

# Pokroky matematiky, fyziky a astronomie

---

Petr Malý

Ultrarychlá optická spektroskopie

*Pokroky matematiky, fyziky a astronomie*, Vol. 43 (1998), No. 2, 107--118

Persistent URL: <http://dml.cz/dmlcz/137537>

## Terms of use:

© Jednota českých matematiků a fyziků, 1998

Institute of Mathematics of the Academy of Sciences of the Czech Republic provides access to digitized documents strictly for personal use. Each copy of any part of this document must contain these *Terms of use*.



This paper has been digitized, optimized for electronic delivery and stamped with digital signature within the project *DML-CZ: The Czech Digital Mathematics Library* <http://project.dml.cz>

ANDREW BEAL je nadšenec pro teorii čísel žijící v Dallasu ve státě Texas. Vyrůstal v Lansingu v Michiganu a studoval na Michigan State University. Mimořádně se zajímá o některé Fermatovy práce a opravdu mnoho hodin strávil přemýšlením o Velké Fermatově větě. Věří, že Fermat skutečně měl poměrně jednoduchý důkaz své velké věty, který nebyl založen na geometrii, a pokračuje v jeho hledání. Věří také, že Fermat měl metodu pro řešení Pellovy rovnice, která zůstává neznámá a jež byla funkcí čtverců, jejichž součet se rovná koeficientu.

Andrewovi je 44 let a se svou ženou Simonou mají pět dětí. Andrew je zakladatel, předseda a vlastník Beal Bank, která je největší bankou v Dallasu v rukou místního vlastníka. Nedávno se také stal zakladatelem, předsedou ředitelské rady a vlastníkem Beal Aerospace, společnosti, která projektuje a staví raketu další generace pro vypouštění umělých družic na dráhu kolem Země.

Společnosti Beal Bank a Toyota a deník Dallas Morning News jsou hlavními sponzory veletrhu Dallas Regional Science and Engineering Fair. Beal Bank je také hlavním sponzorem soutěže Dallas Area Odyssey of the Mind Competition. Andrew Beal byl a je hlavním donátorem výuky matematiky na University of North Texas. Prostřednictvím stipendií významně podporuje postgraduální studenty a studenty na Texas Academy of Mathematics and Science.

# Ultrarychlá optická spektroskopie

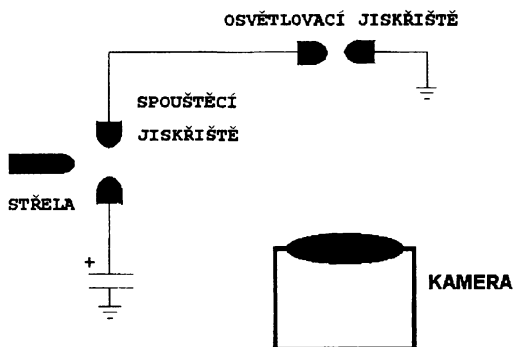
*Petr Malý, Praha*

## 1. Úvod

Ultrarychlou optickou spektroskopií je možné chápat jako pokračování snahy člověka zachytit (zobrazit) rychle se pohybující předměty a změřit například rychlost jejich pohybu — určením jejich okamžité polohy v určitých časových okamžicích. V této souvislosti lze připomenout zkoumání Galilea Galileiho, který určoval doby kmitu kyvadel pomocí tepu svého srdce, nebo z doby méně vzdálené práce Ernsta Macha při vyšetřování letu střel [1]. V jednom z jeho měřicích uspořádání (viz obr. 1) letící střela sepnula jiskřiště, kterým bylo sepnuto vysoké napětí na druhé jiskřiště, kde přeskočila jiskra, jejíž světlo osvětlilo na okamžik scénu. Střela tak mohla být v přesně daném okamžiku (závislém na délce vedení mezi jiskřišti) své dráhy vyfotografována fotoaparátem s otevřenou závěrkou. Analogická uspořádání užívající elektrooptickou závěrku místo jiskry k expozici dovolila dosáhnout na počátku šedesátých let časového rozlišení  $\approx 10^{-9}$  s. Současná ultrarychlá spektroskopie dosahuje rozlišení  $\approx 10^{-14}$  s,

---

Doc. RNDr. PETR MALÝ, CSc. (1955), pracuje na katedře chemické fyziky a optiky MFF UK, Ke Karlovu 3, 121 16 Praha 2.



Obr. 1. Uspořádání k fotografování letících střel podle E. Macha, podle Z. Pírko: Fotografie letících střel, Rozhledy Matematicko-přírodovědné, roč. 16, 1936–7, str. 37.

místo jisker užívá ultrakrátkých optických pulzů, ale princip měření je založen jako v již popsaném uspořádání na přesné synchronizaci sledovaného „pohybu“ a „expozice“ spojené s dopadem optického (sondovacího) pulzu. Zpravidla se ovšem nezaznamenává poloha, ale časový vývoj optických vlastností studovaného objektu poté, co na něj působil optický pulz (excitační). Dynamiku studovaných jevů je možné měřit změnou příslušného časového zpoždění mezi excitačním a sondovacím pulzem, jak bude podrobně popsáno dále.

