременно ведет к поперечной релаксации даже в отсутствие процессов чистого дефазирования. Именно поэтому общая скорость $1/T_2$ дефазировки в обсуждаемом ниже уравнении (1) содержит оба вклада.

Как уже отмечалось, осцилляции отражения, порождаемые КФ, существуют до тех пор, пока сохраняются фазовые соотношения между фононами ансамбля. Определим время их полной дефазировки $\tau \equiv T_2$ (время жизни осцилляций) и время чистой дефазировки T_2^* . Три величины связаны соотношением

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*}, \quad (1)$$

в котором время T_1 описывает скорость энергетической релаксации. В пределе релаксационно-ограниченной дефазировки, когда T_2^* расходится, $T_2 = 2T_1$, и скорость дефазировки меньше скорости энергетической релаксации. Однако в некоторых экспериментах для конденсированного состояния выполняется неравенство $T_2 \ll T_1$ за счет доминантного вклада чистой дефазировки T_2^* . Это часто справедливо для реализаций кубитов в квантовой информации, и устранение процессов чистого дефа-

зирования в настоящее время является достаточно горячей темой исследований.

Напомним, что фурье-образ временной корреляционной функции связан с частотным спектром. Например, преобразование Фурье автокорреляционной функции смещений атомов,

$$c_{qq}(t) = \frac{\langle q(0)q(t) \rangle}{\langle q^2 \rangle}, \quad (2)$$

дает соответствующие частоты, отвечающие за динамику обобщенной координаты q компоненты волнового пакета, но не дает их амплитуд [27]. Этот частотный спектр задается формулой

$$I(\Omega) = \int_0^\infty dt e^{i\Omega t} c_{qq}. \quad (3)$$

Поскольку коррелятор $c_{qq}(t)$ содержит информацию о соответствующих частотах КФ, его изменение во времени является мерой того, насколько сильно связано движение обобщенной координаты q волнового пакета с остальной частью полной системы, определяя, каково перекрытие между частотами суперпозиционного (когерентного) состояния и его некогерентным окружением. Чем больше перекрытие, тем сильнее взаимодействие, и, следовательно, тем быстрее движение атомов кристалла будет колебательно декоррелировано с самим собой. Таким образом, время затухания коррелятора $c_{qq}(t)$, которое обозначается T_2 , называется временем полной колебательной дефазировки. Заметим, что с таким же временем затухает коррелятор скорости атомов, участвующих в решеточной когерентности,

$$c_{vv}(t) = \frac{\langle \dot{q}(0)\dot{q}(t) \rangle}{\langle \dot{q}^2 \rangle}, \quad (4)$$

где $v = \dot{q}(t)$.

Другой мерой силы связи между решеточным суперпозиционным состоянием и его окружением является время, необходимое для рассеивания избыточной энергии решетки, когда она возбуждена из состояния равновесия. Это время можно получить, изучая затухание автокорреляционной функции энергии

$$c_{\varepsilon\varepsilon}(t) = \frac{\langle \varepsilon(0)\varepsilon(t) \rangle}{\langle \varepsilon^2 \rangle}, \quad (5)$$

где ε дается суммой кинетической и потенциальной энергий решеточных возбуждений. Для гармонического осциллятора с частотой ω [27] имеем

$$c_{\varepsilon\varepsilon}(t) = \frac{1}{2} c_{qq}^2(t) + \frac{1}{2} c_{vv}^2(t) + \frac{1}{\omega^2} \dot{c}_{qq}^2(t), \quad (6)$$

где точка над последним членом означает производную по времени. Время затухания этой корреляционной функции обозначается T_1 и называется временем продольной релаксации.

Целью данной работы являлось сравнение времени жизни КФ различной симметрии в полуметалах (Sb и Bi) и узкозонном полупроводнике (Te), структура которых определяется пайерлсовскимиискажениями, при варьировании когерентной амплитуды как при помощи длительности возбуждающего импульса, так и за счет оптического контроля и температуры кристалла в широком интервале (от гелиевой до комнатной).

2. СВОЙСТВА КРИСТАЛЛОВ И ДЕТАЛИ ЭКСПЕРИМЕНТА

Полуметаллы, висмут и сурьма, так же как и узкозонный полупроводник Te, являются модельными объектами для исследований когерентной динамики решетки [2–4]. Достаточно заметить, что именно наблюдение полносимметричных КФ в этих кристаллах [13] инициировало создание модели смещения, а чуть позднее данные по когерентной динамике фононных мод различной симметрии в полуметалах были использованы для обоснования унифицированной теории (двуихтензорная модель [20]) генерации КФ. Это во многом обусловлено хорошо известным электронным и фононным спектрами этих кристаллов [28–30] и достаточно большими амплитудами решеточных смещений пайерлсовских мод, несмотря на то, что рамановские поляризуемости фононов этих кристаллов не очень велики [4, 17].

Висмут и сурьма кристаллизуются в структуре A7 с двумя атомами в примитивной ромбоэдрической ячейке (симметрия D_{3d}^5 или $R\bar{3}m$) [4, 28–30]. Эта структура возникает в результате растяжения простой кубической решетки вдоль одной из пространственных диагоналей, сопровождаемого относительным сдвигом двух соседних подрешеток. Подобная деформация может быть представлена в виде внутреннего (или пайерлсовского) и тригонального сдвигов, первый из которых смещает через одну плоскость (111) кубической структуры в направлении [111], а второй соответствует проскальзыванию плоскостей относительно друг друга, приводя к уменьшению тригонального угла, равного 60° в кубической структуре. Поскольку оба полуметалла являются элементами V группы, в случае кубической решетки они должны быть металлами. Однако внутренний сдвиг, приводя к удвоению объема эле-

ментарной ячейки, делает их диэлектриками, тогда как тригональный сдвиг ответствен за переход диэлектрик–полуметалл [31]. Из шести фононов полуметаллов оптические фононы симметрии A_{1g} и E_g являются комбинационно-активными [4, 13], а их рамановские тензоры второго ранга α_{ij} в системе основных кристаллографических осей (x , y и z – бинарная, бисекторная и тригональная оси) имеют вид

$$A_{1g} \begin{pmatrix} a & \dots & \dots \\ \dots & a & \dots \\ \dots & \dots & b \end{pmatrix},$$

$$E_g \begin{pmatrix} c & \dots & \dots \\ \dots & -c & d \\ \dots & d & \dots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \dots & -c & -d \\ -c & \dots & \dots \\ -d & \dots & \dots \end{pmatrix}. \quad (7)$$

Этот тензор α_{ij} связывает интенсивность рассеянного света и поляризации падающего и рассеянного света, а квадрат его матричного элемента пропорционален поляризуемости, для компонент которой в случае базисной плоскости полуметаллов выполняется соотношение $a^2 > c^2$. Полносимметричные A_{1g} -фононы полуметаллов образуются противофазными смещениями атомов вдоль диагонали, относительно которой происходит пайерлсова деформация. Они модулируют внутренний сдвиг и в недеформированной кубической решетке соответствуют продольной акустической моде R-точки зоны Бриллюэна. В случае дважды вырожденных E_g -фононов противофазное движение пары атомов происходит в базисной плоскости (этот фонон происходит из по-перечной акустической моды R-точки зоны Бриллюэна кубической решетки).

