

Вырожденное четырехфотонное зондирование кинетики нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников в спектроскопии пробного импульса

Ю.В.Бобырев, В.М.Петникова, К.В.Руденко, В.В.Шувалов

Показано, что как спектрально-временные, так и температурные «аномалии» кинетики коэффициентов отражения и пропускания пленок высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) при высоком уровне «ударного» возбуждения имеют прямые аналогии и в том случае, когда для зондирования мгновенного состояния образцов используется самодифракция совмещенных во времени и распространяющихся под углом друг к другу пробных импульсов. Возможность применения нестационарной модификации метода вырожденного четырехфотонного зондирования для диагностики ВТСП существенно расширяет круг экспериментов, которые могут подтвердить или опровергнуть корректность модели, основанной на учете вклада межзонных электронных переходов в отклик возбужденной ВТСП-пленки с «замороженной» энергетической щелью.

Ключевые слова: спектроскопия пробного импульса, высокотемпературные сверхпроводники, вырожденное четырехфотонное зондирование, кинетика нелинейного отклика.

1. Введение

Процессы быстрой релаксации в низко- [1–5] и высокотемпературных [6–22] сверхпроводниках (НТСП и ВТСП) обычно исследуются методом пробного импульса. При этом изучается кинетика коэффициента отражения и/или пропускания образца с ростом задержки τ момента зондирования относительно «ударной» накачки [6, 8–10]. До недавнего времени считалось, что в этом случае схема протекающих процессов проста. На первом этапе горячие носители быстро ($\tau_{th} < 10$ фс при энергии электрона $E_e \sim 1$ эВ [23, 24]) термализуются за счет электрон-электронного ($e-e$) рассеяния и их распределение по энергии быстро возвращается к распределению Ферми–Дирака с электронной температурой T_e , отличающейся как от начальной температуры T_0 , так и от температуры решетки T_p [25]. И уже на втором этапе за счет электрон-фононного ($e-p$) рассеяния $T_e \rightarrow T_p$ за время τ_r . Было установлено [2–4, 7, 18, 26–29], что вблизи точки перехода ($T_0 \simeq T_c$) в сверхпроводящее состояние τ_{th} и τ_r в НТСП и ВТСП резко возрастают. Именно это предсказывала и теория [1, 30–32], поскольку при формировании щели в спектре состояний становятся жестче ограничения на фазовое пространство актов рассеяния. Однако вскоре было показано [22], что, хотя указанные особенности поведения τ_r в ВТСП при $T_0 \simeq T_c$ действительно имеют место, они наблюдаются лишь при высоких уровнях возбуждения и тем более заметны, чем выше энергия импульса накачки.

В [33] кинетика нелинейного отклика ВТСП при высоком уровне накачки была интерпретирована в рамках

модели, основанной на четырех допущениях: 1) щель в спектре состояний купратов не может быть быстро разрушена даже при существенном отличии T_e от T_p [34]; 2) после «ударного» возбуждения положения уровней Ферми $E_{e,h}^F$ для свободных электронов (состояния над щелью) и дырок (состояния под щелью) соответственно в ВТСП не совпадают, причем зазор $\Delta E^F = E_e^F - E_h^F$ резко увеличивается с ростом уровня накачки; 3) характер распределения плотности состояний в ВТСП приводит к сильному снижению скорости безызлучательной трехчастичной рекомбинации свободных электронов и дырок в режиме вырождения; 4) нелинейный отклик ВТСП в спектроскопии пробного импульса обусловлен межзонными электронными переходами [35]. Авторами [33] было показано, что появление щели в спектре электронных состояний (прохождение точки $T_0 \simeq T_c$) при $\Delta E^F \neq 0$ кардинально меняет кинетику $E_e^F(t)$, $T_e(t)$ и $T_p(t)$, что и позволяет объяснить все наблюдавшиеся ранее «аномалии» нелинейного отклика ВТСП.

Ниже для описанной в [33] модельной кинетики $E_{e,h}^F(t)$ и $T_{e,h}(t)$ в такой же реальной (см. ниже) зонной структуре будет рассмотрена другая версия метода спектроскопии пробного импульса – нестационарная модификация метода вынужденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС) [35]. В этой версии на этапе зондирования мгновенного состояния ВТСП-образца после его «ударного» возбуждения импульсом накачки используется самодифракция двух совмещенных во времени, но распространяющихся под углом друг к другу коротких пробных импульсов [33, 36, 37].

