

Интерференция компонент нелинейного отклика в вырожденной четырехфотонной спектроскопии сверхтонких металлических пленок

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

Показано, что формирование характерного провала на спектральной зависимости нелинейного отклика сверхтонких металлических пленок в методе вырожденной четырехфотонной спектроскопии связано с изменением фаз интерферирующих компонент электронной нелинейной восприимчивости. Это позволяет экспериментально определить временной масштаб субпикосекундных внутризонных процессов с использованием пикосекундных световых импульсов.

Ключевые слова: вырожденная четырехфотонная спектроскопия, сверхтонкие металлические пленки, интерференция компонент нелинейной восприимчивости.

1. Введение

В исследованиях сверхбыстрой кинетики релаксации электронного возбуждения в металлах обычно используется метод «пробного импульса» (ПИ) [1–10]. В этом методе эволюция изменений коэффициентов отражения $\Delta R(\tau, \lambda)$ и/или пропускания $\Delta T(\tau, \lambda)$ сверхтонкой металлической пленки, возникших под действием сверхкороткого импульса накачки, зондируется с помощью столь же короткого ПИ. Зондирование проводится с переменной задержкой τ относительно накачки в широком спектральном диапазоне либо последовательно (последовательное изменение длины волны λ ПИ), либо параллельно (использование ПИ с широким спектром). Далее по данным эксперимента с помощью стандартных процедур (см., напр., [1, 3, 6–9]) «восстанавливается» информация о кинетике изменений $\Delta \epsilon(\tau, \lambda)$ комплексной диэлектрической проницаемости ϵ . Временная эволюция неравновесных состояний описывается через изменение термодинамических параметров (температуры электронной T_e и фононной T_p подсистем, положения уровня Ферми E_F и др.), мгновенные значения которых рассчитываются из $\Delta \epsilon(\tau, \lambda)$ с использованием определенных моделей [6–9, 11, 12]. В другом методе – вырожденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС) – зондирование неравновесных пространственно неоднородных распределений (решеток) $\Delta \epsilon$ проводится одновременно ($\tau \equiv 0$) с их возбуждением [13–16]. Решетки записываются в образце интерференционным полем двух сравнительно длинных (пикосекундных) распространяющихся под углом друг к другу и смещенных по λ импульсов. Измеряется зависимость эффективности дифракции η одного из этих импульсов («самодифракция») от λ . Отметим, что метод ВЧФС был разработан для изучения резонансных механизмов нелинейности, т.е. для определения спектрального положения и ширины выделенных резонансных ли-

ний в нелинейном отклике, а также соотношения их амплитуд [17].

Уже первые эксперименты с пленками Cu и Y–Ba–Cu–O в металлической фазе, а также с фуллеренами, проведенные методом ПИ, выявили резкую зависимость $\Delta \epsilon$ от λ [6–9]. Было показано, что на оси λ имеются точки, в которых $\Delta \epsilon \equiv 0$ для любых τ . Полученные данные были интерпретированы в рамках предположения об определяющей роли межзонных электронных переходов при формировании нелинейного отклика металла. На это же обстоятельство обращали внимание авторы экспериментов [18] с тонкими пленками W и Al, проведенных в других модификациях метода ПИ. Резкое падение амплитуды нелинейного отклика η для пленок Ni и Pt в окрестности определенных точек на оси λ было обнаружено и методом ВЧФС [13–16]. Авторы показали, что модель нелинейного отклика [19], основанная на учете процессов насыщения межзонных электронных переходов в реальной (см. ниже) зонной структуре, при минимальном использовании подгоночных параметров практически точно описывает данные эксперимента.

Ниже в рамках модели [19] мы на примере ВЧФС пленок Pt покажем, что за счет интерференции двух компонент нелинейного отклика на оси λ существуют точки, в которых одновременно обращаются в нуль как действительная ($\text{Re}\chi_{ee}^{(3)}$), так и мнимая ($\text{Im}\chi_{ee}^{(3)}$) части электронной нелинейной восприимчивости. Это не только объясняет результаты всех описанных выше экспериментов [6–9, 13–16], но и дает возможность с использованием сравнительно длинных (пикосекундных) световых импульсов измерять характерные времена субпикосекундных внутризонных процессов методом ВЧФС.