Теллур является элементом VI группы периодической таблицы, и каждый атом решетки дает шесть электронов в валентную зону, обеспечивая плотность свободных носителей $1.77 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$. При нормальных условиях α -Te кристаллизуется в D_{3d}^4 -структуре, в которой три атома элементарной ячейки образуют виток спиральной цепочки, ориентированной вдоль тригональной оси [32]. Валентная зона при комнатной температуре отделена от зоны проводимости прямой щелью около 0.33 эВ в H-точке зоны Бриллюэна, а схема электронных зон теллура может быть представлена комбинацией трех валентных зон и трех зон проводимости [32, 33]. Структуру α -Te можно рассматривать как исаженную эффектом Пайерлса кубическую структуру γ -Te D_{3d}^5 , в которой деформация соответствует полносимметричной моде низкосимметричной структу-

ры. Все шесть оптических фононов α -Te [34], рамановские тензоры которых в системе основных кристаллографических осей (x , y и z — бинарная, бисекторная и тригональная оси) имеют вид

$$\begin{aligned} A_1 & \left(\begin{array}{ccc} a & \dots & \dots \\ \dots & a & \dots \\ \dots & \dots & b \end{array} \right), \\ E(x) & \left(\begin{array}{ccc} c & \dots & \dots \\ \dots & -c & d \\ \dots & d & \dots \end{array} \right), \\ E(y) & \left(\begin{array}{ccc} \dots & c & d \\ -c & \dots & \dots \\ -d & \dots & \dots \end{array} \right) \end{aligned} \quad (8)$$

могут давать вклад в когерентные осцилляции отражения, однако доминантный вклад дают полносимметричные A_1 -фононы [32, 33, 35]. В полносимметричной A -моде нормальный вектор соответствует движению атомов, изменяющему радиус спирали («дышащая» мода), тогда как в дважды вырожденных модах E -симметрии атомы соседних спиралей смещаются в противофазе.

В данной работе изучение КФ проводилось для базисных плоскостей полуметаллов и полупроводника, полученных сколом кристаллов перпендикулярно тригональной оси. Для измерений температурных зависимостей образцы помещались в оптический криостат. Для исследования КФ использовалась фемтосекундная лазерная установка, состоящая из генератора фемтосекундных импульсов на титанате сапфира (длина волны $\lambda = 800$ нм, длительность импульса $\tau_p = 50$ фс, частота следования импульсов 82 МГц). Все разрешенные во времени измерения осуществлялись с использованием импульсов малой энергии в вырожденной схеме накачки–зондирования. Оба пучка (накачка и зондирование, средние мощности которых составляли соответственно 35 и 2 мВт) фокусировались ахроматическими линзами в пятна диаметром 0.1 мм и 0.05 мм, различные размеры которых позволяли минимизировать эффекты неоднородности возбуждения. В экспериментах использовалась геометрия возбуждения с электрическим вектором лазерного импульса, перпендикулярным тригональной оси кристалла. При изотропном детектировании, которое дает доступ к комбинационно-активным модам, имеющим ненулевые диагональные элементы рамановского тензора, поляризационный анализ зонда не проводился. Экспериментальная информация получалась в виде набора нормированных разностных

сигналов отражения R , снятых в различные моменты времени до и после возбуждения кристалла:

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \frac{R(t) - R_0(t < 0)}{R_0(t < 0)}. \quad (9)$$

Для варьирования длительности лазерного импульса накачки и реализации когерентного контроля (двухимпульсная накачка) использовался оптический формирователь [8, 35], позволяющий модулировать амплитуду и фазу спектра импульса возбуждения, меняя тем самым его длительность или трансформируя его в пару импульсов с заданным межимпульсным расстоянием. Импульс зондирования при этом всегда оставался спектрально ограниченным по длительностью 50 фс.

Измерения в частотной области осуществлялись при помощи рамановского спектрометра (Micro-dil-28) в геометрии обратного рассеяния. Спектры получали при возбуждении излучением гелий-неонового лазера ($\lambda = 632.8$ нм) с использованием ахроматического длиннофокусного объектива 50×, решетки 1800 линий/мм и ширины щелей, обеспечивающих спектральное разрешение порядка 0.03 ТГц. Регистрация спектров осуществлялась многоканальным детектором CCD, работающим при азотном охлаждении. Поляризационный анализ спектров не осуществлялся, поскольку полносимметричные моды базисной плоскости исследуемых кристаллов не зависят от ориентации электрического вектора относительно кристаллографических осей, см. рамановские тензоры (7) и (8). Более подробно детали экспериментов можно найти в работах [8, 17, 35].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 приведен типичный оптический отклик фотоиндуцированного отражения, полученный при гелиевой температуре при возбуждении и последующем зондировании монокристалла Sb сверхкороткими лазерными импульсами длительностью 50 фс. При этой температуре решетка кристалла до воздействия импульса накачки (при квантовомеханическом описании) находится в вакуумном состоянии (при классическом описании атомы решетки покоятся). Сразу после воздействия импульса накачки отражение кристалла интегрально уменьшается (нормированное разностное отражение $\Delta R/R$ растет). На рис. 2 видно, что возбужденное электронное состояние, реализуемое в течение сотни фемтосекунд, монотонно релаксирует к равновесию за времена порядка нескольких пикосекунд. На эту релак-

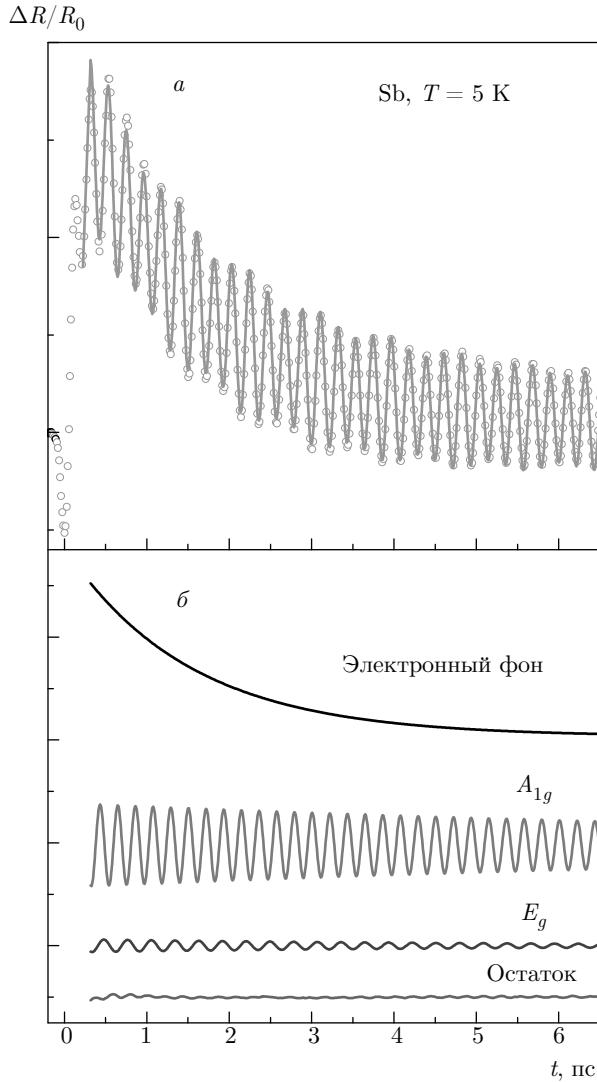


Рис. 2. (В цвете онлайн) *a)* Зависимость дифференциального отражения $\Delta R/R_0$ от времени для монокристалла сурьмы (кружки — эксперимент, сплошная линия — подгонка формулой (10)). Длительности импульсов накачки и зондирования совпадают и равны 50 фс, $T = 5$ К, экспериментальная ошибка порядка диаметра кружка. *б)* Разложение $\Delta R/R_0$ на осциллирующие и монотонную компоненты

сацию, обусловленную фотовозбужденными носителями, наложены быстрые осцилляции, порождаемые возбуждением когерентных оптических фононов, время жизни которых определяется разрушением фазового синхронизма и значительно превышает время релаксации фотовозбужденных носителей. Из соотношения амплитуд релаксационного и когерентного сигналов вблизи нулевой задержки, схематично показанных на рис. 3, следует, что вклады электронов и фононов соизмеримы при $\tau_p < 80$ фс, хотя первый, несомненно, доминирует, что совпадает с данными предыдущих исследований [2, 4].