2. Электронная часть нелинейного отклика

В рамках применяемой нами модели [35, 37, 38] структура электронной части χ кубической нелинейной восприимчивости (нелинейного отклика) тонкой ВТСП-пленки записывается в типичном для нелинейной спектроскопии виде

Ю.В.Бобырев, В.М.Петникова, К.В.Руденко, В.В.Шувалов. Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: vsh@vsh.phys.msu.su

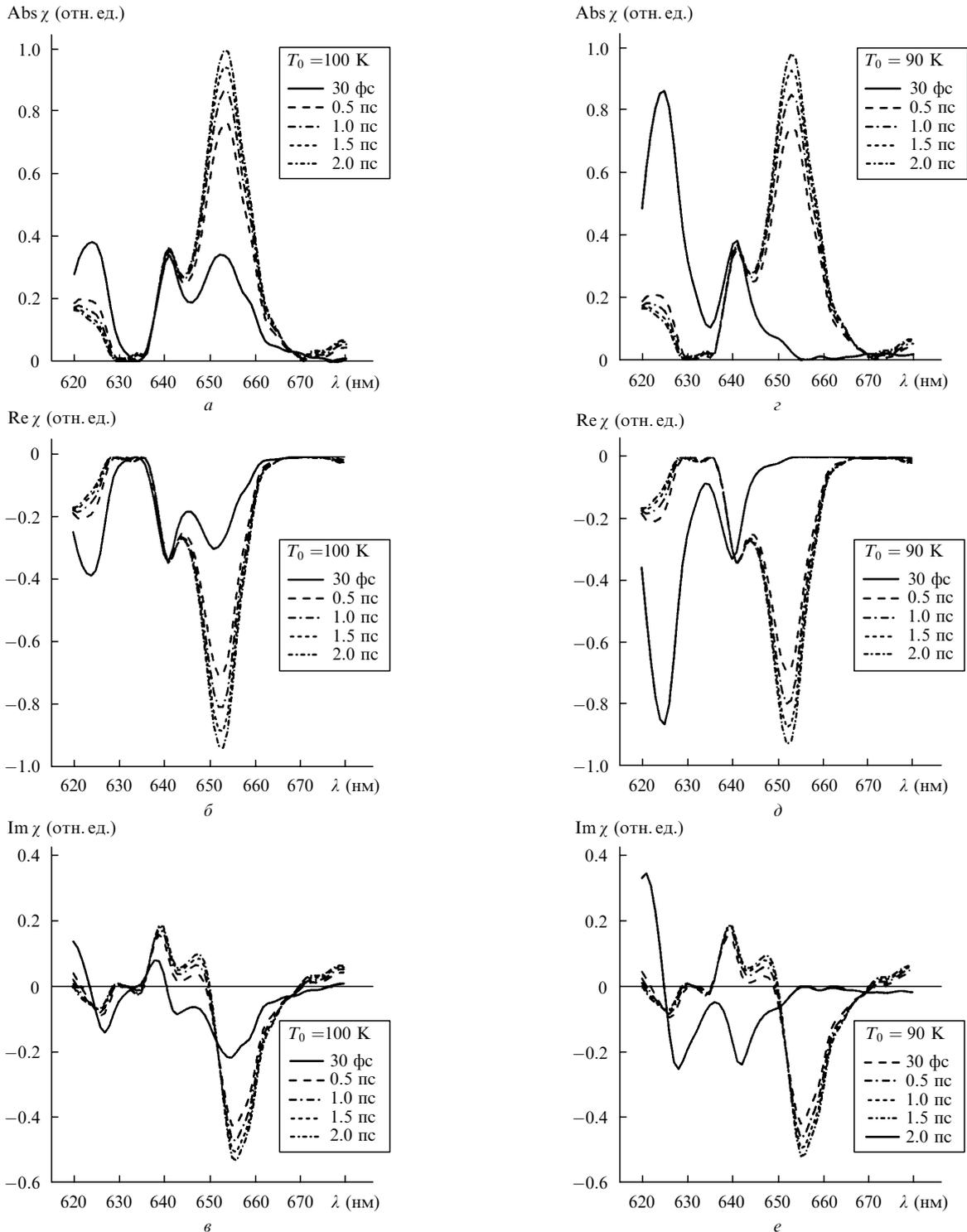


Рис.1. Зависимости модуля $Abs \chi$ ($a, г, ж, к$), действительной и мнимой частей отклика ВТСП-пленки $Re \chi$ ($б, д, з, л$) и $Im \chi$ ($в, е, и, м$) от (\rightarrow)

