

Асимметрия стоксовой и антистоксовой компонент нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников в методе пикосекундной бигармонической накачки

Ю.В.Бобырев, В.М.Петникова, Г.А.Роянова, К.В.Руденко, В.В.Шувалов

В рамках предположения о нелинейном отклике высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), обусловленном межзонными переходами в спектре состояний с метастабильной энергетической щелью, показано, что стоксова и антистоксова компоненты отклика ВТСП на пикосекундную бигармоническую накачку асимметричны, и при частотных расстройках импульсов возбуждения свыше 100 см^{-1} эффективность самодифракции в соответствующих этим двум компонентам направлениях различна.

Ключевые слова: нелинейный отклик высокотемпературных сверхпроводников, пикосекундная бигармоническая накачка, эффективность стоксовой и антистоксовой компонент самодифракции.

1. Введение

В работах [1–5] спектрально-временные и температурные особенности нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), наблюдавшиеся при разных уровнях возбуждения разными методами фемто- и пикосекундной спектроскопии [6–17], были интерпретированы в рамках модели, основанной на двух допущениях. Предполагалось, что энергетическая щель в спектре состояний ВТСП является метастабильной [18] и что электронная часть нелинейного отклика обусловлена межзонными переходами [12, 19–26]. В [4, 5], в частности, было показано, что характерный провал на зависимости эффективности η самодифракции (генерация поля на частоте $2\omega_1 - \omega_2$) от расстройки $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$ частот $\omega_{1,2}$ компонент пикосекундной бигармонической накачки (БН) (рис. 1, а), о появлении которого вблизи точки $T_0 \simeq T_c$ (переход в сверхпроводящее состояние) сообщалось в [7, 9, 10], позволяет определить зависимость ширины щели Δ от T_0 – начальной температуры ВТСП-образца.

В отсутствие вырождения по частотам ($\Delta\omega \neq 0$, метод БН) построенная в [4, 5] модель допускает появление в нелинейном отклике определенной асимметрии, т. е. разных зависимостей $\eta(\Delta\omega, T_0)$ для двух разных направлений ($2\mathbf{k}_{1,2} - \mathbf{k}_{2,1}$) и частот ($2\omega_{1,2} - \omega_{2,1}$) сигнала самодифракции (рис. 1, а), где $\mathbf{k}_{1,2}$ – волновые векторы компонент БН. Это связано с тем, что в электронной части зависимости $\Delta\varepsilon(\omega)$ имеются спектральные особенности [6, 12], обусловленные существованием однофотонных межзонных резонансов [1–5]. Здесь $\Delta\varepsilon(\omega) = \varepsilon(\omega; E_c^F, T_c) - \varepsilon(\omega; E_c^F, T_0)$ – изменение диэлектрической проницаемости образца ε на частоте ω , вызванное отклонением по-

ложения уровня Ферми E_c^F и электронной температуры T_c от своих равновесных значений E_0^F и T_0 соответственно. Качественно это утверждение иллюстрирует рис. 1, б, на котором показана асимметрия положения частот $\omega_{1,2}$