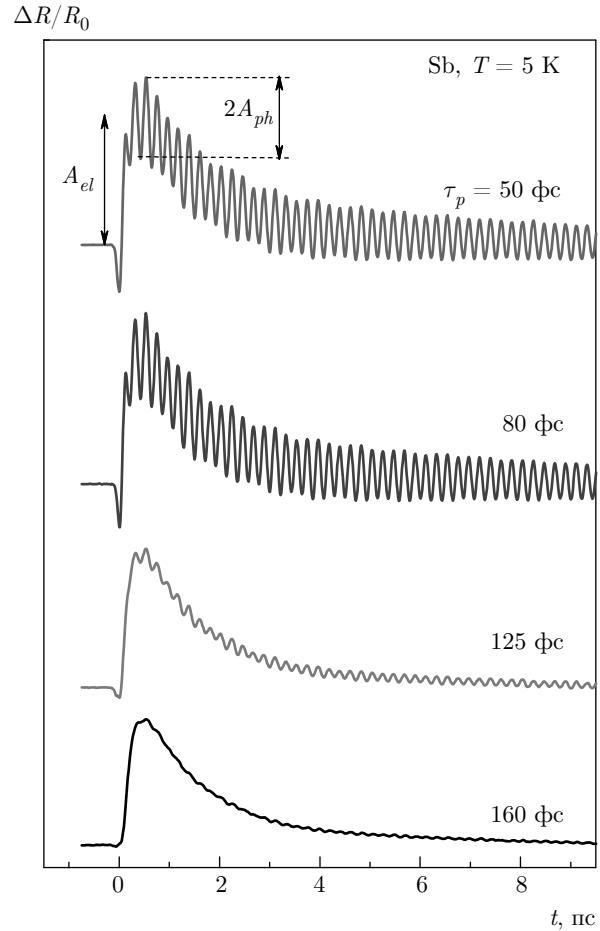


Рис. 3. (В цвете онлайн) Зависимости дифференциального отражения $\Delta R/R_0$ от времени для монокристалла сурьмы при гелиевой температуре для разных длительностей импульса возбуждения, указанных для каждой кривой, которые сдвинуты по ординате для удобства восприятия

Вблизи нулевых задержек существует отрицательный провал, обусловленный динамическим вкладом [36–39], величина которого зависит от длительности импульса возбуждения (см. рис. 3) и температуры. Для того чтобы разделить когерентный $(\Delta R/R_0)_{osc}$ и релаксационный $(\Delta R/R_0)_{el}$ вклады и получить параметры КФ, экспериментально полученная кинетика фотоиндцированного отражения подгонялась формулой

$$\frac{\Delta R(t)}{R_0} = H(t) \left\{ A_{el} \left[\exp \left(-\frac{t}{\tau_2} \right) - \exp \left(-\frac{t}{\tau_1} \right) \right] + \sum_i A_i \exp \left(-\frac{t}{\tau_i} \right) \sin(\Omega_i t + \phi_i) \right\}, \quad (10)$$

где $H(t)$ — лазерный импульс, свернутый с функцией Хэвисайда. Вклад $(\Delta R/R_0)_{el}$ представлен парой экспоненциальных функций, описывающих нарастание τ_2 и спад τ_1 релаксационного (электронного) сигнала A_{el} , а фононный вклад $(\Delta R/R_0)_{osc}$ дается двумя затухающими синусоидами, в которых амплитуды A_i , частоты Ω , времена жизни τ_i и начальные фазы ϕ_i КФ различной симметрии задаются нижним индексом « i ». Типичное разложение экспериментального сигнала на когерентные (фононы) и некогерентные (электроны) компоненты иллюстрируется выше на рис. 2б. Качество подгонки можно оценить из разности между экспериментальным сигналом и полученным с помощью приближенного уравнения (10), приведенной внизу на рис. 2б. Фурье-анализ быстрых осцилляций, приведенный на рис. 4, свидетельствует, что основной когерентный вклад дают полносимметричные A_{1g} -фононы с частотой 4.62 ТГц, амплитуда которых значительно больше амплитуды низкосимметричных E_g -фононов (см. также рис. 2б), частота которых не превышает 3.4 ТГц. Спектральная ширина каждого из КФ определяет силу взаимодействия с некогерентным резервуаром (носители, примеси, и другие фононные моды, не участвующие в когерентном движении).

Время жизни КФ сурьмы в линейном режиме не зависит от величины когерентной амплитуды [4, 17]. Однако в этих экспериментах когерентная амплитуда реализовалась, как правило, при различных концентрациях свободных носителей, которые, как и амплитуда, пропорциональны интенсивности накачки (т. е. вместе с когерентной амплитудой изменились свойства окружения). При условии неизменности энергии возбуждения когерентная амплитуда экспоненциально убывает с ростом длительности возбуждающего импульса [1], тогда как электронный вклад от нее не зависит [38, 39]. Были проведены эксперименты, которые позволили оценить время жизни КФ в зависимости от величины когерентной амплитуды при неизменной концентрации фотовозбужденных носителей. Результаты этих экспериментов приведены на рис. 3 и 5. На первом из них показано несколько кинетик фотоиндцированного отражения, тогда как на втором приведены величины времен жизни когерентных (решеточных) и релаксационных (электронных) компонент для различных длительностей возбуждающего импульса. Времена жизни, представленные на рис. 5, определялись подгонкой полученных кинетик отражения уравнением (10). Несмотря на то что когерентная амплитуда при максимальной дли-

FT

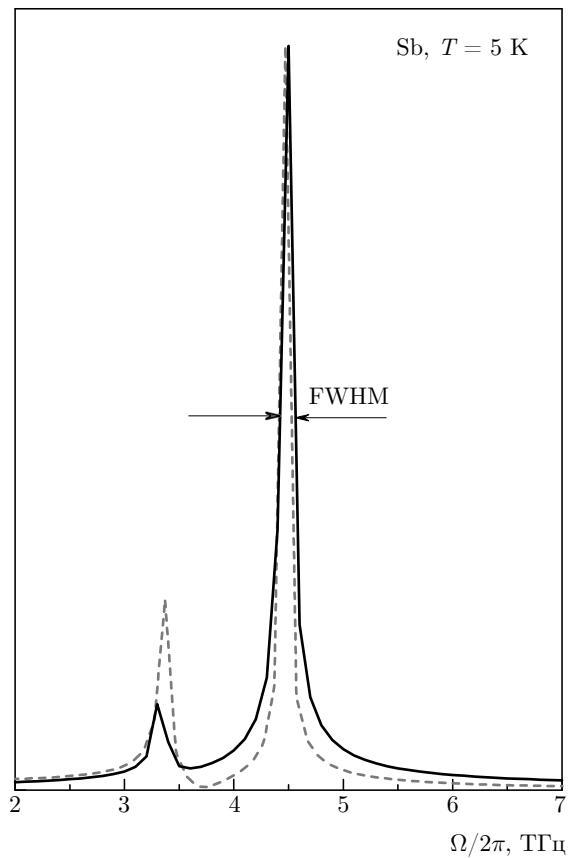


Рис. 4. (В цвете онлайн) Нормированные фурье-образы осциллирующего вклада отражения Sb при $T = 5$ К для двух различных длительностей импульса возбуждения: $\tau_p = 150$ фс (штриховая кривая) и $\tau_p = 50$ фс (сплошная кривая)

тельности импульса накачки более чем на порядок меньше амплитуды создаваемой самым коротким ($\tau_p = 50$ фс) импульсом, времена жизни КФ в обоих случаях практически совпадают.