$$\chi \propto P_0(K_+P_+ + K_-P_-). \tag{1}$$

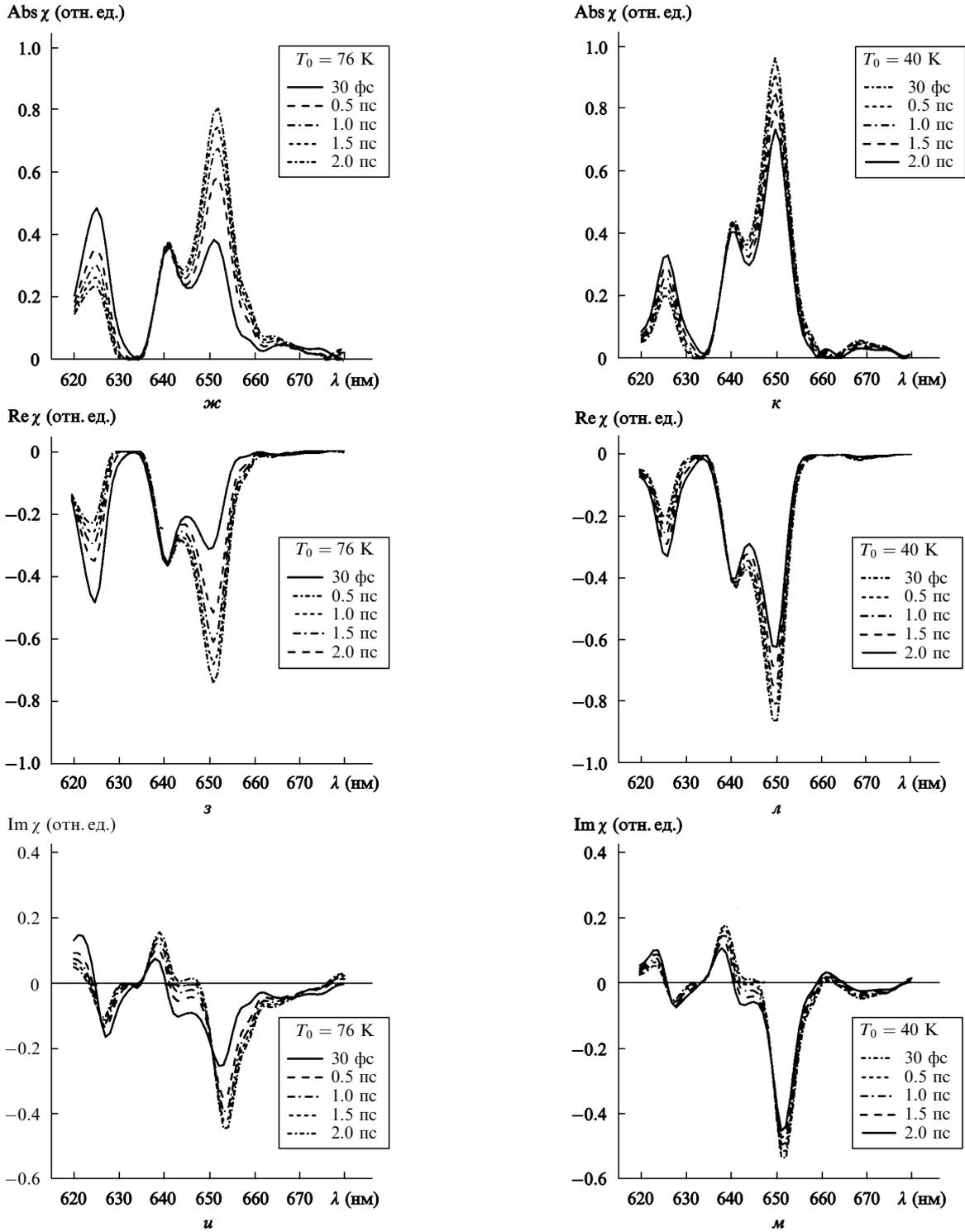
Здесь P_0, P_{\pm} и K_{\pm} – резонансные множители, описывающие вероятности одно- и двухфотонных электронных переходов и зависящие от частотной отстройки световых волн от резонансов. В том случае, когда частоты ω взаимодействующих волн совпадают, получаем

