

Роль процессов вырождения в пикосекундной нелинейной спектроскопии ВТСП

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 при высоком уровне «ударного» возбуждения имеют прямой аналог и в том случае, когда для возбуждения и зондирования состояния пленки используются существенно более длинные, совмещенные во времени пикосекундные импульсы. При этом за счет вырождения должна наблюдаться нетривиальная (с резким скачком в окрестности точки фазового перехода) зависимость амплитуды нелинейного отклика образца от его начальной температуры.

Ключевые слова: спектроскопия пробного импульса, высокотемпературные сверхпроводники, пикосекундное возбуждение и зондирование, температурная зависимость амплитуды нелинейного отклика.

1. Введение

Процессы быстрой релаксации в низко- и высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) обычно исследуются методом пробного импульса [1–22], с помощью которого чаще всего изучается зависимость коэффициентов отражения и/или пропускания предварительно возбужденного образца от времени задержки τ момента его зондирования относительно «ударной» накачки [6, 8–10]. Считается, что после возбуждения горячие носители сначала быстро (время термализации $\tau_{th} < 10$ фс при энергии электрона $E_e \sim 1$ эВ [23, 24]) термализуются в процессах электрон-электронного (e–e) рассеяния и их распределение по энергии возвращается к распределению Ферми–Дирака с электронной температурой T_e , отличной как от начальной температуры T_0 , так и от температуры решетки T_p [25]. Затем электрон-фононное (e–p) рассеяние за время τ_r выравнивает температуры электронной и фононной подсистем и $T_e \rightarrow T_p$. Экспериментально было установлено [2–4, 7, 18, 26–29], что в полном согласии с теорией [1, 30–32] в окрестности точки перехода ($T_0 \simeq T_c$) в сверхпроводящее состояние значения τ_{th} и τ_r резко возрастают. Однако уже вскоре стало ясно [22], что, как это ни удивительно, эта особенность наблюдается лишь при высоких уровнях возбуждения, т. е. только в тех случаях, когда образец практически мгновенно должен «забывать» любую информацию о своем исходном состоянии (о своей начальной температуре T_0).

В [33] аномальную кинетику нелинейного отклика ВТСП при высоком уровне накачки удалось интерпретировать в рамках модели, основанной на предположениях о том, что энергетическую щель в спектре состояний ВТСП нельзя быстро разрушить даже при сильном от-

рыве T_e от T_p [34] и что нелинейный отклик ВТСП в спектроскопии пробного импульса обусловлен межзонными электронными переходами [35]. Было показано, что за счет «ударного» возбуждения уровни Ферми (энергия $E_{e,h}^F$) для свободных электронов (состояния над щелью) и дырок (состояния под щелью) раздвигаются (процесс вырождения), причем энергетический зазор ($E_c^F - E_h^F$) резко увеличивается с ростом уровня накачки. Поскольку распределение плотности состояний в ВТСП таково, что процессы безызлучательной трехчастичной рекомбинации с ростом энергии рекомбинирующих носителей подавляются, формирование щели с шириной $\Delta(T_0, T_c) \neq 0$ при $T_0 \leq T_c$ в спектре электронных состояний ВТСП радикально меняет кинетику $E_c^F(t)$ и $T_{e,p}(t)$, что и дает возможность объяснить все наблюдающиеся в экспериментах аномалии.

Ниже, строго придерживаясь описанной в [33] кинетической модели, мы покажем, что и в пикосекундной нелинейной спектроскопии ВТСП процессы вырождения при высоких уровнях возбуждения должны играть весьма существенную роль, определяя нетривиальную зависимость амплитуды нелинейного отклика ВТСП-пленки от ее начальной температуры.

2. Кинетика термодинамических параметров при пикосекундной накачке

На первом этапе решения задачи с использованием описанной в [33] кинетической модели рассчитывалась кинетика сдвига положения уровня Ферми $\Delta E^F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$ относительно его равновесного значения E_0^F и кинетика изменений $\Delta T_e(t) = T_e(t) - T_0$ электронной температуры при пикосекундном возбуждении (при длительности импульса накачки $\tau_p = 20$ пс). При этом, как и в [33], считалось, что ВТСП-пленка (температура фазового перехода $T_c = 90$ К, теплоемкость $c_p = 0.9$ Дж·см⁻³ × К⁻¹, скорость релаксации избытка тепла в подложку $\gamma_{ps}^{(Q)} = 5 \times 10^{-3}$ пс⁻¹, максимальная энергия акустического фонона $E_{max} \simeq 15$ мэВ, что соответствует пленке $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ на подложке из $SrTiO_3$) поглощает 30 %

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.ru

(толщина пленки ~ 200 нм) полной энергии (4×10^{-7} Дж) импульса накачки на длине волны $\lambda_p = 800$ нм, сфокусированного в пятно диаметром 150 мкм. Значения констант безызлучательной трехчастичной рекомбинации $\tilde{\gamma}_{\text{ehc}}^{(R)}$ и $\tilde{\gamma}_{\text{ehp}}^{(R)}$ соответствовали расчету [33].