2. Структура нелинейного отклика в методе ВЧФС

В рамках модельного описания [19] структура электронной части $\chi_{ee}^{(3)}$ нелинейной восприимчивости (нелинейного отклика) сверхтонкой металлической пленки может быть представлена в типичном для нелинейной спектроскопии виде

Ю.В.Бобырев, В.М.Петникова, К.В.Руденко, А.Ю.Шипова, В.В.Шувалов. Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы

Поступила в редакцию 26 марта 2003 г.

$$\chi_{ee}^{(3)} \propto P_0(K_+P_+ + K_-P_-), \quad (1)$$

где P_0 , P_{\pm} и K_{\pm} – резонансные множители, описывающие вероятности всех возможных одно- и двухфотонных электронных переходов и зависящие от частотных отстройек от резонансов. Из выражений для P_0 , P_{\pm} и K_{\pm} , приведенных в [19], следует, что в методе ВЧФС, когда частоты ω всех взаимодействующих волн одинаковы,

$$P_+ = P_-^* = P_0^* \\ = \sum_{i,i'} \iint \frac{d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') n_i(\mathbf{k}) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}')] }{[\omega - \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') + i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')]^2} d\mathbf{k} d\mathbf{k}', \quad (2)$$

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

Здесь i и i' – номера начальной и конечной зон, задействованных в электронном переходе $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$ с дипольным моментом $d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ и скоростью внутри- ($i = i'$) либо межзонной ($i \neq i'$) релаксации $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$; \mathbf{k} – электронный волновой вектор; $n_i(\mathbf{k})$ – число заполнения электронного состояния (i, \mathbf{k}) , которое при термодинамическом равновесии задано распределением Ферми – Дирака. Интегрирование по \mathbf{k} и \mathbf{k}' проводится в пределах первой зоны Бриллюэна, а суммирование по i и i' – по всем зонам состояния. В дальнейшем с учетом малости фотонного импульса все электронные переходы $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$ будут считаться «прямыми» ($\mathbf{k} \equiv \mathbf{k}'$), поэтому в (2) и (3) мы перейдем к одномерным интегралам по \mathbf{k} и будем полагать, что $d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \equiv d_{i,i'}(\mathbf{k})$, $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \equiv \Gamma_{i,i'}(\mathbf{k})$, а частоты переходов описывать выражениями $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \equiv \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}) = E_{i'}(\mathbf{k}) - E_i(\mathbf{k})$, где $E_i(\mathbf{k})$ – энергия электрона в состоянии (i, \mathbf{k}) , нормированная на постоянную Планка \hbar .

Как и в [19], во всех последующих численных расчетах (см. ниже) частоты $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k})$ будут определяться с помощью процедуры интерполяции на всю зону Бриллюэна известных данных о зонной структуре массивных образцов Pt [20] с учетом эффектов ее размерной перенормировки [19, 21]. Это позволит включить в модель (1)–(3) реальную (известную из литературы) зонную структуру изучаемого объекта и резко сократить число свободных (подгоночных) параметров модели. В дальнейших расчетах роль таких параметров будут играть температура электронной подсистемы T_e и характерный временной масштаб $\Gamma_{i,i'}^{-1}(\mathbf{k})$ процессов релаксации. Однако здесь мы остановимся лишь на существенно более важном и общем результате, непосредственно вытекающем из соотношений (1)–(3). Действительно, введя обозначения

$$P = P_+ = |P| \exp(i\varphi_P), \quad K = K_+ = |K| \exp(i\varphi_K), \quad (4)$$

выражение (1) легко привести к виду

$$\chi_{ee}^{(3)} \propto |P|^2 |K| \cos(\varphi_P + \varphi_K) \exp(i\varphi_P). \quad (5)$$