$$P_+ = P_-^* = P_0^* =$$

$$= \sum_{i,i'} \iint \frac{d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') n_i(\mathbf{k}) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}')] }{[\omega - \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') + i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')]^2} d\mathbf{k}d\mathbf{k}', \tag{2}$$

$$K_+ = K_-^* = \sum_{i,i'} \iint \frac{d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') n_i(\mathbf{k}) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}')] }{-\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') + i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')} d\mathbf{k}d\mathbf{k}'. \tag{3}$$

Здесь индексы i и i' нумеруют зоны, задействованные в переходах $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$ с дипольными моментами $d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$; $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ – скорости внутризонной ($i = i'$) и межзонной ($i \neq i'$) релаксации; \mathbf{k} – волновой вектор элек-



длины волны ВЧФС-зондирования λ при разных начальных температурах T_0 в различные моменты времени.

трона; $n_i(\mathbf{k})$ – число заполнения состояния (i, \mathbf{k}) ; $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ – резонансные частоты перехода; интегрирование по \mathbf{k} и \mathbf{k}' проводится в первой зоне Бриллюэна. В дальнейшем с учетом малости импульса фотона будем считать, что переходы $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$ являются прямыми ($\mathbf{k} = \mathbf{k}'$), и перейдем в (2), (3) к однократному интегрированию, обозначив $d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = d_{i,i'}(\mathbf{k})$ и $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \Gamma_{i,i'}(\mathbf{k})$. Частоты резонансов будем описывать выражениями $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}) = E_{i'}(\mathbf{k}) - E_i(\mathbf{k})$, где $E_i(\mathbf{k})$ – энергия электрона в состоянии (i, \mathbf{k}) , нормированная на постоянную Планка.

3. Численное моделирование

Как и в [35], при численном моделировании χ частоты $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k})$ рассчитывались интерполяцией известных данных о зонной структуре La_2CuO_4 [39] на первую зону Бриллюэна с учетом требований симметрии и периодичности. Моделирование фазового перехода при изменении T_0 сводилось к принудительному перераспределению плотности электронных состояний в рассчитанном таким образом электронном спектре заменой $E_c(\mathbf{k}) \rightarrow E_0^F \pm \{[E_c(\mathbf{k}) - E_0^F]^2 + \Delta^2\}^{1/2}$ для состояний с энергией

