

利用干涉探测技术对相干声子的研究*

李玉琼¹, 孙真荣², 王宇飞², 王祖赓²

(1 上海理工大学 理学院, 上海 200093)

(2 华东师范大学 物理系 光谱学与波谱学教育部重点实验室, 上海 200062)

摘 要:利用带有环形回路的干涉探测装置,研究了光程差精确为零时参考光和探测光的相干振荡信号,对数据的拟合给出了相干声子诱导的折射率相关变化.由信噪比较高的反射率相位变化信号,不仅清楚地辨别出铝膜中的四种相干声子模式,还分辨出声子回波信号.

关键词:非线性光学;折射率变化;相干声子;声子回波

中图分类号:O484.4+1

文献标识码:A

文章编号:1004-4213(2008)02-0256-4

0 引言

脉宽小于声子振动周期的超快激光与物质作用,可在样品中产生相干激发声子,而相干声子在样品内的传播则会使样品的反射率和折射率都发生微小的变化^[1-3].利用标准的泵浦探测技术和通常的干涉探测方法,可以推出样品反射率的有关变化,由其时间演化规律可以推出相干声子的若干性质,如声子的频率、衰减常量、激发机制以及折射率的变化等.迄今为止,运用标准的泵浦探测技术和通常的干涉探测方法,人们已经在多种物质(如 GaAs^[4], GaAs-AlAs^[5], YBa₂Cu₃O_{6+x} 膜^[6] Sb, Bi, Te 等金属^[7]和 Ni, Cr 等过渡金属^[8])中对相干声子诱导的反射率变化进行了研究,然而由于信号的信噪比较低,运用这两种方法探测相干声子显得比较困难,都不能直接给出样品折射率的有关变化.

本文利用经过改进的干涉探测装置^[9],使参考

光和探测光的光程差精确为零,通过研究两者的相干振荡信号,得到了样品(铝膜)折射率的有关变化;同时由于光程差为零时参考光和探测光的相干信号最强,由信噪比较高的反射率相位变化信号,不仅清楚地辨别出了铝膜中四种相干声子模式,同时还分辨出了声子回波信号.

1 实验装置

实验装置如图1.所用的光源是中心波长为 800 nm、脉宽约为 40 fs 的被动锁模钛宝石脉冲激光器(Spectra-Physics Spitfire amplifier).用分束片将激光分成两束,其中一束经 BBO 晶体倍频后作为泵浦光聚焦在样品铝膜上,其光路中的延时线可由步进电机来控制泵浦光到达样品的时间;另一束光经二分之一波片($\lambda/2$)后由无偏振分束镜(NPBS)取出其中的一部分(称为参比光)用以差分探测,剩下部分由第一个偏振分束镜(PBS₁)分为