Как и в [33], ширина щели $\Delta(T_0, T_c)$ в спектре состояний считалась не зависящей от t и полагалась константой («замороженная» щель), значение которой соответствовало пределу слабой связи в теории БКШ. При $T_0 > T_c$ распределение плотности состояний $g(E_c; \Delta \equiv 0)$ рассчитывалось по известным данным о зависимости энергии электрона E_c от его квазиимпульса k для зонной структуры La_2CuO_4 [36]. При интегрировании по k эти данные по описанной в [37] методике интерполировались на всю первую зону Бриллюэна. Далее зависимость $g(E_c; \Delta \equiv 0)$ в диапазоне энергий $|E_c - E_0^F| \leq 1$ эВ аппроксимировалась гладкой аналитической функцией, а при $T_0 \leq T_c$ в полученное таким образом распределение принудительно вводилась щель, т.е. электронные состояния с энергией, попадающей в слой шириной $2\Delta(T_0)$ в окрестности E_0^F , по методике [33] перераспределялись по остальным состояниям зоны Бриллюэна.

На рис. 1 показана достаточно резкая трансформация характера расчетной кинетики мгновенного сдвига уровня Ферми $\Delta E^F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$ относительно его исходного положения и скачка электронной температуры $\Delta T_c(t) = T_c(t) - T_0$ ВТСП-пленки при вариациях ее начальной температуры. Легко убедиться, что в условиях пикосекундного возбуждения амплитуда мгновенных отклонений термодинамических параметров ВТСП-пленки от своих равновесных значений с открытием в спектре состояний энергетической щели (окрестность точки $T_0 \simeq T_c$) резко растет, что, естественно, должно сказываться и на амплитуде нелинейного отклика.

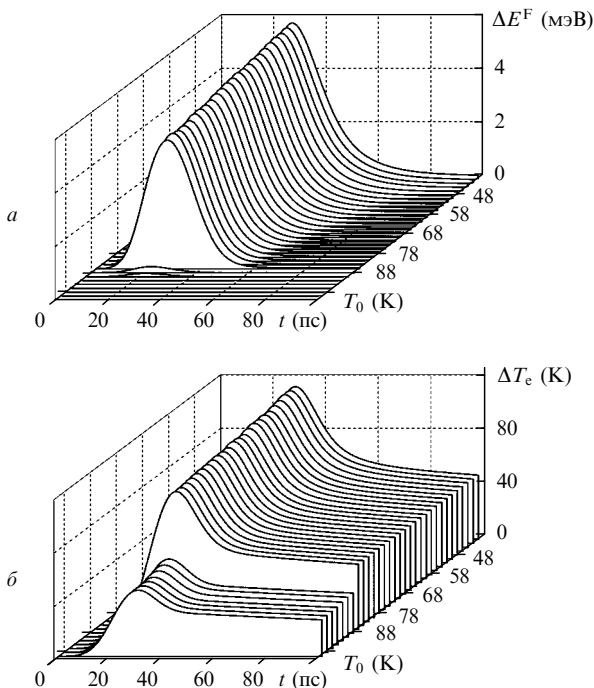


Рис. 1. Трансформация характера кинетики мгновенного сдвига уровня Ферми $\Delta E^F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$ (а) и электронной температуры $\Delta T_c(t) = T_c(t) - T_0$ (б) за счет действия пикосекундного ($\tau_p = 20$ пс) импульса накачки при изменении начальной температуры T_0 ВТСП-образца.

3. Электронная часть нелинейного отклика

Как и в [33], в дальнейшем считалось, что нелинейный отклик ВТСП-пленки определяется изменением $\Delta\varepsilon = \varepsilon(E_c^F; T_c) - \varepsilon(E_0^F; T_0)$ электронной части (обусловленной учетом вклада межзонных электронных переходов) ее комплексной диэлектрической проницаемости ε , связанным с отклонением E_c^F и T_c от своих равновесных значений E_0^F и T_0 . Расчет $\Delta\varepsilon$ проводился с использованием стандартного выражения

$$\varepsilon \sim \sum_{i \neq i'} \int \int \frac{|d_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2 n_i(\mathbf{k}) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}')] }{\omega - \Omega_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') + i\Gamma_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')} d\mathbf{k} d\mathbf{k}', \quad (1)$$

где индексы i и i' нумеруют зоны, задействованные в переходе $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$ с дипольным моментом $d_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ и резонансной частотой $\Omega_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = E_{i'}(\mathbf{k}') - E_i(\mathbf{k})$; $E_i(\mathbf{k})$ и $n_i(\mathbf{k})$ – нормированная энергия электрона и число заполнения состояния (i, \mathbf{k}) ; $\Gamma_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ – скорость релаксации межзонной поляризации.