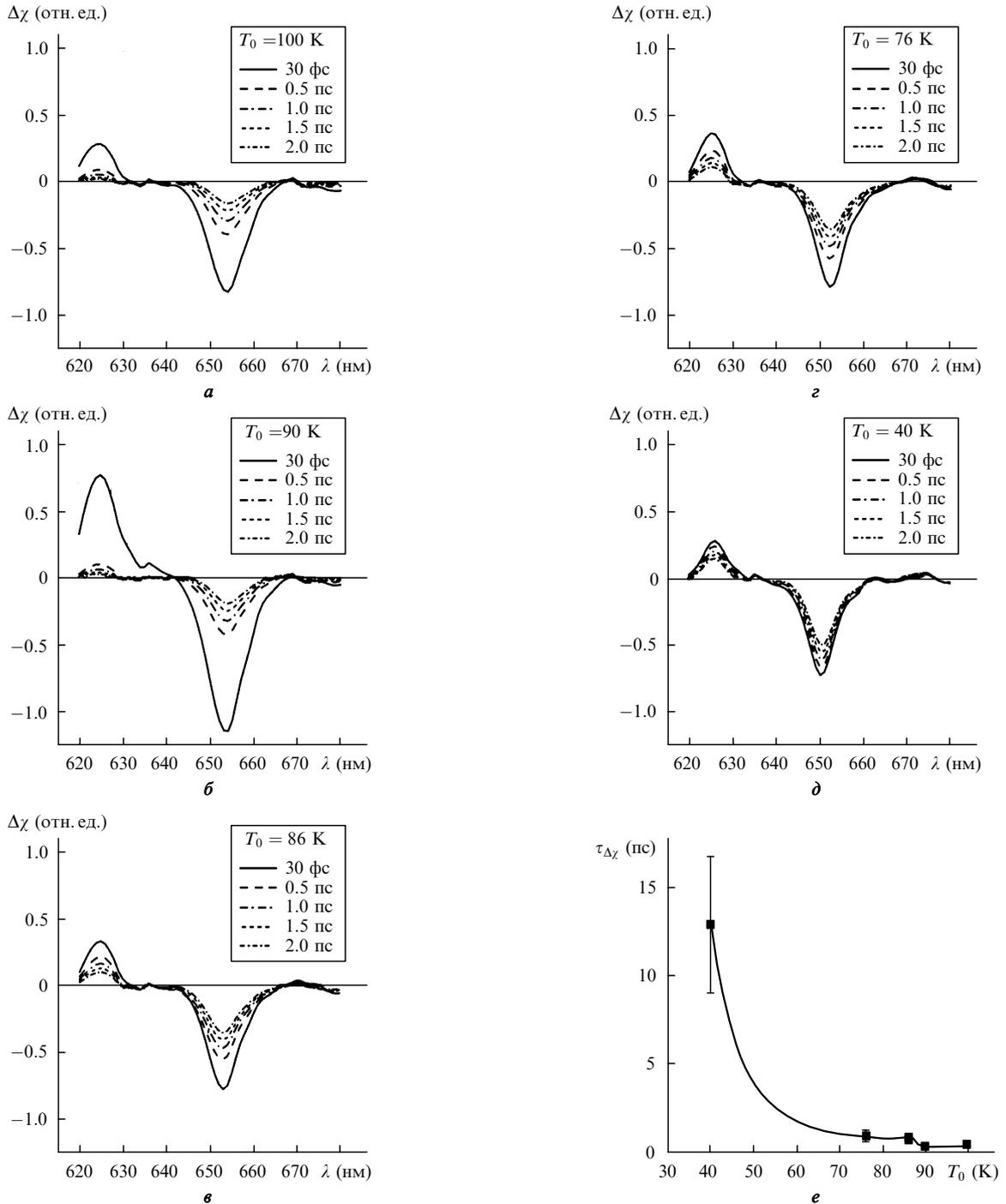


Рис.2. Зависимости разности $\Delta\chi(\lambda)$ откликов ВТСП-пленки в присутствии и в отсутствие импульса накачки при разных T_0 в различные моменты времени (a–d), а также зависимость времени релаксации $\tau_{\Delta\chi}(T_0)$ наведенных импульсом накачки изменений χ в окрестности точки $\lambda \approx 653$ нм (e).

$E_c(\mathbf{k}) > E_0^F$ (свободные электроны) и $E_c(\mathbf{k}) < E_0^F$ (дырки) соответственно, где E_0^F – невозмущенное положение уровня Ферми. Ширина щели Δ считалась константой, зависящей только от T_0 и T_c («замороженная» щель s-симметрии в приближении слабой связи в теории БКШ [40]):

$$\Delta = \Delta(T_0) \equiv \begin{cases} 3.12k_B T_c (1 - T_0/T_c)^{1/2} & \text{при } T_0 \leq T_c, \\ 0 & \text{при } T_0 > T_c. \end{cases} \quad (4)$$

Здесь k_B – постоянная Больцмана.

При проведении расчетов использовались упроще-

ния, полностью аналогичные приведенным в [33]. Считалось, что $d_{i,i'}(\mathbf{k}) = d = \text{const}$, $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}) = \Gamma = 5 \times 10^{12} \text{ с}^{-1}$ и не зависят от i, i' и \mathbf{k} . Предполагалось, что ВТСП-пленка поглощает 30 % (толщина пленки ~ 200 нм) полной энергии (4×10^{-7} Дж) импульса накачки (длина волны 800 нм) длительностью 30 фс, сфокусированного в пятно диаметром 150 мкм. Значения остальных параметров ($T_c = 90$ К, удельная теплоемкость пленки $c_p = 0.9 \text{ Дж}\cdot\text{см}^{-3}\cdot\text{К}^{-1}$, скорость релаксации избытка тепла в подложку и др.) соответствовали пленке $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ на подложке из титаната стронция. В связи с этим расчет кинетики релаксации нелинейного отклика $\chi(t)$ сводился к простой под-