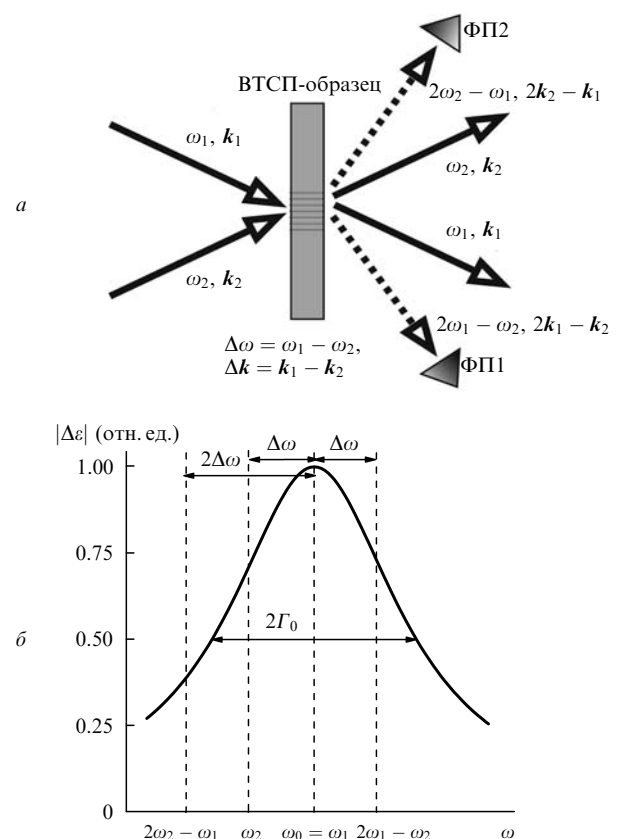


Рис. 1. Геометрия взаимодействия компонент накачки на частотах $\omega_{1,2}$ с волновыми векторами $\mathbf{k}_{1,2}$ – сигнал самодифракции на частотах $2\omega_{1,2} - \omega_{2,1}$, детектируемый фотоприемниками ФП1,2 в направлениях $2\mathbf{k}_{1,2} - \mathbf{k}_{2,1}$ (а) и изменение положения частот $\omega_{1,2}$ и $2\omega_{1,2} - \omega_{2,1}$ относительно однофотонной резонансной особенности в $|\Delta\varepsilon|$ шириной Γ_0 при введении частотной расстройки $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$ (б).

Ю.В.Бобырев, В.М.Петникова, Г.А.Роянова, 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

Поступила в редакцию 5 июля 2006 г.

и $2\omega_{1,2} - \omega_{2,1}$ взаимодействующих волн на оси ω (при $\Delta\omega \neq 0$) относительно точки $\omega_0 = \omega_1$ однофотонного резонанса шириной Γ_0 . В дальнейшем в соответствии с установившейся терминологией компоненты нелинейного отклика на частотах $2\omega_2 - \omega_1$ и $2\omega_1 - \omega_2$ мы будем называть стоксовой и антистоксовой (см. рис.1,б). Отметим, что асимметрия этих компонент в методе пикосекундной БН уже наблюдалась ранее в экспериментах с тонкими пленками узкозонных полупроводников $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [27].

Ниже, основываясь на приведенной в [3, 5] расчетной кинетике $E_c^F(t)$ и $T_c(t)$ и на модели нелинейного отклика ВТСП в методе БН, описанной в [4, 5], будет показано, что при совмещении импульсов накачки во времени t указанная асимметрия действительно существует, но лишь в области больших частотных расстройек ($\Delta\omega > 100 \text{ см}^{-1}$).

2. Модель нелинейного отклика

Описание процесса самодифракции проводилось в рамках модели когерентного четырехфотонного отклика, развитой в [4, 5]. При этом считалось, что полная кубическая нелинейная восприимчивость ВТСП-образца включает в себя несколько составляющих [28]:

$$\chi = \chi_{\text{nr}} + \chi_r + \chi_s + \chi_0. \quad (1)$$

Здесь χ_{nr} и χ_r – нерезонансная и резонансная (см. [4, 5]) части электронного нелинейного отклика, обусловленные прямыми и непрямыми межзонными переходами; χ_s – составляющая, связанная с процессами возбуждения акустических фононов; χ_0 – константа, обусловленная погрешностями используемой модели. Расчет вкладов всех перечисленных выше составляющих в χ для антистоксовой компоненты отклика на частоте $2\omega_1 - \omega_2$ полностью повторял процедуры, подробно описанные в [5], и поэтому на их деталях мы здесь останавливаться не будем.

Расчет χ_{nr} для стоксовой компоненты на частоте $2\omega_2 - \omega_1$ проводился аналогичным образом, однако при этом в резонансных знаменателях P_0 и P_{\pm} (формулы (58), (59) из работы [5]) совершалась замена $\omega_1 \rightarrow \omega_2 = \omega_1 + \Delta\omega$. Частота $\Delta\omega$ комбинационного резонанса в знаменателях K_{\pm} (формула (60) из работы [5]) при этом, естественно, не менялась. Частоты однофотонных резонансов в P_0 и P_{\pm} находились интерполяцией тех же [29] данных о зонной структуре (энергии $E_i(\mathbf{k}_e)$ электрона в состоянии (i, \mathbf{k}_e) , где i нумерует зоны электронных состояний, \mathbf{k}_e – квазиимпульс) для La_2CuO_4 при комнатной температуре с учетом требований симметрии и периодичности [30]. Охлаждение ВТСП-образца моделировалось той же заменой, $E_i(\mathbf{k}_e) \rightarrow E_0^F \pm \{[E_i(\mathbf{k}_e) - E_0^F]^2 + \Delta^2(T_0)\}^{1/2}$ при $E_i(\mathbf{k}_e) > E_0^F$ и $E_i(\mathbf{k}_e) < E_0^F$ соответственно, описывающей перераспределение плотности состояний вблизи поверхности Ферми при фазовом переходе. Ширина энергетической щели

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

считалась константой, зависящей только от T_0 и T_c («замороженная» [18] щель s-симметрии в приближении слабой связи теории БКШ [31]). Здесь k_B – постоянная Больцмана. Учитывались зоны, попадающие в диапазон $|E_i(\mathbf{k}_e) \pm E_0^F| \leq 2.5 \text{ эВ}$. Как и в [4, 5], величина χ_r рассчитывалась в рамках модели эффективной двухуровневой

системы, а χ_s – из традиционного соотношения для нелинейности мандельштам-бриллоэновского типа [28], свернутого со спектрами компонент БН шириной $\delta\omega = 1.5 \text{ см}^{-1}$ [8, 9] с учетом малости скорости затухания звука.