При расчете $\Delta\varepsilon$ считалось, что переходы $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$ являются прямыми ($\mathbf{k} = \mathbf{k}'$), а величины $d_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = d$ и $\Gamma_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \Gamma = 5 \times 10^{12} \text{ с}^{-1}$ не зависят от i, i' и \mathbf{k} . Частоты $\Omega_{ii'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ находились интерполяцией тех же данных $E_i(\mathbf{k})$ для La_2CuO_4 при комнатной температуре [36] с учетом требований к симметрии и периодичности [37]. Охлаждение образца моделировалось заменой $E_i(\mathbf{k}) \rightarrow E_0^F \pm \{[E_i(\mathbf{k}) - E_0^F]^2 + \Delta^2(T_0)\}^{1/2}$ при $E_i(\mathbf{k}) > E_0^F$ и $E_i(\mathbf{k}) < E_0^F$ [35] соответственно, что отвечает перераспределению плотности состояний в окрестности поверхности Ферми, имитирующему фазовый переход. Интегрирование проводилось по зонам, попадающим в диапазон энергий $|E_i \pm E_0^F| \leq 2.5$ эВ, методом особых точек [38]. В отличие от [33], числа заполнения $n_i(\mathbf{k})$ в возбужденном состоянии считались заданными распределением Ферми–Дирака со средними по длительности импульса накачки $\tau_p = 20$ пс значениями термодинамических параметров $\langle E_c^F \rangle_t$ и $\langle T_c \rangle_t$ (рис. 1), что моделировало ситуацию с совмещением во времени импульсами накачки и зондирования.

Резкий скачок расчетной амплитуды индуцированных импульсом накачки изменений модуля диэлектрической проницаемости $\delta\varepsilon = |\varepsilon(E_c^F; T_c)| - |\varepsilon(E_0^F; T_0)|$ ВТСП-пленки при вариациях начальной температуры в окрестности точки фазового перехода $T_0 \sim T_c$ и зондировании образца на двух длинах волн ($\lambda = 800$ и 600 нм) иллюстрирует рис. 2. Отметим, что, как и в [33], знак $\delta\varepsilon$ в этих двух ситуациях оказывается разным. Это значит, что и в пикосекундном варианте спектроскопии пробного импульса на оси λ имеются точки, в окрестности которых $\Delta\varepsilon \equiv 0$, и именно эти точки и разделяют спектральные области с разными знаками изменений $\Delta\varepsilon$, наведенных импульсной накачкой. Отметим также, что аномальная температурная зависимость амплитуды нелинейного отклика исчезает при снижении энергии импульса накачки (т.е. при совпадении положений уровня Ферми для свободных электронов и дырок $E_{e,h}^F$ с его истинным положением E_0^F).

4. Заключение

Итак, наблюдавшиеся методом пробного импульса [6–10, 15, 18–22, 31, 32, 39, 40] и интерпретированные в [33] спектрально-временные особенности кинетики нелинейного отклика ВТСП-пленок при высоком уровне накачки имеют прямой аналог и в том случае, когда для

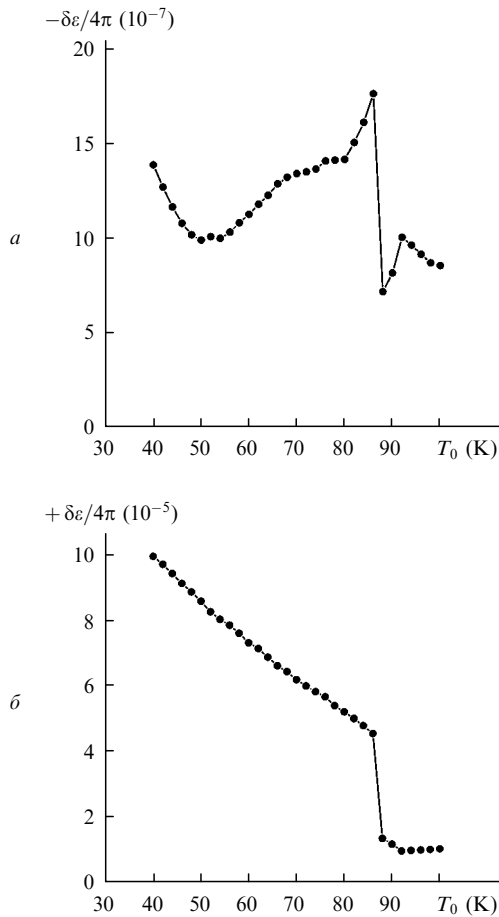


Рис.2. Зависимость амплитуды изменения модуля диэлектрической проницаемости $\delta\epsilon$ ВТСП-образца от его начальной температуры T_0 при пикосекундном ($\tau_p = 20$ пс) возбуждении и зондировании на длинах волн $\lambda = 800$ (а) и 625 нм (б).