Из (5) следует, что при вырождении частот взаимодействующих импульсов электронный нелинейный отклик становится равным нулю не только при обращении в нуль $|P|$ либо $|K|$ (что, на наш взгляд, весьма маловероятно), но и при $\varphi_P + \varphi_K = (2k+1)\pi/2$, где k – любое целое число. Самым замечательным в этом выводе является то, что он остается справедливым даже в отсутствие каких-либо дальнейших предположений о характере

зависимостей $d_{i,i'}(\mathbf{k})$, $n_i(\mathbf{k})$, $E_i(\mathbf{k})$ и $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k})$, т. к. не требует никакой их конкретизации. Именно поэтому, по нашему мнению, данный весьма общий эффект и должен объяснять данные экспериментов [6–9, 13–16], авторы которых наблюдали одновременное обращение в нуль (либо снижение до уровня шумов) как действительной $\text{Re}\chi_{ee}^{(3)}$, так и мнимой $\text{Im}\chi_{ee}^{(3)}$ частей электронной нелинейной восприимчивости.

3. Численное моделирование

В дальнейших численных расчетах использовались следующие упрощения. Как и в [19], полагалось, что $d_{i,i'}(\mathbf{k}) \equiv d$ и $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}) \equiv \Gamma$ являются константами, которые не зависят от i , i' и \mathbf{k} . Поправки $\delta n_i(\mathbf{k})$ (учет насыщения), обусловленные действием световых полей накачки на частоте ω , к заданному распределению Ферми – Дирака равновесным значениям $n_i^F(\mathbf{k})$ чисел заполнения считались малыми (максимальный уровень насыщения $\delta n_i(\mathbf{k}) \times [n_i^F(\mathbf{k})]^{-1} \simeq 0.01$). Они рассчитывались в рамках подхода [19], основанного на использовании модифицированной матрицы плотности для эффективной двухуровневой системы в дипольном приближении [22]. При расчете $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k})$ известные из литературы [20] данные о зонной структуре Pt интерполировались на всю зону Бриллюэна с учетом требований симметрии и периодичности. Интерполяция и последующее интегрирование проводились для зон, захватывающих диапазон ± 2.5 эВ от уровня Ферми. Свободные параметры модели (1)–(3) не варьировались, а задавались фиксированными значениями, заведомо обеспечивающими хорошее соответствие данных расчета $\eta(\lambda)$ результатам эксперимента [16]. При этом считалось, что толщина L пленки Pt, определяющая полное число учитываемых подзон размерного квантования, равна 5 нм, электронная подсистема «разогревается» импульсами накачки до температуры $T_e = 600$ К, а время релаксации межзонной поляризации составляет $\Gamma^{-1} = 180$ фс.

Как и ожидалось, проведенный расчет подтвердил, что в интересующей нас (см. [16]) спектральной области $\lambda = 620 - 640$ нм значение $|P(\lambda)|$ меняется монотонно, а $|K(\lambda)|$ вообще практически постоянно и не обращается в нуль ни при одном значении λ (рис. 1). Одновременно плавное изменение φ_P при постоянном φ_K (рис. 2, а) приводит к тому, что в окрестности точки $\lambda \simeq 635$ нм $\cos(\varphi_P + \varphi_K)$ обнуляется (рис. 2, б), вследствие чего, в полном соответствии с данными эксперимента и расчета авторов [16], электронная часть нелинейного отклика $\eta(\lambda) \propto |\chi_{ee}^{(3)}|^2$ пленки Pt в этой точке также обращается в нуль (рис. 3).