Světlo urazí za 1 s  $3 \times 10^{10}$  cm, tedy za jednu pikosekundu  $300 \mu\text{m}$ . Časově rozlišená spektroskopie dovoluje dnes studovat děje s časovým rozlišením lepším než 10 fs ( $10^{-14}$  s). Tato doba odpovídá několika kmitům vlny v optickém oboru (vlnové délce 500 nm odpovídá perioda  $\approx 1,7$  fs). V tomto časovém intervalu světlo urazí ve vakuu dráhu  $3 \mu\text{m}$ . Je tedy zřejmé, že ultrarychlá spektroskopie je vhodná pro zkoumání mikroskopických dějů. Skutečně, řada základních procesů v mikrosvětě probíhá na femtosekundové časové škále. Například doba oběhu elektronu v Bohrově modelu atomu vodíku<sup>1)</sup> je  $\approx 0,15$  fs na dráze odpovídající kvantovému číslu  $n = 1$  a  $\approx 20$  fs pro  $n = 5$ . Jako další příklad můžeme uvést kmity atomu v pevné látce<sup>2)</sup> (fonony), jejichž typická perioda je 100 fs.

Budeme se věnovat ultrarychlé spektroskopii, ovšem použití ultrakrátkých optických pulzů je v současné době velmi široké a v blízké budoucnosti se počítá s jeho rychlým rozvojem v mnoha oblastech. Připomeňme zde ultrarychlé přenosy informace, generaci ultrakrátkých pulzů rentgenového nebo terahertzového pásma, nebo možnost získat vysoké špičkové výkony, resp. intenzity elektrického pole v ultrakrátkém optickém pulzu. Tak 1 mJ energie ( $2,5 \times 10^{15}$  fotonů s vlnovou délkou 500 nm) pulzu délky 100 fs představuje špičkový výkon 10 GW, který při fokusaci do svazku o průměru  $10 \mu\text{m}$

<sup>1)</sup> V rámci Bohrova modelu atomu vodíku se dá doba oběhu psát jako  $T = 4n^3 h^3 \epsilon_0^2 / (e^4 m_e)$ , kde  $n$  je hlavní kvantové číslo,  $e$ , resp.  $m_e$  jsou náboj, resp. hmotnost elektronu,  $h$  Planckova konstanta a  $\epsilon_0$  je permitivita vakua. Viz např. [2].

<sup>2)</sup> Perioda kmity  $T$  je spojena s energií fononu  $E = h/T$ , zmíněných  $T \approx 100$  fs odpovídá  $E \approx 41$  meV, longitudinální optický fonon v GaAs má energii  $\approx 35$  meV.

vede k výkonové hustotě  $13 \times 10^{15} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ , což odpovídá intenzitě elektrického pole  $\approx 2 \times 10^9 \text{ V/cm}$  srovnatelné s intenzitou pole uvnitř atomů.

Na katedře chemické fyziky a optiky Matematicko-fyzikální fakulty UK se časově rozlišená spektroskopie rozvíjí již více než patnáct let. Měření fotosyntetických a především polovodičových materiálů byla prováděna v pikosekundové laserové laboratoři, jejíž celé vybavení bylo postaveno na katedře chemické fyziky a optiky ve spolupráci s Fyzikálním ústavem UK. Její pikosekundový laserový systém s následnými nelineární optickými transformacemi vlnové délky dovoluje generovat jednotlivé pikosekundové ( $\approx 25 \text{ ps}$ ) optické pulzy ve spektrálním intervalu 266–3000 nm [3]. V roce 1996 byla v rámci programu Fondu rozvoje VŠ Rady vysokých škol laboratoř pro časově rozlišenou spektroskopii inovována, což dovoluje posunout hranici časového rozlišení téměř o tři řády: v současné době je v provozu femtosekundová laboratoř [4] umožňující provádět experimenty s časovým rozlišením  $\approx 70 \text{ fs}$  ve spektrálním intervalu 370 až 500 nm a 740–1000 nm.

V tomto článku připomeneme metody generace ultrakrátkých optických pulzů a popíšeme některé metody časově rozlišené spektroskopie.

## 2. Generace ultrakrátkých optických pulzů

Ultrakrátké optické pulzy jsou generovány lasery, které pracují v režimu synchronizace modů [5]. Mody jsou stacionární stavy elektromagnetického pole, které vyhovují okrajovým podmínkám daného rezonátoru — tzv. podélné mody se liší (celočíselným) počtem polovln na délku rezonátoru  $L$ . Frekvenční spektrum modů je ekvidistantní s rozdílovou frekvencí  $\Delta\nu = c/(2L)$  (viz obr. 2a). Mohou přitom oscilovat pouze ty mody, jejichž zesílení přesáhne ztráty v rezonátoru (obr. 2b). Časový průběh pole  $p$ -tého modu  $E_p$  v určitém místě rezonátoru lze popsat v komplexní symbolice