возбуждения и зондирования возбужденного состояния ВТСП-пленки используются существенно более длинные, совмещенные во времени пикосекундные импульсы. В этом случае за счет вырождения должна наблюдаться весьма нетривиальная (с резким скачком в окрестности точки $T_0 \simeq T_c$) зависимость амплитуды нелинейного отклика ВТСП-образца от его начальной температуры. На наш взгляд, это существенно расширяет круг экспериментов, способных подтвердить или опровергнуть корректность кинетической модели, основанной на учете вклада межзонных электронных переходов в нелинейный отклик возбужденной ВТСП-пленки с «замороженной» (метастабильной [33–35, 41]) энергетической целью.

Отметим также, что с учетом возможности интерференции нескольких вкладов в нелинейный отклик ВТСП нетривиальная температурная зависимость амплитуды одного из них (резонансной части отклика) должна существенно сказываться на характере данных, полученных и другими методами пикосекундной когерентной нелинейной спектроскопии ВТСП, например методом бигармонической накачки [42].

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

- Rothwarf A., Taylor B.N. *Phys. Rev. Lett.*, **19**, 27 (1967).
- Owen C.S., Scalapino D.J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1559 (1972).
- Parker W.H., Williams W.D. *Phys. Rev. Lett.*, **29**, 924 (1972).
- Schuller I., Gray K.E. *Phys. Rev. Lett.*, **36**, 429 (1976).
- Bluzer N. *J. Appl. Phys.*, **71**, 1336 (1992).
- Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 2172 (1990).
- Han S.G. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 2708 (1990).
- Гершензон М.Е. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **52**, 1189 (1990).
- Kazeroonian A.S. et al. *Solid State Commun.*, **78**, 95 (1991).
- Chekalin S.V. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3860 (1991).
- Bluzer N. *Phys. Rev. B*, **44**, 10222 (1991).
- Hegman F.A. et al. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 1158 (1993).
- Zherikhin A.N. et al. *Physica C*, **221**, 311 (1994).
- Жерихин А.Н. и др. *Квантовая электроника*, **21**, 574 (1994).
- Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. B*, **49**, 6185 (1994).
- Buhleier R. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 9672 (1994).
- White J.O. et al. *Physica C*, **235-240**, 2025 (1994).
- Stevens C.J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2212 (1997).
- Smith D.C. et al. *J. Low Temp. Phys.*, **117**, 1059 (1999).
- Demsar J. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 054519 (2001).
- Segre G.P. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 137001 (2002).
- Schneider M.L. et al. *Eur. Phys. J. B*, **36**, 327 (2003).
- Allen P.B. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1460 (1987).
- Nessler W. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 4480 (1998).
- Sun C.K. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 15337 (1994).
- Lucas G., Stephen M.J. *Phys. Rev.*, **154**, 349 (1967).
- Woo J.W.F., Abrahams E. *Phys. Rev.*, **169**, 407 (1968).
- Schmid A., Schoen G. *J. Low Temp. Phys.*, **20**, 207 (1975).
- Demsar J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 4918 (1999).
- Tinkham M., Clarke J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1366 (1972).
- Kabanov V.V. et al. *Phys. Rev. B*, **61**, 1477 (2000).
- Farztdinov V.M. et al. *Brazilian J. Phys.*, **26**, 482 (1996).
- Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 720 (2005).
- Воронов А.В. *ЖЭТФ*, **120**, 1256 (2001).
- Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 102 (2005).
- Perry J.K. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 144501 (2001).
- Kornienko A.G. et al. *J. Appl. Phys.*, **80**, 2396 (1996); Петникова В.М. и др. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
- Chadi D.J., Cohen M.L. *Phys. Rev. B*, **8**, 5747 (1973).
- Demsar J. cond-mat/0305597 (2003).
- Schneider M.L. et al. *Europhys. Lett.*, **60**, 460 (2002).
- Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 729 (2005).
- Grishanin V.A. et al. *Laser Phys.*, **3**, 121 (1993).