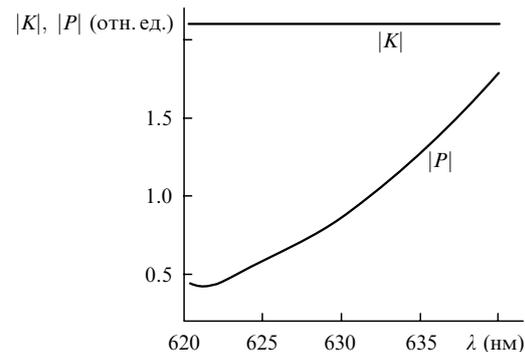


Рис. 1. Расчетные зависимости $|P(\lambda)|$ и $|K(\lambda)|$ для пленки Pt толщиной $L = 5$ нм при $T_e = 600$ К и $\Gamma^{-1} = 180$ фс.

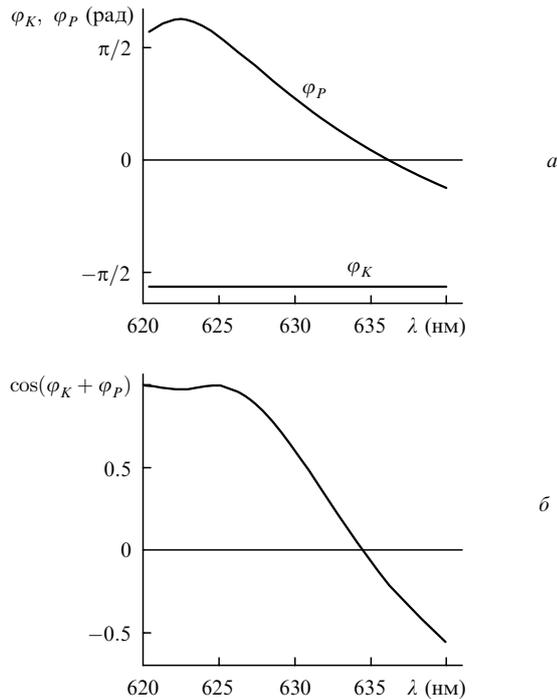


Рис.2. Расчетные зависимости φ_P и φ_K (а) и $\cos(\varphi_P + \varphi_K)$ (б) от длины волны для пленки Pt толщиной $L = 5$ нм при $T_e = 600$ К и $\Gamma^{-1} = 180$ фс.

4. Заключение

Таким образом, из приведенных нами результатов следует, что наиболее вероятной физической причиной возникновения одной из недавно обнаруженных [13–16] методом ВЧФС спектральных особенностей нелинейного отклика сверхтонких металлических пленок – провала на зависимости $\eta(\lambda)$ – являются меняющиеся при вариациях λ фазовые соотношения между двумя интерферирующими компонентами электронной нелинейной восприимчивости. Заметим, что существование этих двух компонент в выражении (1) для $\chi_{\text{св}}^{(3)}$ связано с наличием перестановочных соотношений в уравнении Лиувилля для матрицы плотности (см., напр., [17, 22]) и в этом смысле неизбежно в рамках любого описания. Такой эффект не связан с какой-либо конкретизацией характера зависимостей $d_{i,i'}(\mathbf{k})$, $n_i(\mathbf{k})$, $E_i(\mathbf{k})$ и $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k})$ и обусловлен лишь вырождением частот взаимодействующих волн. Поэтому и в методе ПИ [1–10], где на этапе зондирования металлических пленок экспериментально исследуются изменения их коэффициентов отражения $\Delta R(\tau, \lambda)$ и пропускания $\Delta T(\tau, \lambda)$ и, следовательно, изучается их вырожденный по частоте нелинейный отклик, описанный нами выше механизм также должен работать и способен объяснить данные, полученные авторами [6–9]. При этом рассмотренная выше трактовка оказывается существенно проще и, на наш взгляд, реалистичнее интерпретации экспериментальных данных, приведенной в [9]. В первую очередь, это связано с тем, что мы не пользовались предположением о полной остановке процессов внутризонной релаксации на поверхности Ферми, которое, по нашему мнению, с учетом высоких электронных температур, реализуемых во всех подобных экспериментах, нельзя признать адекватным рассматриваемой задаче.