становке в (2) и (3) мгновенных значений чисел заполнения $n_i(\mathbf{k}, t)$ и $[1 - n_i(\mathbf{k}, t)]$ электронных и дырочных состояний (при $E_c(\mathbf{k}) > E_0^F$ и $E_c(\mathbf{k}) < E_0^F$ соответственно), заданных распределением Ферми–Дирака $f_F(E_{e,h}; E_{e,h}^F, T_{e,h})$ с мгновенными значениями термодинамических параметров $E_c^F(t) - E_0^F = E_0^F - E_h^F(t)$ и $T_c(t) = T_h(t)$, рассчитанными нами в [33] для разных начальных температур T_0 (см. рис.2 в [33]). Интегрирование в (2) и (3) проводилось по всем зонам электронных состояний, попадающим в диапазон $|E_c \pm E_0^F| \leq 2.5$ эВ, методом особых точек [41].

4. Кинетика электронной части нелинейного отклика

Резкую трансформацию зависимостей модуля $\text{Abs } \chi$, действительной ($\text{Re } \chi$) и мнимой ($\text{Im } \chi$) частей электронного нелинейного отклика ВТСП-пленки от длины волны ВЧФС-зондирования λ в диапазоне 620–680 нм при разных начальных температурах T_0 (как выше, так и ниже точки фазового перехода $T_0 = T_c$) сразу после окончания импульса накачки ($t = 30$ фс) и в моменты времени $t = 0.5, 1.0, 1.5$ и 2.0 пс иллюстрирует рис.1. В реальных экспериментах чаще используются дифференциальные измерения, т. е. сравниваются между собой отклики одного и того же образца в присутствии (χ) и в отсутствие (χ_0 при $E_{e,h}^F \equiv E_0^F, T_{e,h} \equiv T_0$) возбуждающего импульса. Зависимости разности $\Delta\chi = \text{Abs } \chi - \text{Abs } \chi_0$ результатов двух таких измерений от λ при различных T_0 для нескольких временных задержек момента зондирования приведены на рис.2, a–d. Легко заметить, что, как и во всех экспериментах по диагностике наведенных импульсом накачки изменений коэффициентов отражения и/или пропускания [8, 10, 32], при ВЧФС-зондировании на оси λ также имеются особые точки ($\Delta\chi \equiv 0$), разделяющие области с разными знаками $\Delta\chi$ (рис.2, a–d). Подчеркнем, что, поскольку в этих точках одновременно обнуляется как действительная, так и мнимая часть $\Delta\chi$, их существование, на наш взгляд, может быть обусловлено только изменением фазовых соотношений между двумя интерферирующими компонентами χ , появление которых связано с частотным вырождением процесса зондирования [35].

Экспоненциальная аппроксимация кинетики распада наведенных импульсом накачки изменений χ в области $\lambda \approx 653$ нм длинноволнового пика $\Delta\chi$ дает весьма нетривиальную зависимость времени релаксации $\tau_{\Delta\chi}$ от T_0 (рис.2, e) с хорошо выраженной резкой ступенькой (скачок $\tau_{\Delta\chi}$ в окрестности точки $T_0 = 86$ К, т. е. чуть ниже температуры фазового перехода $T_c \approx 90$ К) и последующим резким снижением скорости релаксации в области низких температур. Характер трансформации $\tau_{\Delta\chi}$ при снижении T_0 полностью аналогичен наблюдавшимся в реальных экспериментах и перечисленным выше «аномалиям» кинетики нелинейного отклика [20, 22, 29, 31, 42, 43]. Отметим, что в рамках построенной модели все «аномалии» отклика полностью исчезают при снижении энергии импульса накачки (т. е. при совпадении положений уровней Ферми для свободных электронов и дырок $E_{e,h}^F$ с его истинным положением E_0^F).