В том, что время жизни КФ не зависит от величины когерентной амплитуды, легко убедиться и без математической подгонки, сравнивая когерентные компоненты, представленные в полулогарифмических координатах на рис. 6. Линейный спад когерентных амплитуд фононов высокой (A_{1g}) и низкой (E_g) симметрий в такой шкале свидетельствует об экспоненциальном спаде во времени, тогда как скорость дефазировки дается углом наклона, который совпадает для случаев больших и малых амплитуд, реализуемых импульсами различной длительности. Также о независимости времени жизни КФ от длительности импульса возбуждения свидетельствуют нормированные фурье-спектры, приведенные выше

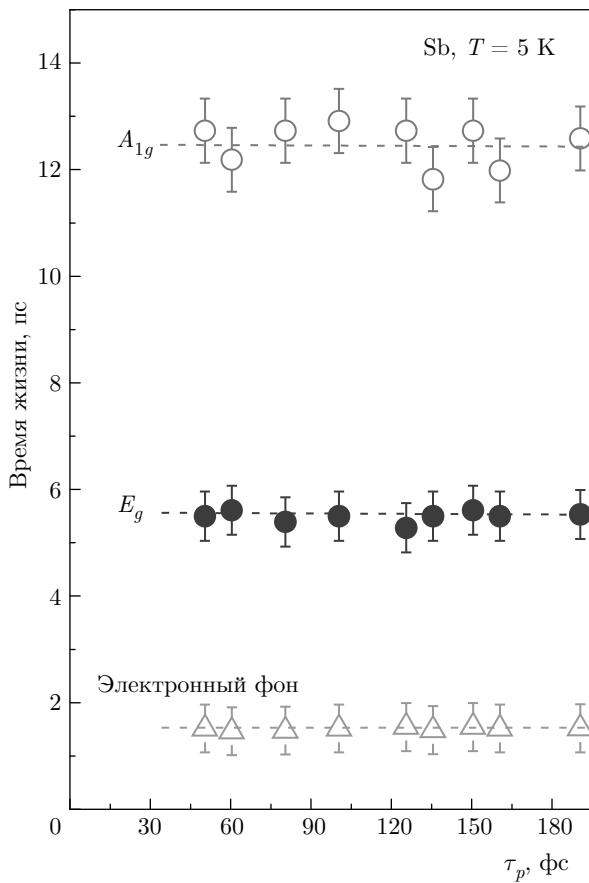


Рис. 5. (В цвете онлайн) Времена жизни КФ различной симметрии и электронной компоненты сурьмы при гелиевой температуре в зависимости от длительности импульса возбуждения. Штриховые линии показаны только для удобства восприятия

на рис. 4 для двух различных длительностей возбуждения τ_p . Эти спектры демонстрируют, что полуширины спектральных линий для $\tau_p = 50$ фс и $\tau_p = 150$ фс практически совпадают. Отметим, что в нормированных фурье-спектрах, приведенных на рис. 4, интенсивность низкосимметричной E_g -моды для случая $\tau_p = 150$ фс превышает интенсивность E_g -моды при $\tau_p = 50$ фс. Это ситуация обусловлена нормировкой на более интенсивную высокочастотную A_{1g} -моду, а поскольку интенсивность каждой моды экспоненциально зависит (убывает) от квадрата произведения частоты моды и длительности импульса возбуждения, для низкочастотной E_g -моды этот спад менее выражен [38, 39].

Аналогичная зависимость времени жизни от длительности возбуждающего импульса наблюдалась и для полносимметричных КФ теллура, которые доминируют во времязарезщенном фотоиндуцированном отклике (рис. 7). В этом случае для

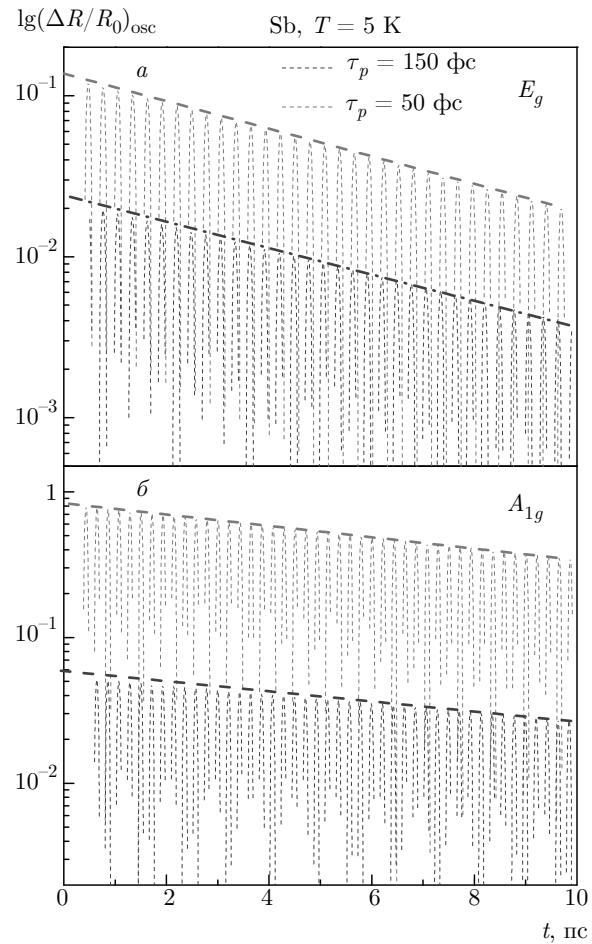


Рис. 6. (В цвете онлайн) Осциллирующие вклады отражения различной симметрии ($a - E_g$, $b - A_{1g}$) сурьмы, полученные при различных длительностях импульса накачки, в полулогарифмических координатах. Штриховые линии позволяют сравнить времена жизни КФ, которые практически совпадают для больших и малых когерентных амплитуд, реализованных при помощи изменения длительности импульса возбуждения

полносимметричных КФ с частотой 3.6 ТГц время жизни при комнатной температуре составило 1.6 пс, что несколько меньше времени жизни некогерентной компоненты (1.8 пс). Отметим, что время потери когерентности в теллуре значительно меньше, чем в полуметаллах. Оба времени жизни в теллуре (фононы и электроны), как и в случае сурьмы, демонстрируют независимость от длительности возбуждаемого импульса, варьируемой от 50 до 350 фс, что иллюстрирует рис. 8.

Изменить амплитуду КФ можно не только длительностью возбуждающего импульса τ_p , но и используя двухимпульсную методику возбуждения (когерентный контроль) [4]. Такой процесс может

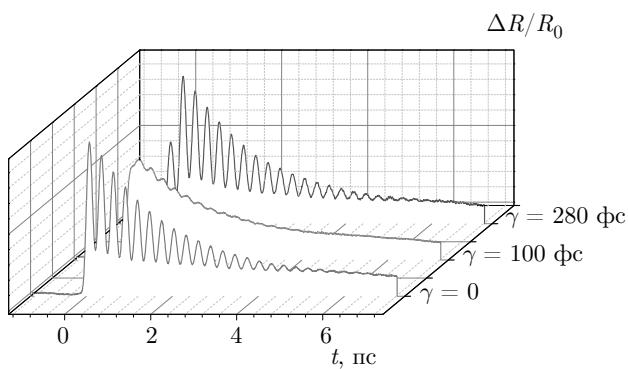


Рис. 7. (В цвете онлайн) Зависимость дифференциального отражения $\Delta R/R_0$ от времени для монокристалла теллура при комнатной температуре для различных значений контрольного параметра γ . Нулевое значение γ соответствует моноимпульсному возбуждению с длительностью импульса 50 фс