$$E_p(t) = A_p \exp(2\pi i \nu_p t + \Phi_p), \quad (1)$$

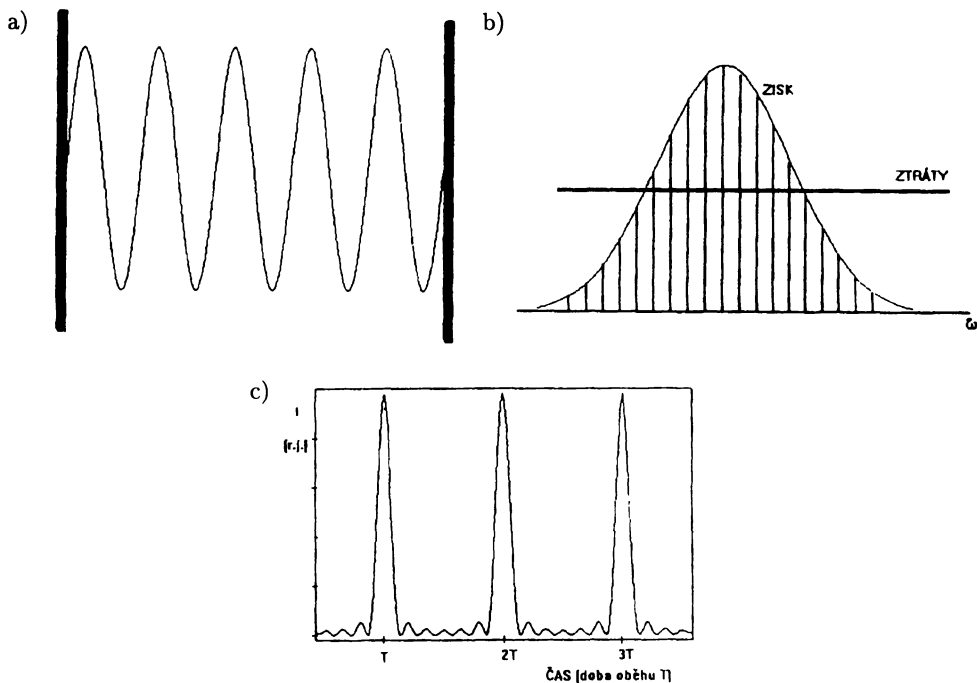
kde  $A_p$  je amplituda,  $\nu_p$  je frekvence a  $\Phi_p$  fáze  $p$ -tého modu. Předpokládejme, že osciluje  $N$  modů (předpokládáme zde  $N$  liché), jejich index  $p = -n, \dots, n$ , kde  $N = 2n + 1$ . Pak frekvence  $\nu_p = \nu_0 + p \Delta\nu$ . Výsledné pole vzniká interferencí všech oscilujících modů:

$$E(t) = \sum_{p=-n}^n E_p(t). \quad (2)$$

Intenzita pole je pak

$$I(t) \sim E(t)E^*(t). \quad (3)$$

V případě, kdy jednotlivé mody oscilují nezávisle, s různými amplitudami a fázemi (obecně časově závislými), je celkové pole nepravidelnou funkcí času. Jsou-li ovšem amplitudy jednotlivých modů a jejich vzájemné fázové rozdíly konstantní, jsou-li tedy mody synchronizovány, je časový průběh intenzity dobře definován, laser pracuje v režimu *synchronizace modů* (anglicky *mode-locking*). Speciálním případem tohoto



Obr. 2. Ilustrace režimu synchronizace módů v laseru.

a) Laserový rezonátor má délku  $L$ , podélné módy jsou určeny podmínkou, že mají uzly na zrcadlech.

b) Oscilovat mohou jen módy ze spektrálního intervalu, kde zesílení převažuje nad ztrátami. Ve femtosekundových laserech jich je řádově 10 000.

c) Intenzita pole v místě výstupního zrcadla jako funkce času, viz (4), pro  $N = 7$ .

režimu může být situace, kdy amplitudy oscilujících módů jsou si navzájem rovny  $A_p = A$  a fázový rozdíl mezi sousedními módy je roven nule ( $\Phi_p = \Phi$ ). Pak z (1-3) plyne

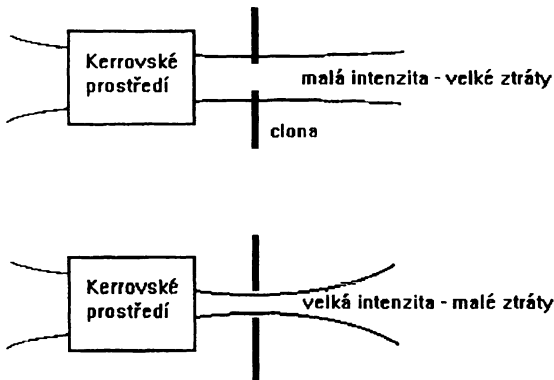
$$I(t) \sim [\sin(N\pi\Delta\nu t) / \sin(\pi\Delta\nu t)]^2. \quad (4)$$

Tato funkce je znázorněna na obr. 2c pro  $N = 7$ . Hlavní maxima nastávají v daném místě periodicky, s periodou rovnou době oběhu světla v rezonátoru (hlavní maximum je dáno podmínkou nulovosti jmenovatele), interference synchronizovaných módů tedy vede ke vzniku pulzu uvnitř rezonátoru laseru. Tento pulz obíhá mezi zrcadly rezonátoru, polopropustné výstupní zrcadlo propustí vždy část pole ven a na výstupu laseru se objevuje sled ultrakrátkých pulzů. Z vlastností funkce (4) vyplývá, že šířka pulzu je nepřímo úměrná celkovému počtu módů  $N$ , resp. celkové šířce spektra  $\delta\nu = N\Delta\nu$  oscilujících módů<sup>3)</sup>. Vztah mezi spektrální šířkou a časovou délkou optického pulzu

$$\delta\nu \delta t \approx 1 \quad (5)$$

<sup>3)</sup> Časovou šířkou pulzu se myslí zpravidla jeho plná šířka v polovině maxima. Zde ji lze odhadnout jako časový interval  $\delta t$  mezi hlavním maximem a následujícím nulovým minimem, tedy  $N \delta t \Delta\nu \pi = \pi$ .