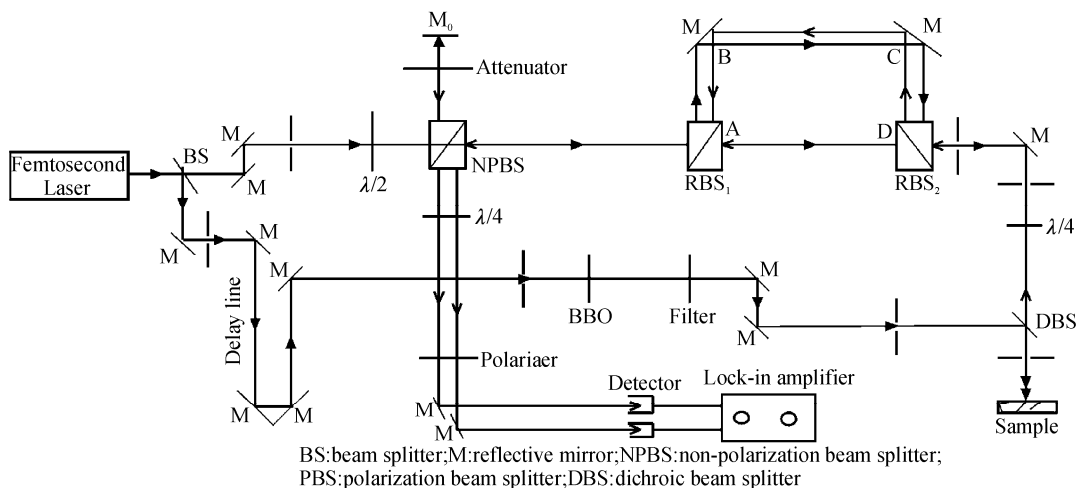


图 1 实验装置

Fig. 1 Experimental setup

垂直偏振和水平偏振的两束光,分别称为参考光和探测光.参考光经较短的光路 AD,而探测光经较长的光路 ABCD(环形光路)到达第二个偏振分束镜

* 上海理工大学博士启动基金(X732)资助

Tel: 021-65335359 Email: liyuqiong138@163.com

收稿日期: 2006-04-24

(PBS₂)处,两束光经过一四分之一波片(45°方向)后,与泵浦光共线入射在样品上。

在这种设有环形回路的干涉探测装置中,由样品反射回来的参考光再次通过四分之一波片后不再沿原路 AD 返回,而是经过光路 ABCD 返回.反射回来的探测光则经过光路 AD 返回至第一个偏振分束棱镜(PBS₁)处,此时这两束光所经历的总光程是完全相等的.光程差为零的参考光和探测光由 NPBS 反射,并经第二个四分之一波片和由偏振片(与水平方向呈 45°)检偏后发生干涉,即可得到强相干振荡信号.上述光信号及用于差分探测的参考光分别由两个探测器探测并由锁向放大器进行差分处理,从而可给出干涉信号随探测光相对泵浦光的延迟时间的变化规律.实验中旋转第二个 1/4 波片,即可分别测得 $\Psi = 0^\circ$ 和 $\Psi = 90^\circ$ 时的信号(Ψ 为波片的快轴与 \hat{y} 轴的夹角, \hat{y} 轴方向竖直向上)。

2 结果和讨论

上述设有环形回路的干涉探测装置,使得参考光和探测光在光程差精确为零时产生干涉,此时的相干信号最强,从而使相干声子的探测变得较为容易.在以前的工作中,曾有人运用该装置测量了金膜等的反射率变化.本实验发现,除了反射率变化外,运用该装置还可直接给出相干声子诱导的薄膜折射率的有关变化。

泵浦光在到达薄膜表面时相干激发声子,相干声子则以波包形式在铝膜内传播,从而使样品的折射率发生了微小变化.由于参考光始终在泵浦光之前到达样品,而探测光在泵浦光之后到达样品,所以探测光和参考光虽然由同一介质反射,却只有探测光能够感知折射率的变化 $\Delta n_c = \Delta n - i\Delta k$ (Δn_c 表示复折射率的变化, Δn 表示折射率实部的变化, Δk 表示折射率虚部的变化).经样品反射后可测得由参考光和探测光之间所产生的干涉信号强度随着探测光相对泵浦光的延迟时间的改变,由此可进一步推出样品的折射率变化。

考虑两个具有固定延迟时间 T_0 的探测光和参考光,可表示为^[3]

$$E_{\text{pr}}(t) = E(t) \exp(i\omega_0 t) \quad (1)$$

$$E_{\text{ref}}(t) = E(t + T_0) \exp[i\omega_0(t + T_0)] \quad (2)$$

式中 $E(t)$ 是一复函数, ω_0 表示中心角频率.两个脉冲经傅里叶变换在频谱区域里可表示为

$$F[E_{\text{pr}}(t) + E_{\text{ref}}(t)] = E(\omega - \omega_0) \cdot [1 + \exp(-i\omega T_0)] \quad (3)$$

式中 $E(\omega) \equiv F[E(t)]$.通过样品后的探测光通常可表示为

$$E'_{\text{pr}}(t) = 1/2\pi \int d\omega E(\omega - \omega_0) \exp \cdot \{i\omega[t - nL/c + ik/c]\} \quad (4)$$

式中 L 是介质厚度, c 是光速, $n_c(\omega) = n - ik$ 是介质的复折射指数.经过傅里叶变换后可表示为

$$E'_{\text{pr}}(\omega) = F[E'_{\text{pr}}(t)] = E(\omega - \omega_0) \exp \cdot \{[-in - k]\omega L/c\} \quad (5)$$