Время жизни, пс

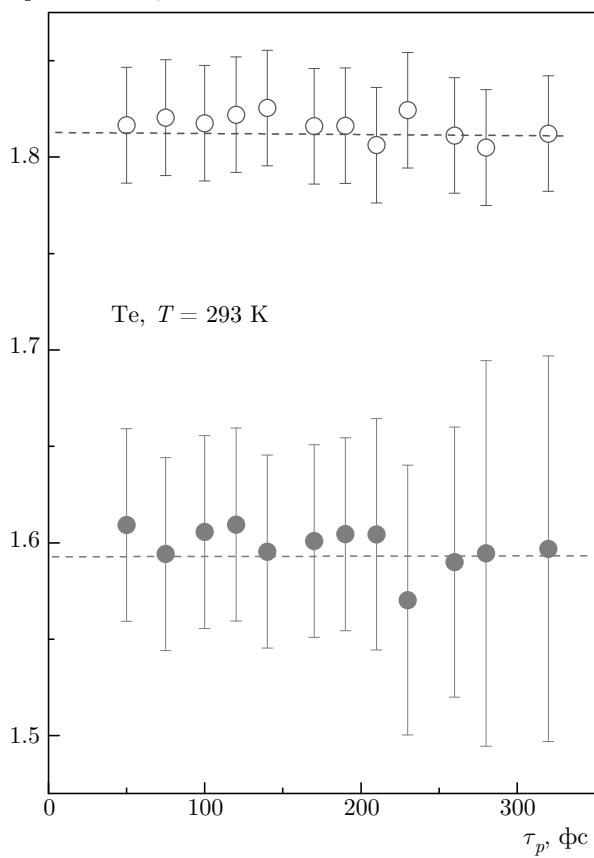


Рис. 8. (В цвете онлайн) Времена жизни КФ (●) и электронной компоненты (○) теллура в зависимости от длительности импульса возбуждения. Штриховые линии показаны только для удобства восприятия

быть представлен как сумма интерферирующих ансамблей фононов, созданных в различные моменты времени. С учетом механизма генерации полносимметричных КФ [13] результаты когерентного контроля для пайерлсовских мод могут быть поняты следующим образом. Первый импульс накачки перемещает атомы на склон потенциала, поскольку появление фотовозбужденных электронов имеет своим следствием изменение равновесных межъядерных расстояний. В результате атомы начинают движение к новому, смещенному положению равновесия и, вследствие своей инерции, продолжают движение и после его достижения, приводя к осцилляциям отражения. Для того чтобы погасить осцилляции, нужно дождаться, когда атомы окажутся на противоположном склоне потенциала в точке классического поворота и, возбудив необходимое число носителей в вышележащие зоны, сдвинуть минимум потенциала в эту точку. Поскольку в точке поворота кинетическая энергия атомов равна нулю, атомы, оказавшись в минимуме потенциала, прекращают движение. Для усиления осцилляций необходимо смещать потенциал в моменты времени, кратные периоду осцилляций. Сдвиг потенциала в промежуточные моменты времени будет приводить к осцилляциям с амплитудой, меньшей максимальной.

Результаты оптического контроля когерентной динамики решетки Тe для случая малых возбуждений иллюстрируются на рис. 7 и 9, тогда как зависимости времени жизни КФ и электронного фона от величины задержки между двумя импульсами накачки представлены на рис. 10. На рис. 7 видно, что при двухимпульсном возбуждении задержка между импульсами (контрольный параметр γ), равная четному числу полупериодов A_1 -осцилляций, приводит к росту амплитуды КФ (конструктивная интерференция), тогда как при контролльном параметре γ , равном нечетному числу полупериодов, амплитуда стремится к нулю (деструктивная интерференция). Очевидно, что подбор временной задержки двух последовательных импульсов накачки равной интенсивности позволяет осуществить практически полное подавление (деструктивная интерференция) решеточных осцилляций в теллуре (см. рис. 7 и 9a). Тем не менее время жизни полносимметричных A_1 -фононов теллура при этом остается неизменным, что иллюстрирует рис. 9b, на котором в полулогарифмическом масштабе показаны когерентные A_1 -вклады с большой и малой амплитудами, реализуемыми методом когерентного контроля. Аналогично, результат когерентного контроля в висмуте, показанный на рис. 11a, свидетель-

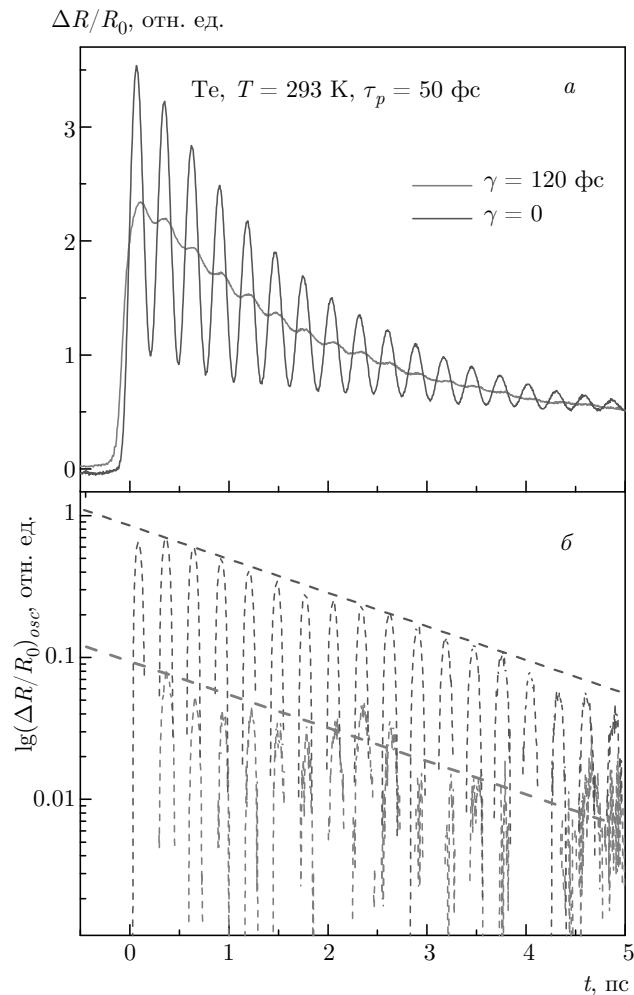


Рис. 9. (В цвете онлайн) а) Зависимость дифференциального отражения $\Delta R/R_0$ от времени для монокристалла теллура при комнатной температуре для двух разных значений контрольного параметра γ . б) Осциллирующие вклады $(\Delta R/R_0)_{osc}$ для разных значений контрольного параметра в полулогарифмических координатах. Штриховые линии позволяют сравнить времена жизни, которые практически совпадают для больших и малых когерентных амплитуд, реализованных за счет конструктивной и деструктивной интерференции

ствует, что и при конструктивной интерференции, приводящей к максимальной амплитуде полносимметричной A_{1g} -моды с частотой 2.92 ТГц, и при деструктивной интерференции, сводящей амплитуду к минимуму, времена жизни КФ практически совпадают. Об этом свидетельствуют как когерентные A_{1g} - и E_g -компоненты, представленные в полулогарифмическом масштабе на рис. 11а, так и их фурье-образы, приведенные на рис. 11б. Отметим, что при деструктивной интерференции A_{1g} -моды отно-

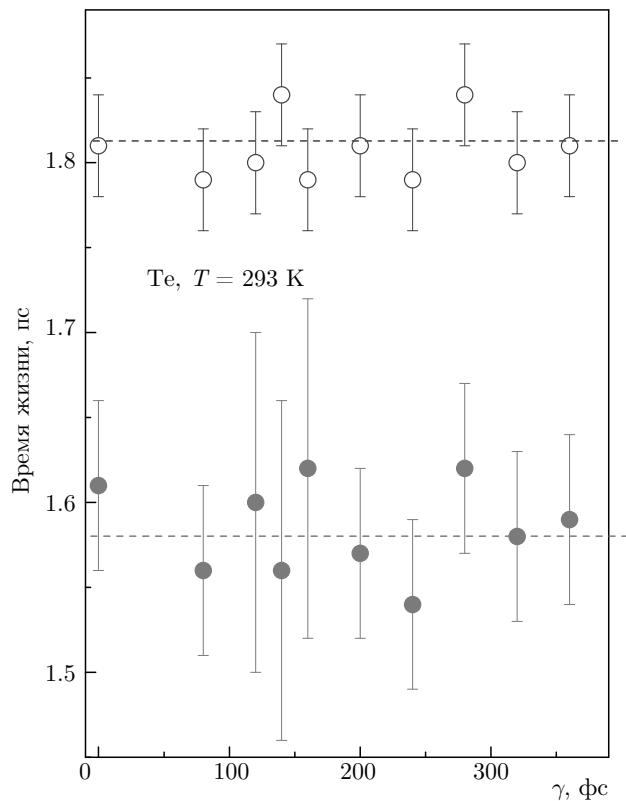


Рис. 10. (В цвете онлайн) Времена жизни полносимметричных КФ (●) и электронной компоненты (○) теллура в зависимости от контрольного параметра γ . Штриховые линии показаны только для удобства восприятия

сительные вклады E_g -моды низкой симметрии и комбинации $A_{1g} + E_g$ увеличиваются.