plyne ovšem obecně z Fourierovy transformace pro libovolný tvar pulzu, pro případ časově proměnné fáze je levá strana větší než 1. Odtud vyplývá, že ultrakrátké pulzy mají široké spektrum. Nejkratší získané optické pulzy měly délku  $\sim 6$  fs se střední vlnovou délkou 600 nm, poměr odpovídající spektrální šířky  $\delta\nu$  k nosné frekvenci činí  $\delta\nu/\nu \approx \frac{1}{3}$ . Při studiu vlastností látek je nutné zpravidla volit kompromis mezi postačujícím rozlišením spektrálním a časovým.



Obr. 3. Optický Kerrův jev vede k modulaci ztrát v rezonátoru — vyšší intenzita světla vede k větší fokusaci svazku.

Režimu synchronizace modu v laserech se dosahuje zpravidla modulací ztrát rezonátoru laseru — pokud jsou modulovány vnějším signálem, mluví se o *aktivní synchronizaci modů*, pokud jsou ztráty řízeny samotným polem uvnitř rezonátoru, jde o *pasivní modovou synchronizaci*. Na počátku rozvoje technologie laserů generujících ultrakrátké optické pulzy byly lasery s aktivní modovou synchronizací (např. elektrooptický modulátor ztrát v rezonátoru) s délkou generovaných pulzů řádově 100 ps (např. argonový iontový laser). Následovaly (konec sedmdesátých let) pevnolátkové lasery s pasivní synchronizací modů (v rezonátoru se saturabilním barvivem, tj. látkou, jejíž transmisivita roste s intenzitou světla), které generují pulzy délek 5–50 ps (např. neodymové lasery). Subpikosekundové světelné pulzy s délkou  $\geq 50$  fs mohou být získány z barvivových laserů s pasivní modovou synchronizací, rozvíjených zejména v osmdesátých letech. Devadesátá léta jsou spojena s rozvojem laditelných pevnolátkových laserů (ionty přechodných kovů v krystalech), zejména se safírovým laserem  $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ . Optimálního režimu modové synchronizace je zde dosaženo alternativou pasivní modové synchronizace, kdy je modulace ztrát způsobena nerezonančním nelineárně optickým jevem třetího řádu (tzv. Kerrovská synchronizace modů). Pokročil též výzkum vlivů, které se podílejí na formování tvaru pulzu v laserovém rezonátoru a vyvážením automodulace fáze a disperze grupových rychlostí je možné získat pulzy časových délek okolo 10 fs. Princip Kerrovské synchronizace lze vysvětlit podle obr. 3. Kerrovský nelineární optický jev lze chápat jako závislost indexu lomu  $n$  látky na intenzitě světla  $I$  a v prvním přiblížení je možné psát

$$n(I) = n_0 + n_2 I, \quad (5)$$

kde  $n_2$  je nelineární index lomu. Při průchodu svazku světla např. s gaussovským rozdělením intenzity látkou, v níž  $n_2 > 0$ , dochází k tomu, že v místech s vyšší

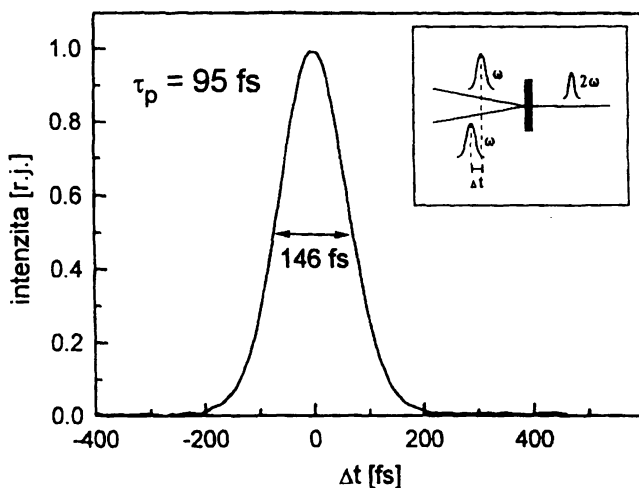
intenzitou (střed svazku) je index lomu větší než v místech s intenzitou nižší. Pro délku látky  $d$  je optická dráha, kterou v látce světlo urazí, rovna  $dn(I)$ , tedy je delší ve středu svazku a prostředí působí jako spojná čočka, která svazek světla fokusuje. Je zřejmé, že tato fokusace bude silnější pro větší intenzitu světla. Takové prostředí v kombinaci se štěrbinou bude působit jako saturabilní absorbér: propustnost poroste s intenzitou světla. Vznikne-li tedy na počátku generace laseru v poli uvnitř rezonátoru jisté maximum intenzity, je díky menším ztrátám při obězích v rezonátoru více zesilováno a vyvine se pulz světla obíhající v rezonátoru.