由于参考光和探测光是由同一介质反射,所以在频谱区域里参考光可表示为

$$E'_{\text{ref}}(\omega) = E(\omega - \omega_0) \exp \{i\omega T_0 - [in(\omega) - k(\omega)]\omega L/c\} \quad (6)$$

虽然探测光和参考光由同一介质反射,却只有探测光能够感知泵浦光诱导的折射率变化 ($\Delta n_c = \Delta n - i\Delta k$),这样由介质反射后的探测光在频谱区域里就表示为

$$E''_{\text{pr}}(\omega) = F[E''_{\text{pr}}(t)] = E_{\text{pr}}(\omega) \exp \cdot \{[-i\Delta n - \Delta k]\omega L/c\} \quad (7)$$

于是反射的探测光和参考光的干涉信号在频谱区域里为^[3]

$$I = |E''_{\text{pr}}(\omega) + E'_{\text{ref}}(\omega)|^2 \propto 1 + \exp[-2\Delta K\omega] + 2\exp[-\Delta K\omega] \cos \omega[T_0 - \Delta N] \quad (8)$$

式中 $\Delta K = \Delta kL/c$, $\Delta N = \Delta nL/c$, L 是薄膜的厚度, c 是光速, T_0 是探测光相对参考光的固定延迟时间。

在通常的干涉探测方法中, T_0 很难精确稳定在零的位置.由于因子 $\cos[\omega T_0 - \Delta N]$ 的存在,即使在零的附近只有很小的扰动都会引起信号的强烈起伏,这样就很难精确测量 ΔK 和 ΔN 的数值.在本实验中,运用环路 ABCD 使探测光和参考光在到达探测器时经历相同的光程,即参考光原来超前 T_0 到达样品,反射后 T_0 到达探测器过程中多用了 T_0 时间,这样,在到达探测器时,参考光在在频谱区域里可表示为

$$E'_{\text{ref}}(\omega) = E(\omega - \omega_0) \exp \{i\omega[T_0 - T_0] - [in(\omega) - k(\omega)]\omega L/c\} = E(\omega - \omega_0) \exp \cdot \{-[in(\omega) - k(\omega)]\omega L/c\} \quad (9)$$

于是在探测器处,探测光和参考光的干涉信号

$$I \propto 1 + \exp[-2\Delta K\omega] + 2\exp \cdot [-\Delta K\omega] \cos \omega[-\Delta N] \quad (10)$$

实验测得的信号如图 2(a),其傅里叶转换如 2(a)插图.从中可清楚地看到两束光干涉引起的振荡.利用式(10)对实验数据进行拟合(2(a)插图中的实曲线为拟合曲线),可得到: $\Delta K = \Delta kL/c \approx 4.5 \times 10^{-14}$ s 和 $\Delta N = \Delta nL/c \approx 4.2 \times 10^{-14}$ s.

由参考光和探测光的干涉信号还可给出薄膜的反射率变化,由此可以进一步得到参与相干过程的声子模式和声子波包的形状.如果用 r 表示样品的

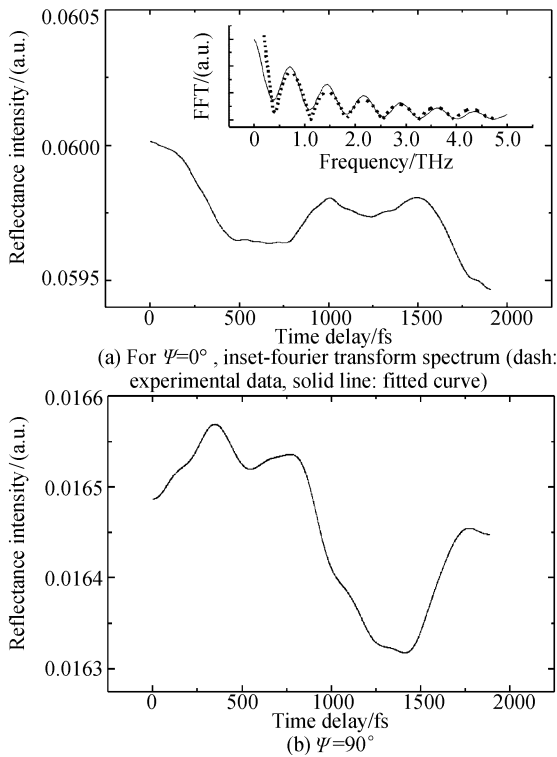


图2 反射光强随探测光相对泵浦光的延迟时间的变化
Fig. 2 Reflectance intensity verse delay time between the pump and the probe pulses