Проведя манипуляции с когерентной амплитудой в трех кристаллах, свойства которых определяются искажениями Пайерлса, и выяснив, что времена жизни КФ не зависят от величины когерентной амплитуды, посмотрим, каким образом изменение свойств резервуара влияет на дефазировку КФ. Для этого будем менять температуру кристалла и следить, как это сказывается на времени жизни когерентных решеточных возбуждений. На рис. 12 приведены температурные зависимости времен жизни всех компонент фотоиндукционного отклика в сурье, полученные при длительности импульса возбуждения $\tau_p = 50$ фс. Очевидно, что температура сильно влияет на когерентные компоненты обеих симметрий (времена жизни при комнатной и гелиевых температурах различаются практически вдвое), тогда как ее воздействие на некогерентный вклад значительно слабее. Монотонное увеличение времени дефазировки с ростом температуры T обусловлено скорее всего ангармоническим распадом оптических фононов на

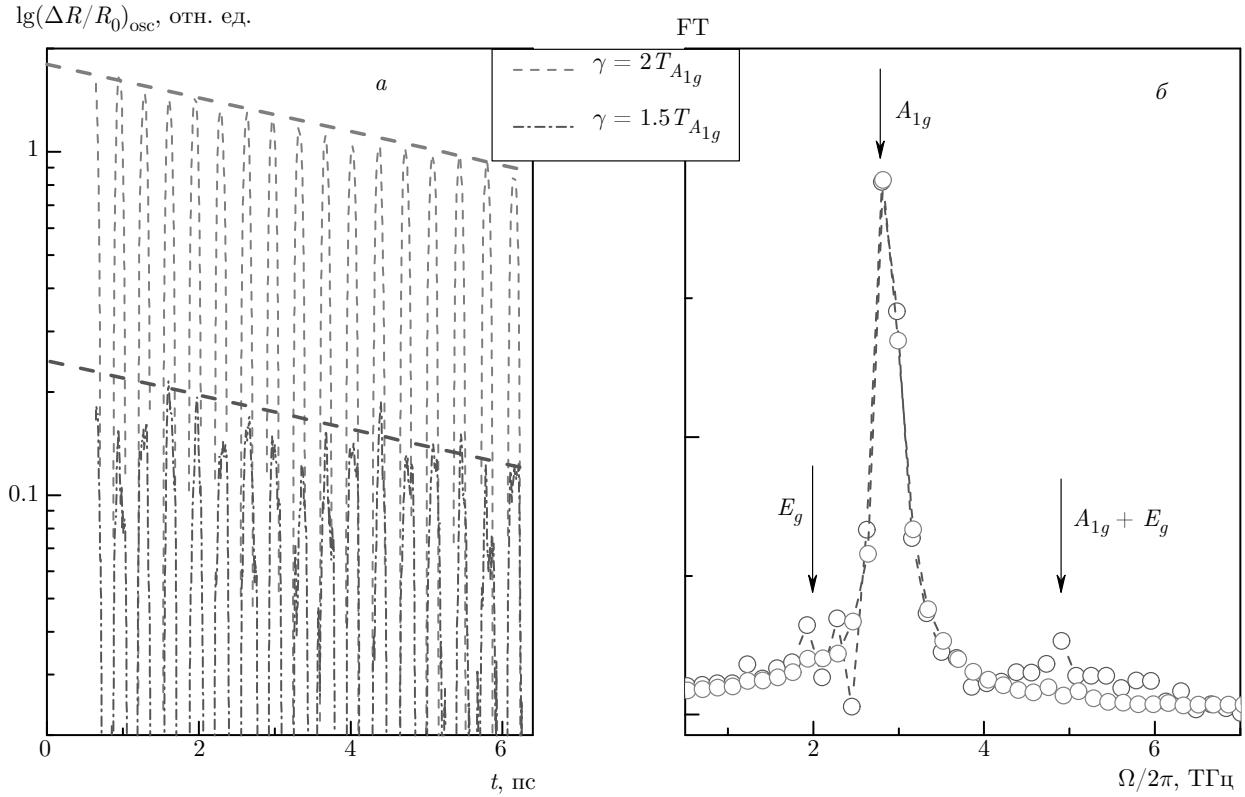


Рис. 11. (В цвете онлайн) *a*) Осциллирующие вклады отражения висмута $(\Delta R/R_0)_{osc}$ в полулогарифмических координатах для двух значений контрольного параметра. Штриховые линии позволяют сравнивать времена жизни, которые практически совпадают для больших (конструктивная интерференция) и малых (деструктивная интерференция) когерентных амплитуд. *б)* Фурье-спектры осциллирующих вкладов, показанных на панели *a*

пару фононов, суммарная энергия которых совпадает с энергией оптического фонона Ω , а суммарный волновой вектор равен нулю [40]. Для такого распада Клеменса имеем

$$\frac{1}{\tau} = \Gamma_0 + \gamma \left(1 + \sum_{i=1}^2 \frac{1}{e^{\Omega/2T} - 1} \right), \quad (11)$$

где подгоночные параметры γ и $1/\Gamma_0$ соответствуют ангармоническому коэффициенту и времени жизни при абсолютном нуле температуры (вклад вакуумных флукутаций, дефектов решетки и примесей).

Подгонка температурных зависимостей при помощи уравнения (11), показанная на рис. 12 сплошными линиями, дает

$$\Gamma_0(A_{1g}) = 0.07, \quad \gamma(A_{1g}) = 0.02$$

для мод высокой симметрии и

$$\Gamma_0(E_g) = 0.11, \quad \gamma(E_g) = 0.02$$

для мод низкой симметрии. Заметим, что в нашем случае подгоночные параметры γ и Γ_0 для полно-

симметричной моды сурьмы несколько меньше, чем в работе [41], что может указывать на более совершенную структуру нашего кристалла. Другой причиной расхождения параметров могут быть различия в интенсивности возбуждающих импульсов, которая в работе [41] была несколько больше.

Тот факт, что времена жизни КФ сурьмы удовлетворительно соответствуют ангармоническому распаду Клеменса, позволяет предположить, что потеря когерентности ансамбля в случае полуметаллов контролируется временем жизни (T_1 -процессы) решеточных возбуждений. Об этом также свидетельствует весьма интересное исследование времени жизни КФ в другом полуметалле, висмуте, которое было проведено при контролируемом введении беспорядка [42]. Показано, что хаотические нарушения идеального упорядочения дефектами могут приводить к более быстрой дефазировке полносимметричных КФ, поскольку атомы каждой элементарной ячейки кристалла перестают колебаться в фазе. Эта дефазировка КФ на дефектах [42, 43] вслед-