### 3. Měření časové délky pulzu

Časový profil ultrakrátkého pulzu není možné měřit přímo, např. fotodetektorem a osciloskopem, protože měřené pulzy jsou zpravidla podstatně kratší než časová odezva takového uspořádání (v nejlepším případě řádově 10 ps). K měření časové délky pulzů se proto používají korelační metody. Typické uspořádání využívá generace druhé harmonické frekvence v nelineárním krystalu. Generace druhé harmonické je proces, v němž zaniknou dva fotony frekvence  $\omega$  a vznikne foton dvojnásobné frekvence (tj. proces  $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ ). Při interakci svazků 1 a 2 základní frekvence v nelineárním krystalu je intenzita druhé harmonické [5]:

$$I^{2\omega} \sim I_1^\omega I_2^\omega. \quad (6)$$

Při měření délky pulzu, jak je znázorněno na obr. 4a, je pulz rozštěpen intenzitně na dva (zpravidla  $I_1 = I_2$ ), které jsou vedeny různými drahami a pak společně fokusovány do nelineárního krystalu. Měří se celková energie signálu druhé harmonické v závislosti



Obr. 4. Autokorelační funkce pulzu laseru Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, vloženo je schéma měření.

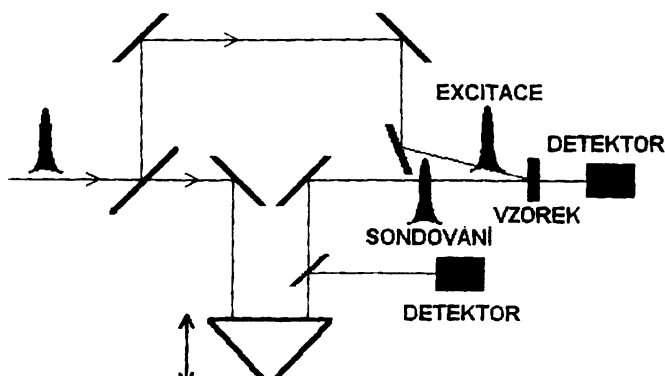
na časovém zpoždění  $\tau$  mezi oběma pulzy v krystalu, které se nastavuje mechanickou změnou optické dráhy jednoho z pulzů. Signál druhé harmonické měřený pomalým detektorem je

$$S^{2\omega}(\tau) \sim \int I^\omega(t)I^\omega(t + \tau) dt, \quad (7)$$

měří se tedy autokorelační funkce intenzity druhého řádu. Například při měření autokorelátořem Spectra Physics model 409 je optická dráha pulzu modulována periodicky rotujícím skleněným hranolem. Na obr. 4b je uvedena autokorelační funkce pulzu vlnové délky 800 nm, jejíž šířka je 146 fs. Pro intenzitní profil pulzu popsany funkcí hyperbolický sekans na druhou ( $\text{sech}^2$ ) tomu odpovídá délka pulzu 95 fs.

#### 4. Vybrané metody ultrarychlé optické spektroskopie

Základem ultrarychlé optické spektroskopie je excitace zkoumaného vzorku excitacním optickým pulzem. Tím je vyvedena látka ze stavu termodynamické rovnováhy. Pak se sleduje, jak se látka do stavu rovnováhy navrácí, přičemž se zaznamenává zejména dynamika jejich optických vlastností.



Obr. 5. Metoda excitace a sondování. Ultrakrátký laserový pulz je rozštěpen na dva: excitacní a sondovací, jejichž vzájemné zpoždění lze nastavit vhodným rozdílem jejich optických drah. Při měření dynamiky absorpčních změn se měří celková energie (tj. pomalým detektorem) v sondovacím pulzu před dopadem a po průchodu vzorkem pro různá časová zpoždění. Vlnová délka excitacního a sondovacího pulzu může být vhodným způsobem transformována.

V široce používané metodě časově rozlišené spektroskopie, metodě *excitace a sondování*, interaguje s látkou i další, sondovací pulz, který jí prochází v určitém okamžiku po excitaci. Interakce s látkou v určitém stavu ovlivňuje vlastnosti sondovacího pulzu a jejich monitorováním v různých časech je možné měřit časový vývoj stavu látky, tedy relaxační a rekombinační procesy, které v ní probíhají. Nejčastěji se sondovacím pulzem zjišťuje propustnost nebo odrazivost látky, může se ovšem měřit např. i rozptyl nebo difrakce sondovacího pulzu nebo změna jeho polarizačního stavu apod.

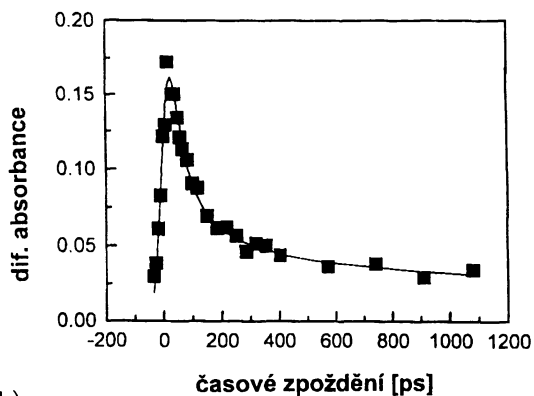


Synchronizace obou pulzů je zpravidla zaručena tím, že jsou oba získány štěpením jednoho laserového pulzu (s případnou následnou transformací vlnové délky). Ve většině případů jsou parametry sondovacího pulzu voleny tak, aby neovlivnil stav látky, zpravidla je jeho energie podstatně menší než energie pulzu excitačního. Sondovací pulz je vůči pulzu excitačnímu zpoždován optickou zpoždovací dráhou. Základní schéma uspořádání pro měření absorpčních změn po excitaci je uvedeno na obr. 5.