复反射率, r_0 表示样品的反射率幅度, ρ 和 $\delta\phi$ 分别代表相干声子诱导的反射率幅度相对变化和相位变化, 则当 $\psi = 0^\circ$ 和 $\psi = 90^\circ$ 时, 参考光和探测光的干涉信号可分别表示为^[9]

$$I_0 = (E_1^2 + E_2^2)r_0^2 + 2r_0^2 E_1 E_2 \rho - 2r^2 E_1 E_2 \delta\phi \quad (11)$$

$$I_{90} = (E_1^2 + E_2^2)r_0^2 + 2r_0^2 E_1 E_2 \rho + 2r^2 E_1 E_2 \delta\phi \quad (12)$$

式中, E_1 和 E_2 分别表示参考光和探测光的场强. 对式(11)和式(12)分别进行相加或相减就可以得到反射率的幅度相对变化 ρ 和相位变化 $\delta\phi$.

图2(a)和2(b)分别给出了在 $\psi = 0^\circ$ 和 $\psi = 90^\circ$ 时实验所测得的干涉信号随延迟时间的变化. 对2(a)和2(b)这两组数据进行相加处理, 得到反射率幅度相对变化 ρ 随延迟时间的演化情况(如图3). 可以看出, ρ 的变化包含两部分: 指数衰减部分和振荡部分, 其中振荡部分是由声子相干涉的结果. 对其进行傅里叶变换就可给出相干声子模式^[10]. 由图3插图所示为傅氏转换结果, 可分辨出铝膜中的四种相干声子模式 P_1 、 P_2 、 P_3 和 P_4 , 对应频率分别为 8, 14, 20, 和 26 THz.

对这两组数据进行相减处理, 可得到如图4插图所示的反射率相位变化 $\delta\phi$ 随延迟时间的演化情况. 可以看出, $\delta\phi$ 随延迟时间大幅振荡, 该振荡是声子干涉的结果, 对其进行傅里叶转换, 可得到如图3的频域内声子波包的形状^[11]. 值得指出的是, 由于信噪比好, 除了声子波包的振荡形状外, 还清楚地看

到了在一定时间后相似的振荡结构又重复出现, 即分辨出了声子回波信号(更高次的回波信号已很弱).

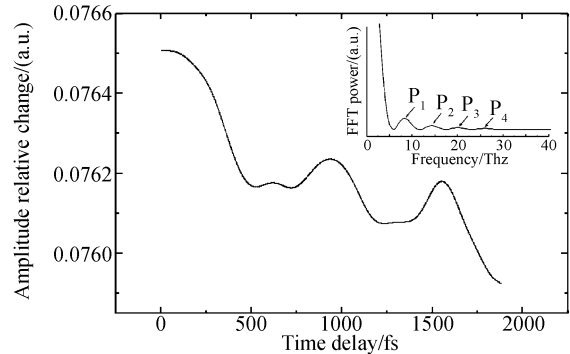


图3 反射率幅度相对变化随延迟时间的变化, 其中插图为其傅里叶变换

Fig. 3 Amplitude relative change ρ verse the time delay and the inset shows its Fourier transform spectrum

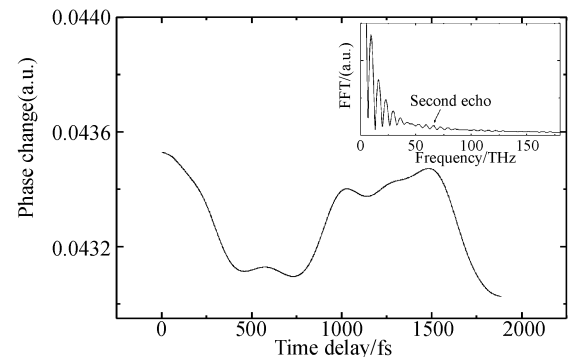


图4 反射率相位变化随延迟时间的变化, 其中插图为其傅里叶变换

Fig. 4 Phase change $\delta\phi$ verse the time delay and the inset shows its Fourier transform spectrum