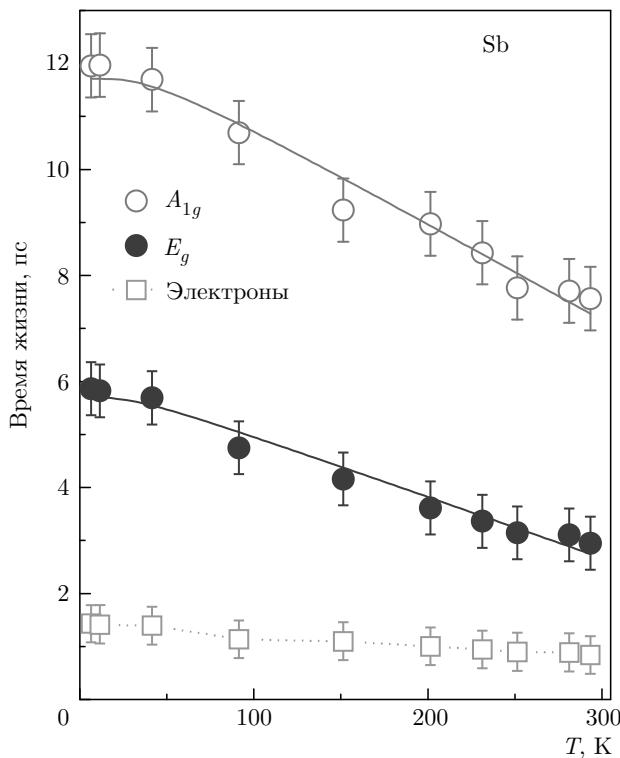


Рис. 12. (В цвете онлайн) Времена жизни КФ разной симметрии и электронной компоненты сурьмы в зависимости от температуры. Длительности импульсов накачки и зондирования совпадают и равны 50 фс. Сплошные линии для фононных компонент E_g - и A_{1g} -симметрии являются результатом подгонки при помощи уравнения (11)

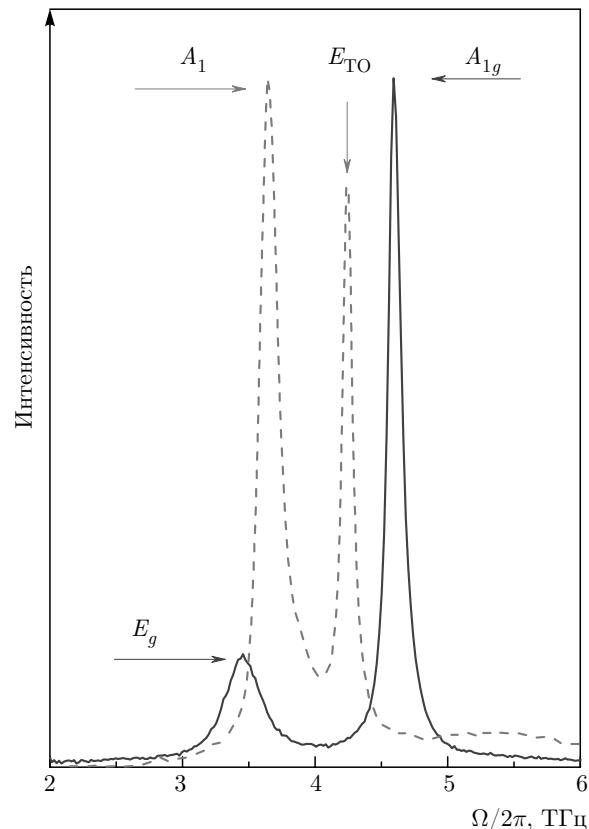


Рис. 13. (В цвете онлайн) Стоковые компоненты неполяризованного рамановского спектра сурьмы (сплошная линия) и теллура (штриховая) при комнатной температуре

ствие нарушений условий интерференции в процессе рассеяния статистически может быть описана пространственно-затухающими волнами с коэффициентами затухания $\chi \propto 1/l$, где l — среднее расстояние между дефектами, и дает дополнительно свидетельство того, что время жизни фона на контролирует время когерентности.

Интересно отметить, что для исследованных кристаллов времена дефазировки при одинаковых температурах достаточно сильно различаются. Так, время жизни когерентности в теллуре в разы меньше времени жизни КФ полуметаллов. Однако, если сравнить полуширины спектральных линий, полученных в частотном диапазоне методом спонтанного рамановского рассеяния, легко видеть, что они практически совпадают (рис. 13). Так, при комнатной температуре спектральная ширина линии A_1 -фона на теллуре (при аппроксимации функцией Лоренца) составляет 0.17 ТГц, что даже несколько меньше величины, полученной в классическом рамановском исследовании Te [34], и может служить

указанием на структурное совершенство исследуемого кристалла. Более того, спектральная ширина линии A_1 -фона на теллуре значительно меньше спектральной ширины E_g -фона висмута, для которого время жизни когерентности значительно больше. Предположив, что волновой пакет КФ формируется сфазированными фононными модами с различными волновыми векторами [24] и учитывая, что для всех исследованных кристаллов глубина δ проникновения света ($\delta \approx 10-15$ нм) практически совпадают, можно сделать вывод, что дисперсия полносимметричной моды теллуре больше, чем дисперсия A_{1g} -фонов полуметаллов. Соответственно, вклад чистой дефазировки (расплывание волнового пакета за счет дисперсии частоты) в случае полупроводника превышает вклад, реализуемый в полуметалах, что является причиной различия скоростей полной дефазировки. В пользу этого предположения свидетельствует тот экспериментальный факт, что ангармонизм решетки теллуре значительно превышает ангармонизм решеток полуметаллов,

особенно в случае фотовозбужденных кристаллов [4, 16, 32, 33]. На больший ангармонизм решетки теллура также указывает существование интенсивных обертона и комбинаций фононов в рамановском спектре [44], которые весьма слабы в полуметалах [45].

В нашем случае интенсивности спектров второго порядка в теллуре (не показаны на рис. 13) были сравнимы с интенсивностью спектров первого порядка, тогда как в полуметалах обертоны не регистрировались, что позволяет полагать, что их интенсивности на два порядка меньше, чем для рассеяния первого порядка. Таким образом в теллуре, особенно при повышенных температурах, может реализовываться ситуация $T_2 \ll T_1$ за счет ощущимого вклада процессов чистого дефазирования T_2^* . В полуметалах эти T_2^* -процессы не дают доминантного вклада, т. е. $T_2^* \geq T_1$. Особо отметим, что различие скоростей дефазировки КФ в полупроводниках и полуметалах не позволяет однозначно установить, имеем ли мы дело с решеточными возбуждениями, объединенными общей фазой [23], или с совокупностью возбуждений, независимые фазы которых в момент генерации совпадают [24]. Для окончательного выяснения, являются ли возбуждения решетки, созданные сверхкоротким лазерным импульсом, квантовыми или классическими корреляциями [5, 17], можно попытаться реализовать пространственно-разделенный когерентный контроль, при котором второй импульс накачки взаимодействует только с частью области, возбужденной первым импульсом, тогда как импульс зондирования взаимодействует с областью, возбужденной только первым, но не вторым импульсом. Если деструктивная интерференция проявится в области возбужденной только первым импульсом накачки, то КФ порождаются квантовыми корреляциями, если нет, то классическими.

Следует подчеркнуть, что независимость времени жизни КФ от величины когерентной амплитуды и плотности фотоиндуцированных носителей существует только в линейном режиме. При переходе в нелинейный режим [17] распад когерентного состояния происходит неэкспоненциально, как показано на рис. 14а для случая полносимметричных КФ висмута при гелиевой температуре. Очевидно, что в первые 5 пс когерентная амплитуда уменьшается более чем на порядок, тогда как в таком же временном окне, показанном на рис. 14б в увеличенном масштабе, спад амплитуды в разы меньше. Также различаются частоты когерентных осцилляций: для первого временного окна средняя частота равна 2.6 ТГц, то-