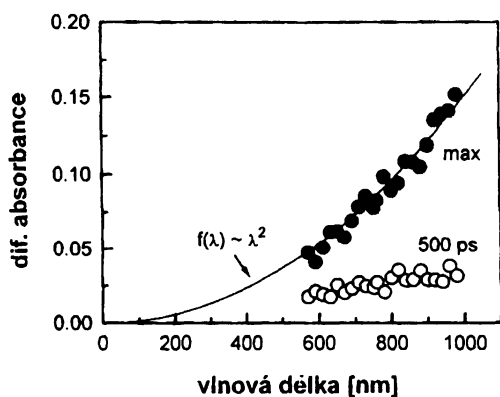
V naší laboratoři pracujeme v pikosekundových měřeních s neodymovým laserem s jednotlivými pulzy a s femtosekundovým safirovým laserem TSUNAMI (Spectra-Physics) s vysokou opakovací frekvencí pulzů. V pikosekundových měřeních můžeme měřit relativní absorpční změny s přesností  $10^{-3}$ , v měřeních femtosekundových s přesností  $10^{-5}$ . Jako ilustrační výsledky uvádíme studium dynamiky fotoexcitovaných nosičů náboje v porézním křemíku. Porézní křemík je materiál, který se těší mimořádné pozornosti v posledních pěti letech. Dá se připravit velmi jednoduše anodickým leptáním krystalického křemíku v roztoku kyseliny fluorovodíkové. Krystalický křemík dominuje současné elektronice, ale je jako polovodič s nepřímým zakázaným pásem s energií  $\approx 1$  eV nevhodný pro optoelektroniku, neboť jeho luminiscence je velmi slabá a v blízké infračervené oblasti. Naproti tomu porézní křemík vykazuje silnou luminiscenci ve viditelné spektrální oblasti při pokojové teplotě. Její fyzikální mechanismus je však i po několikaletém výzkumu nejasný. Ultrarychlá spektroskopie přispívá k jeho pochopení. Porézní křemík je tvořen křemíkovými nanokrystalky s charakteristickými rozměry jednotek nanometrů. Na obr. 6a je uvedena dynamika absorpčních změn na vlnové délce 1064 nm při excitaci 35-pikosekundovým pulzem vlnové délky 532 nm, na obr. 6b spektrální závislost absorpčních změn pro dvě časová zpoždění. Excitační pulz vede k excitaci elektronu do vodivostního pásu uvnitř nanokrystalu křemíku. Sondovací pulz uvedené vlnové délky není v neexcitovaném vzorku absorbován, a proto je pozorován nárůst absorpce, který je dán absorpcí z excitovaných stavů. Z obrázku je zřejmé, že se zde v dynamice absorpce objevují dvě komponenty — jedna rychlá, kterou spojujeme s rekombinací nosičů uvnitř objemu křemíkových nanokrystalů (tzv. bimolekulární rekombinace s charakteristickou dobou dozínání úměrnou počtu excitovaných nosičů náboje), druhá, pomalejší, kterou interpretujeme jako rekombinaci nosičů náboje lokalizovaných v povrchových stavech [6]. Analogické měření s větším časovým rozlišením je na obr. 6c. Zde je vzorek porézního křemíku excitován femtosekundovým pulzem (70 fs, 400 nm) a jeho absorpční změny monitorovány pulzem vlnové délky 800 nm. Ukazuje se, že na počátku dochází k rychlému snížení absorpce, což lze interpretovat jako rychlou relaxaci nosičů ze stavů s velkou energií. Uvedené i další naše výsledky podporují představu, podle níž souvisí silná viditelná luminiscence s rekombinací nosičů náboje v povrchových stavech.

Jiným příkladem ultrarychlé spektroskopie je měření dynamiky fononů, tj. kmitů mřížce, polovodiče pomocí *časově rozlišeného Ramanova rozptylu*. Po excitaci polovodiče intenzivním ultrakrátkým pulzem vhodné vlnové délky jsou excitovány elektrony do vodivostního pásu s jistou kinetickou energií. energii ztrácejí (často se říká, že chladnou) kromě jiného interakcí s kmity mřížce — fonony (zpravidla mříž rozkmitávají, tj. emitují fonony), v polovodičích jako např. GaSb jde o interakci s podélnými optickými fonony. Při dopadu sondovacího pulzu na látku s jistým časovým zpož-

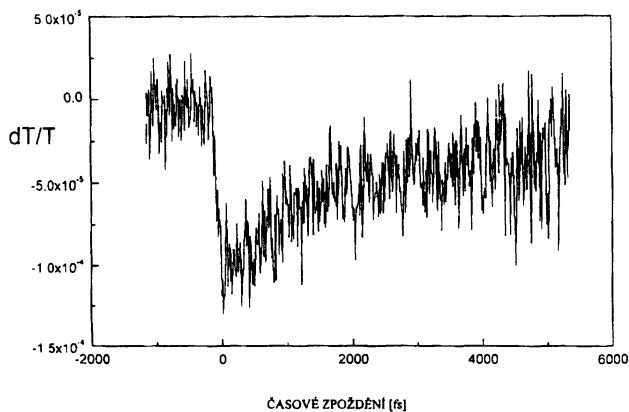
a)



b)



c)