Приведенная выше трактовка объясняет и то, что метод ВЧФС дает возможность определить характерный временной масштаб субпикосекундных внутризонных

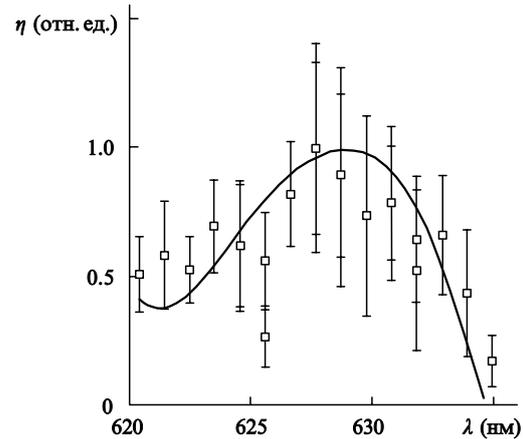


Рис.3. Данные эксперимента [16] (точки) и расчетная зависимость $\eta(\lambda)$ для пленки Pt толщиной $L = 5$ нм при $T_e = 600$ К и $\Gamma^{-1} = 180$ фс.

процессов с использованием сравнительно длинных (пикосекундных) световых импульсов [13–16]. По сути, эта возможность обусловлена тем, что на оси λ существуют особые точки, в которых электронный нелинейный отклик металлических пленок обращается в нуль. Причем спектральные положения этих точек весьма чувствительны к фазам компонент $\chi_{\text{св}}^{(3)}$ и, следовательно, к интересующим нас скоростям внутризонных процессов. Проведенный предварительный анализ подтверждает и то, что данные, полученные методом ВЧФС, могут оказаться весьма информативным индикатором появления энергетических щелей в спектрах электронных состояний, связанных с фазовыми переходами и, в частности, с переходом в сверхпроводящее состояние. Однако детальный анализ этих возможностей метода ВЧФС выходит за рамки настоящей статьи и будет предметом специальной публикации.

Авторы благодарны РФФИ (грант № 02-02-16603) и Федеральной целевой научно-технической программе «Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития науки и техники» за финансовую поддержку настоящей работы.

1. Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1962 (1987).
2. Elsayed-Ali H.E. et al. *Phys. Rev. B*, **43**, 4488 (1991).
3. Sun C.-K. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 15337 (1992).
4. Groeneveld R.H.M. et al. *Phys. Rev. B*, **51**, 11433 (1995).
5. Wright O.B., Gusev V.E. *Physica B*, **219-220**, 770 (1996).
6. Farztdinov V.M. et al. *Brazilian J. of Physics*, **26**, 482 (1996).
7. Farztdinov V.M. et al. *Phys. Rev. B*, **56**, 4176 (1997).
8. Dobryakov A.L. et al. *Physica Scripta*, **60**, 572 (1999).
9. Lozovik Yu.E. et al. *Laser Phys.*, **9**, 557 (1999).
10. Hohlfeld J. et al. *Chem. Phys.*, **251**, 237 (2000).
11. Allen Ph.B. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1460 (1987).
12. Wright O.B., Gusev V.E. *Phys. Rev. B*, **57**, 2878 (1998).
13. Кузнецова Л.П. и др. *Квантовая электроника*, **30**, 175 (2000).
14. Kuznetsova L.P. et al. *J. of Raman Spectroscopy*, **31**, 755 (2000).
15. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **31**, 1067 (2001).
16. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **32**, 789 (2002).
17. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981).
18. Devos A., Lerouge C. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 2669 (2001).
19. Kornienko A.G. et al. *J. Appl. Phys.*, **80**, 2396 (1996); Петникова В.М. и др. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
20. Friedel J. et al. *J. Phys. Chem. Solids*, **25**, 781 (1964).
21. Тавгер Б.А., Демиховский В.Я. *УФН*, **96**, 61 (1968).
22. Апанасевич П.А. *Основы взаимодействия света с веществом* (Минск: Наука и техника, 1977).