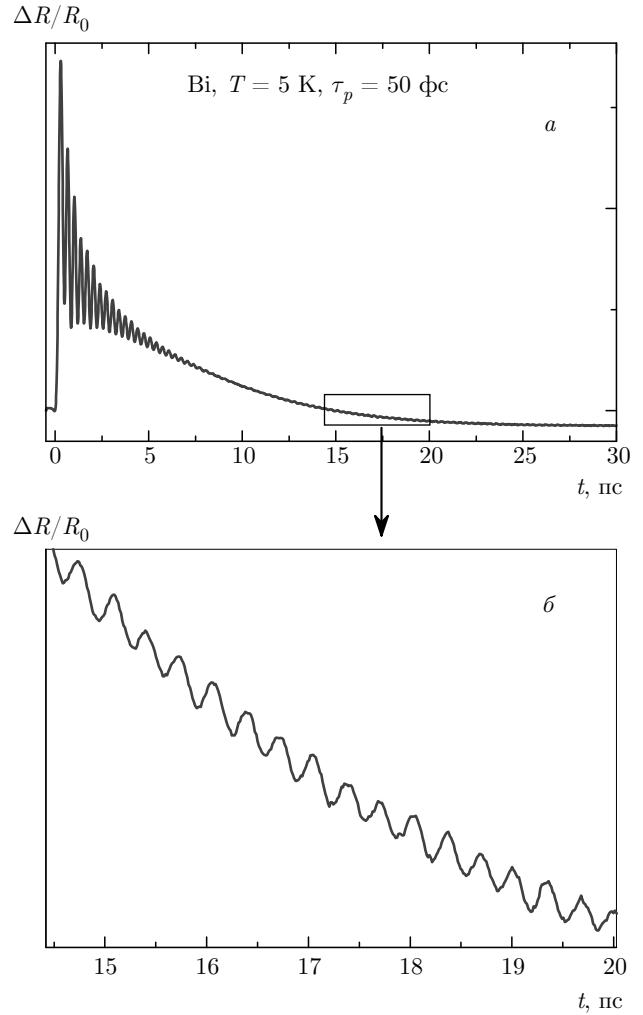


Рис. 14. (В цвете онлайн) *а*) Зависимость дифференциального отражения $\Delta R/R_0$ от времени для монокристалла Bi при гелиевой температуре в нелинейном режиме возбуждения. Длительность импульса возбуждения 70 фс. *б*) Увеличенный сигнал для обозначенного прямоугольником временного окна на панели *а*

гда как в дальнейшем она увеличивается до 3.0 ТГц, т. е. для случая чирпированных КФ скорость дефазировки, как и мгновенная частота, является функцией времени.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, методом накачка–зондирование фемтосекундными импульсами исследовано время жизни КФ непрозрачных кристаллов, структура которых формируется за счет пайерловских искажений (два полуметалла, Bi и Sb, и один полупроводник Te). Показано, что время жизни

КФ различной симметрии для линейного режима генерации не зависит от величины когерентной амплитуды, которая контролировалась длительностью импульса возбуждения и/или посредством когерентного контроля, но возрастает при охлаждении кристалла. Полученные результаты позволяют предположить, что в линейном режиме время жизни КФ контролируется состоянием окружения (резервуара), под которым понимается совокупность решеточных и электронных состояний, не вовлеченных в когерентное движение. Когерентность решеточного ансамбля, создаваемого сверхкороткими лазерными импульсами, лимитируется релаксацией, при этом вклад чистой дефазировки во время жизни когерентности в теллуре больше, чем в полуметаллах, для которых $T_2^* \gg T_1$. Предложена схема эксперимента по пространственно-разделенному когерентному контролю, который может позволить пролить свет на природу КФ, а именно, имеют ли компоненты волнового пакета общую фазу или их фазы, совпадающие в момент создания, независимы.

Финансирование. Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 17-02-00002).

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Dhar, J. A. Rogers, and K. A. Nelson, Chem. Rev. **94**, 157 (1994).
2. R. Merlin, Sol. St. Comm. **102**, 207 (1997).
3. T. Dekorsy, G. C. Cho, and H. Kurz, in *Light Scattering in Solids VIII*, ed. by M. Cardona and G. Güntherodt, Springer, Berlin (2000), pp. 169–209.
4. K. Ishioka and O. V. Misochko, Springer Ser. Chem. Phys. **98**, 23 (2010).
5. О. В. Мисочки, УФН **183**, 917 (2013).
6. M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima et al., Appl. Phys. Lett. **69**, 2474 (1996).
7. О. В. Мисочки, Р. Лу, М. Хасе, М. Китажима, ЖЭТФ **131**, 275 (2007).
8. О. В. Мисочки, М. В. Лебедев, Письма в ЖЭТФ **90**, 309 (2009).
9. G. Garrett, A. A. Rojo, A. K. Sood et al., Science **275**, 1638 (1997).
10. G. A. Garrett, J. F. Whitaker, A. K. Sood, and R. Merlin, Opt. Express **1**, 385 (1997).
11. O. V. Misochko, J. Hu, and K. G. Nakamura, Phys. Lett. A **375**, 4141 (2011).
12. J. Hu, O. V. Misochko, and K. G. Nakamura, Phys. Rev. B **84**, 224304 (2011).
13. H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng et al., Phys. Rev. B **45**, 768 (1992).
14. D. Fausti, O. V. Misochko, and P. H. M. van Loosdrecht, Phys. Rev. B **80**, 161207 (2009).
15. M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and K. Mizoguchi, Phys. Rev. Lett. **88**, 067401 (2002).
16. S. Hunsche, K. Wienecke, T. Dekorsy, and H. Kurz, Phys. Rev. Lett. **75**, 1815 (1985).
17. О. В. Мисочки, М. В. Лебедев, ЖЭТФ **136**, 931 (2009).
18. O. V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, Phys. Rev. Lett. **92**, 197401 (2004).
19. O. V. Misochko, M. Hase, K. Ishioka, and M. Kitajima, Phys. Lett. A **321**, 381 (2004).
20. T. E. Stevens, J. Kuhl, and R. Merlin, Phys. Rev. B **65**, 144304 (2002).
21. М. В. Лебедев, О. В. Мисочки, ФТТ **51**, 1843 (2009).
22. О. В. Мисочки, ЖЭТФ **150**, 337 (2016).
23. A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton, Phys. Rev. Lett. **73**, 3243 (1994).
24. T. Pfeifer, W. Kütt, and H. Kurz, Phys. Rev. Lett. **69**, 3248 (1992).
25. В. П. Шляих, *Квантовая оптика в фазовом пространстве*, Физматлит, Москва (2005).
26. O. V. Misochko and E. Y. Sherman, Physica C: Superconductivity **222**, 219 (1994).
27. M. E. Tuckerman, *Statistical Mechanics: Theory and Molecular Simulation*, Oxford Univ. Press, USA (2010).
28. Л. А. Фальковский, УФН **94**, 3 (1968).
29. Б. С. Эдельман, УФН **123**, 257 (1977).
30. R. E. Peierls, *More Surprises in Theoretical Physics*, Princeton Univ. Press, New Jersey (1991), p. 84.
31. A. B. Shick, J. B. Ketterson, D. L. Novikov, and A. J. Freeman, Phys. Rev. B **60**, 15484 (1999).
32. P. Tangney and S. Fahy, Phys. Rev. B **65**, 054302 (2002).

33. S. Fahy and D. A. Reis, Phys. Rev. Lett. **93**, 109701 (2004).
34. A. S. Pine and G. Dresselhaus, Phys. Rev. B **4**, 356 (1971).
35. O. V. Misochko, M. V. Lebedev, H. Shaeffer, and T. Dekorsy, J. Phys.: Condens. Matter **19**, 406220 (2007).
36. D. Boschetto, E. G. Gamaly, A. V. Rode et al., Phys. Rev. Lett. **100**, 027404 (2008).
37. O. V. Misochko, M. Kitajima, and K. Ishioka, Phys. Rev. Lett. **102**, 029701 (2009).
38. O. V. Misochko and M. V. Lebedev, Phys. Rev. B **94**, 184307 (2016).
39. О. В. Мисочко, ЖЭТФ **150**, 337 (2016).
40. P. G. Klemens, Phys. Rev. **148**, 845 (1966).
41. M. Hase, K. Ushida, and M. Kitajima, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 024708 (2015).
42. M. Hase, K. Ishioka, M. Kitajima et al., Appl. Phys. Lett. **76**, 1258 (2000).
43. M. Hase and M. Kitajima J. Phys.: Condens. Matter **22**, 073201 (2010).
44. P. J. Carroll and J. S. Lanin, Phys. Rev. B **27**, 1028 (1983).
45. J. S. Lannin, J. M. Calleja, and M. Cardona, Phys. Rev. B **12**, 585 (1975).