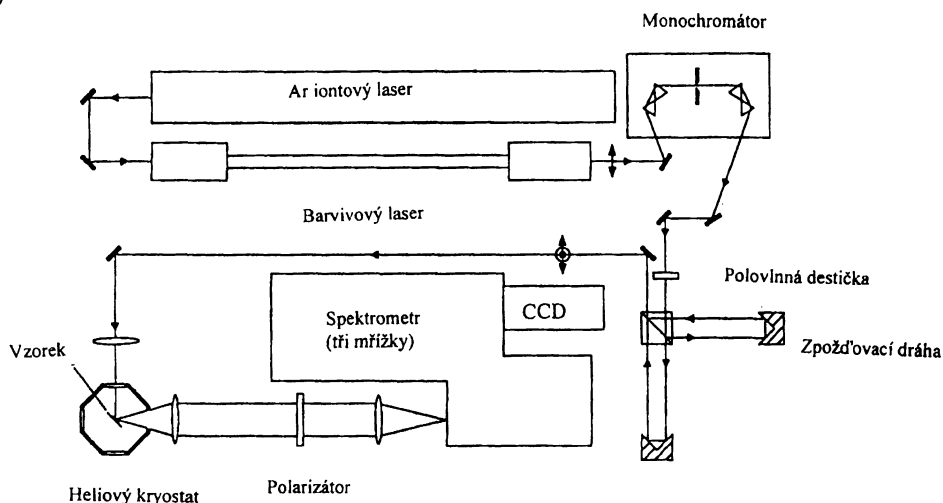
Obr. 6. Přechná absorpce v porezním křemíku.

a) Dynamika absorpčních změn (excitace 532 nm, sondování 1064 nm, pulzy délky 35 ps).

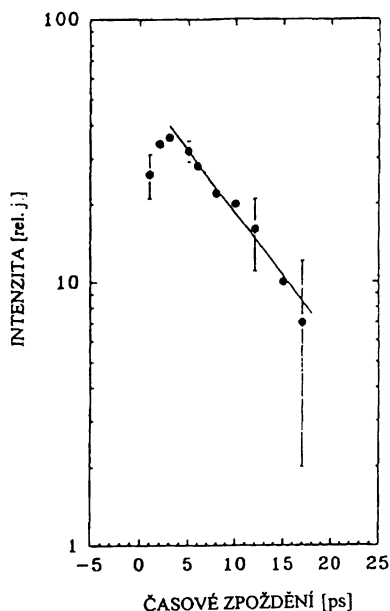
b) Spektrální závislost absorpčních změn pro zpoždění 50 ps a 300 ps. Pro krátké časy je absorpce spojena s nosiči náboje v objemu nanokrystalu (roste se čtvercem vlnové délky), pro delší zpoždění zůstává absorpce spojena s nosiči náboje zachycenými v povrchových stavech.

c) Dynamika absorpčních změn ve femtosekundovém časovém měřítku.

a)



b)



Obr. 7. Dynamika fononů v polovodičích: časově rozlišený Ramanův rozptyl.

a) Experimentální uspořádání. Ultrakrátký pulz délky asi 500 fs je rozštěpen na dva kolmo polarizované svazky, excitační a sondovací, jehož anti-Stokesova komponenta Ramanova rozptylu je měřena.

b) Dynamika počtu fononů v GaSb při teplotě 4 K. Změřená doba života LO fononu je 9 ps.

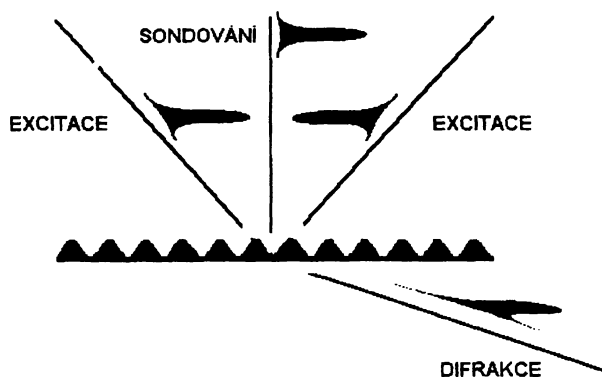
děním může docházet k jeho neelastickému, Ramanovu rozptylu<sup>4)</sup>. Intenzita první anti-Stokesovy složky tohoto rozptylu, kterou lze interpretovat jako současný zánik

<sup>4)</sup> Při Ramanově rozptylu vznikají fotony, jejichž energie je oproti energii dopadajících fotonů posunuta o energii fononu: tzv. 1. Stokesova komponenta  $\hbar\omega_S = \hbar\omega_0 - \hbar\omega_{LO}$ , a 1. anti-Stokesova komponenta  $\hbar\omega_{AS} = \hbar\omega_0 + \hbar\omega_{LO}$ . Pro fotony, resp. fonony musí být též zachována celková hybnost, což vede k jistým směrovým vlastnostem rozptýleného světla. Například pro daný směr dopadajícího a rozptýleného světla se rozptylu mohou účastnit pouze fonony, jejichž hybnost leží v určitém směru [5].