5. Заключение

Итак, наблюдавшиеся методом пробного импульса [6–10, 15, 18–22, 29, 31, 32, 43] и интерпретированные в

[33] спектрально-временные особенности кинетики нелинейного отклика ВТСП-пленок при высоком уровне накачки имеют свои аналоги и в том случае, когда для зондирования состояния образца используется самодифракция совмещенных во времени и распространяющихся под углом друг к другу пробных импульсов. Возможность применения нестационарной модификации метода ВЧФС, на наш взгляд, существенно расширяет круг экспериментов, которые могут подтвердить или опровергнуть корректность модели, основанной на учете вклада межзонных электронных переходов в отклик возбужденной ВТСП-пленки с «замороженной» (метастабильной [33–35]) энергетической щелью. Немаловажно, что это подтвердило бы и то, что все «аномалии» такого рода являются следствием резкого падения скоростей процессов трехчастичной безызлучательной рекомбинации избыточных свободных носителей в условиях сильного вырождения за счет необычного (по сравнению со спектром состояний узкозонных полупроводников) характера распределения плотности электронных состояний в ВТСП.

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы Президента Российской Федерации (гранты № НШ-1583.2003.2 и МК-1328.2004.2).

1. Rothwarf A., Taylor B.N. *Phys. Rev. Lett.*, **19**, 27 (1967).
2. Owen C.S., Scalapino D.J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1559 (1972).
3. Parker W.H., Williams W.D. *Phys. Rev. Lett.*, **29**, 924 (1972).
4. Schuller I., Gray K.E. *Phys. Rev. Lett.*, **36**, 429 (1976).
5. Bluzer N. *J. Appl. Phys.*, **71**, 1336 (1992).
6. Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 2172 (1990).
7. Han S.G. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 2708 (1990).
8. Гершензон М.Е. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **52**, 1189 (1990).
9. Kazeroonian A.S. et al. *Solid State Commun.*, **78**, 95 (1991).
10. Chekalin S.V. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3860 (1991).
11. Bluzer N. *Phys. Rev. B*, **44**, 10222 (1991).
12. Hegman F.A. et al. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 1158 (1993).
13. Zherikhin A.N. et al. *Physica C*, **221**, 311 (1994).
14. Жерихин А.Н. и др. *Квантовая электроника*, **21**, 574 (1994).
15. Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. B*, **49**, 6185 (1994).
16. Buhleier R. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 9672 (1994).
17. White J.O. et al. *Physica C*, **235-240**, 2025 (1994).
18. Stevens C.J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2212 (1997).
19. Smith D.C. et al. *J. Low Temp. Phys.*, **117**, 1059 (1999).
20. Demsar J. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 054519 (2001).
21. Segre G.P. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 137001 (2002).
22. Schneider M.L. et al. *Eur. Phys. J. B*, **36**, 327 (2003).
23. Allen P.B. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1460 (1987).
24. Nessler W. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 4480 (1998).
25. Sun C.K. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 15337 (1994).
26. Lucas G., Stephen M.J. *Phys. Rev.*, **154**, 349 (1967).
27. Woo J.W.F., Abrahams E. *Phys. Rev.*, **169**, 407 (1968).
28. Schmid A., Schoen G. *J. Low Temp. Phys.*, **20**, 207 (1975).
29. Demsar J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 4918 (1999).
30. Tinkham M., Clarke J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1366 (1972).
31. Kabanov V.V. et al. *Phys. Rev. B*, **61**, 1477 (2000).
32. Farztdinov V.M. et al. *Brazilian J. Phys.*, **26**, 482 (1996).
33. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 720 (2005).
34. Воронов А.В. и др. *ЖЭТФ*, **120**, 1256 (2001).
35. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 102 (2005).
36. Кузнецова Л.П. и др. *Квантовая электроника*, **30**, 175 (2000).
37. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **32**, 789 (2002).
38. Kornienko A.G. et al. *J. Appl. Phys.*, **80**, 2396 (1996); Петникова В.М. и др. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
39. Perry J.K. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 144501 (2001).
40. Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. *Статистическая физика. Ч.2. Теория конденсированного состояния* (М.: Наука, 1978).
41. Chadi D.J., Cohen M.L. *Phys. Rev. B*, **8**, 5747 (1973).
42. Demsar J. *cond-mat/0305597* (2003).
43. Schneider M.L. et al. *Europhys. Lett.*, **60**, 460 (2002).