3 结论

本文运用经过改进的干涉探测装置, 使参考光和探测光在到达探测器时所经历的光程相同, 通过研究光程差精确为零时参考光和探测光的相干信号, 直接给出了相干声子诱导的样品折射率的有关变化. 同时由信噪比较好的反射率变化信号还可分辨出声子回波信号.

参考文献

- [1] MERLIN R. Generation coherent THz phonons with light pulses[J]. *Soli Stat Commu*, 1997, **102**(2-3): 207-220.
- [2] PFEIFER T, KUTT W, KURZ H, et al. Generation and detection of coherent optical phonons in germanium[J]. *Phys Rev Lett*, 1992, **69**(2): 3248-3251.
- [3] TOKUNAGA E, TERASAKI A, KOBAYASHI T. Frequency-domain interferometer for femtosecond time-resolved phase spectroscopy[J]. *Opt Lett*, 1992, **17**(16): 1131-1133.
- [4] DEKORS Y T, PFEIFER T, KUÜTT W A, et al. Subpicosecond carrier transport in GaAS surface-spsce-charge fields[J]. *Phys Rev B*, 1993, **47**(7): 3842-3848.
- [5] YAMAMOTO A, MISHINA T, MASUMOTO Y. Coherent oscillation of zone-folded phonon modes in GaAS-AlAs

- superlattices[J]. *Phys Rev Lett*, 1994, **73**(1-5):740-743.
- [6] CHWALEK J M, UHER C, WHITAKER J F, *et al.* Subpicosecond time-resolved studies of coherent phonon oscillations in thin-film $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ($x < 0.4$) [J]. *Appl Phys Lett*, 1991, **58**(6-10):980-983.
- [7] CHENG T K, VIDAL J, ZEIGER H J, *et al.* Mechanism for displacive excitation of coherent phonons in Sb, Bi, Te, and Te_2O_3 [J]. *Appl Phys Lett*, 1991, **59**(16):1923-1925.
- [8] SAITO T, MATSUDA O, WRIGHT O B. Picosecond acoustic phonon pulse generation in nickel and chromium[J]. *Phys Rev B*, 2003, **67**(20):205421-1-205421-7.
- [9] DAVID H. HURLEY, OLIVER B W. Detection of ultrafast phenomena by use of a modified Sagnac interferometer [J]. *Opt Lett*, 1999, **24**(18):1305-1307.
- [10] QIAN W, YAN H, WANG J J, *et al.* Observation of coherent phonons in silver nanoparticles embedded in BaO thin films [J]. *Appl Phys Lett*, 1999, **74**(13):1806-1808.
- [11] WRIGHT O B. Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver[J]. *Phys Rev B*, 1994, **49**(14):9985-9988.

Study on Coherent Phonons in Aluminum Film by Interferometric Probing Technique

LI Yu-qiong¹, SUN Zhen-rong², WANG Yu-fei², WANG Zu-geng²

(1 College of Science, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

(2 Key Laboratory of Optical and Magnetic Resonance Spectroscopy, and Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

Received date: 2006-04-24

Abstract: Using interferometric probing equipment with a ring loop, the coherent oscillation between the reference and probe pulses with the same optical distance is studied and the refractivity index changes is given. Moreover, through the signal of reflection index changes, phonon echo and four coherent phonon modes are distinguished in aluminum film.

Key words: Nonlinear optics; Refractivity index change; Coherent phonon; Phonon echo



LI Yu-qiong was born in 1968. She received her Bachelor's degree from Henan Normal University in 1989 and received her Master's degree from Henan Normal University in 2000. She is currently pursuing her Ph. D. degree in Key Laboratory of Optical and Magnetic Resonance Spectroscopy, and Department of Physics, East China Normal University. Her current research interests include femtosecond coherent spectroscopies and femtosecond coherent control.