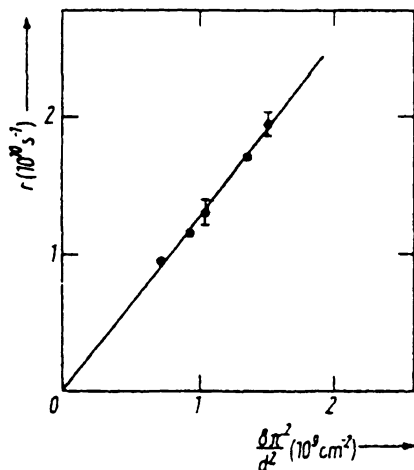
dopadajícího fotonu a vhodného fononu, je úměrná počtu těchto fononů. Měřením závislosti intenzity této komponenty na zpoždění mezi excitací a sondováním lze studovat dynamiku fononů: tedy nejprve nárůst jejich počtu díky tomu, že excitované nosiče náboje ztrácejí svou energii emisí fononů, a pak úbytek jejich počtu v závislosti na jejich době života, která v případě GaSb souvisí zejména s rozpadem optických fononů na fonony akustické. Na obr. 7a je uvedeno schéma uspořádání popsaného měření a na obr. 7b výsledek měření pro vzorek GaSb při teplotě 4 K [7]. Změřená doba života fononu je v tomto případě 9 ps.

Další z často používaných metod je uspořádání přechodné mřížky. Jedna z jeho možností je na obr. 8a. Dva excitační pulzy se překrývají prostorově i časově na vzorku a interferují. Pokud jejich vlnová délka je taková, že dochází k excitaci elektronu

a)



b)



Obr. 8. Metoda přechodné mřížky: měření difuze nosičů náboje v polovodičích.

a) Schéma metody: dva excitační pulzy se překrývají prostorově i časově ve vzorku a interferují. Na vzniklé přechodné optické mřížce dochází k difrakci sondovacího pulzu.

b) Závislost rychlosti dozínání difrakčního signálu na periodě mřížky  $d$  (přesněji na veličině  $8\pi^2/d^2$ ) v krystalickém křemíku.

v polovodiči, vzniká v polovodiči prostorové rozložení excitovaných nosičů odpovídající periodickému interferenčnímu poli. Toto rozložení vede k prostorové modulaci absorpce, resp. indexu lomu, a vzniká difrakční mřížka. Sondovací pulz dopadající s určitým zpožděním může na této mřížce difragovat. Měří se účinnost difrakce, která souvisí s amplitudou mřížky. Prostorové rozložení excitovaných nábojů se po excitaci zmenšuje jednak jejich prostorovou difuzí a jednak jejich rekombinací (zmenšováním jejich počtu). Význam difuze roste se zmenšováním periody mřížky. Oba procesy lze proto oddělit měřením dynamiky difrakce s různými periodami mřížky, které je možné nastavit změnou úhlu mezi excitačními svazky. Jako příklad uvádíme na obr. 8b měření dynamiky přechodné mřížky v krystalickém křemíku [8]. Z měření bylo možné určit hodnotu ambipolární difuzní konstanty  $D = 13 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ .

## 5. Závěr

Z problematiky ultrarychlé spektroskopie jsme vybrali jen několik metod, které snad naznačují význam a zajímavost tohoto fyzikálního odvětví. Zmínili jsme se o studiu polovodičů, ale studují se samozřejmě všechny možné materiály. V polovodičových strukturách jsou ultrarychlé procesy mimořádně zajímavé z aplikačního hlediska, kdy souvisí přímo s ultrarychlým spínáním v mikroelektronických součástkách. Ultrarychlá spektroskopie se velmi rychle rozvíjí, k jejím novým zaměřením patří studium *koherentních jevů* [9], ke kterým dochází, když excitační pulz vytvoří v látce koherentní polarizační vlnu, s níž interaguje sondovací pulz. Vzniká řada zajímavých jevů, které vypovídají o fázových relaxacích v mikrosvětě.

## L i t e r a t u r a

- [1] Například *Ultrashort Light Pulses*, Ed. S. L. Shapiro, Springer-Verlag, Heidelberg 1977.  
*Ultrashort Laser Pulses*, Ed. W. Kaiser, Springer-Verlag, Heidelberg 1992.
- [2] BEISER, A.: *Úvod do moderní fyziky*. Academia, Praha 1978.
- [3] MALÝ, P., VEČEŘ, J., SVOBODA, A., PANTOFLÍČEK, J.: *Čs. čas. fyz. A 40* (1990), 134.
- [4] MALÝ, P., KUDRNA, J., JIŘIČKA, J., NĚMEC, P., TROJÁNEK, F.: *Čs. čas. fyz. 47* (1997), 57.
- [5] SALEH, B. E. A., TEICH, M. C.: *Základy fotoniky*, sv. 4, kap. 19, Matfyzpress, Praha 1994.
- [6] MALÝ, P., TROJÁNEK, F., KUDRNA, J., HOSPODKOVÁ, A., BANÁŠ, S., KOHLOVÁ, V., VALENTA, J., PELANT, I.: *Phys. Rev. B 54* (1996), 7929.
- [7] MALÝ, P., MACIEL, A. C., RYAN, J. F., MASON, N. J., WALKER, P. J.: *Semicond. Sci. Technol. 9* (1994), 719.
- [8] MALÝ, P., SVOBODA, A., BUŠA, P.: *Physica status solidi (a) 121* (1990), 223.
- [9] DIELS, J.-C., RUDOLPH, W.: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press, Orlando 1996.