При численном моделировании считалось, что в точке $\Delta\omega = 0$ обе компоненты БН имеют длины волн $\lambda_0 = 625, 630$ и 650 нм . Как и в [3, 5], моделировалась ситуация с совмещенными во времени моментами прихода импульсов БН длительностью $\tau_p = 20 \text{ пс}$ (использовались средние по τ_p значения E_c^F и T_c) в пленку $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($T_c = 91 \text{ К}$) на подложке из SrTiO_3 , поглощающей 30% (толщина пленки $\sim 200 \text{ нм}$) полной энергии $4 \times 10^{-7} \text{ Дж}$ импульсов накачки, сфокусированных в пятно диаметром 150 мкм [7, 9, 10]. Значения всех свободных параметров модели соответствовали приведенным в работе [5], т. е. относительные амплитуды составляющих χ_r , χ_s и χ_0 были определены так, чтобы при $\lambda_0 = 625 \text{ нм}$ зависимость $\eta(\Delta\omega, T_0) \propto |\chi(\Delta\omega, T_0)|^2$ для антистоксовой компоненты нелинейного отклика соответствовала данным эксперимента [9], т. е. имела провалы в точках $\Delta\omega = 10$ и 63 см^{-1} при $T_0 = 90$ и 80 К . Скорости релаксации поляризации при расчете χ_{nr} и χ_r имели те же, что и в [4, 5], значения $\Gamma = 150$ и 50 см^{-1} , что обеспечивало согласие расчетной ширины спектральных особенностей $\Delta\varepsilon(\omega)$ и данных реальных экспериментов [6, 12].

3. Результаты моделирования

Характер изменения действительной (Re) и мнимой (Im) частей χ_{nr} на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$ для антистоксовой и стоксовой компонент нелинейного отклика и точек совмещения частот компонент БН $\lambda_0 = 625, 630$ и 650 нм показан на рис.2 и 3. Легко убедиться, что в диапазоне частотных расстройек $\Delta\omega < 100 \text{ см}^{-1}$ при всех T_0 и λ_0 зависимости $\chi_{\text{nr}}(\Delta\omega)$ для компонент отклика на частотах $2\omega_2 - \omega_1$ и $2\omega_1 - \omega_2$ идентичны. И лишь при $\Delta\omega > 100 \text{ см}^{-1}$ появляется асимметрия, особенно заметная в мнимой части χ_{nr} (рис.3), которая заметно растет с увеличением $\Delta\omega$. На первый взгляд, с учетом использованного в рамках расчета χ_{nr} значения $\Gamma = 150 \text{ см}^{-1}$ этот результат кажется достаточно очевидным. Однако это не совсем так, поскольку речь здесь идет об интегральных выражениях, описывающих $\chi_{\text{nr}}(\Delta\omega)$, в которых даже слабая асимметрия множества интерферирующих слагаемых может привести к резкой асимметрии результата интерференции.

Зависимости $\chi_r(\Delta\omega, T_0)$ и $\chi_s(\Delta\omega, T_0)$ здесь не приведены, т. к. они не изменяются при вариации λ_0 , симметричны относительно перестановки $\omega_1 \leftrightarrow \omega_2$ и просто повторяют зависимости, приведенные в [5]. В принципе, ничего удивительного в этом нет, поскольку использованные при описании вкладов этих составляющих нелинейного отклика модели симметричны уже по характеру своего построения.

На рис.4 показан расчетный характер трансформации зависимости модуля полного нелинейного отклика $|\chi(\Delta\omega, T_0)|$ для антистоксовой и стоксовой компонент и тех же точек совмещения частот $\lambda_0 = 625, 630$ и 650 нм . Естественно, что в диапазоне частотных расстройек $\Delta\omega < 100 \text{ см}^{-1}$ при всех T_0 и λ_0 зависимости $|\chi(\Delta\omega)|$ для компонент отклика на частотах $2\omega_2 - \omega_1$ и $2\omega_1 - \omega_2$ также оказываются идентичными. И лишь при $\Delta\omega > 100 \text{ см}^{-1}$ в них появляется асимметрия, растущая с ростом $\Delta\omega$ и обусловленная асимметричностью вклада χ_{nr} в полный нелинейный отклик.

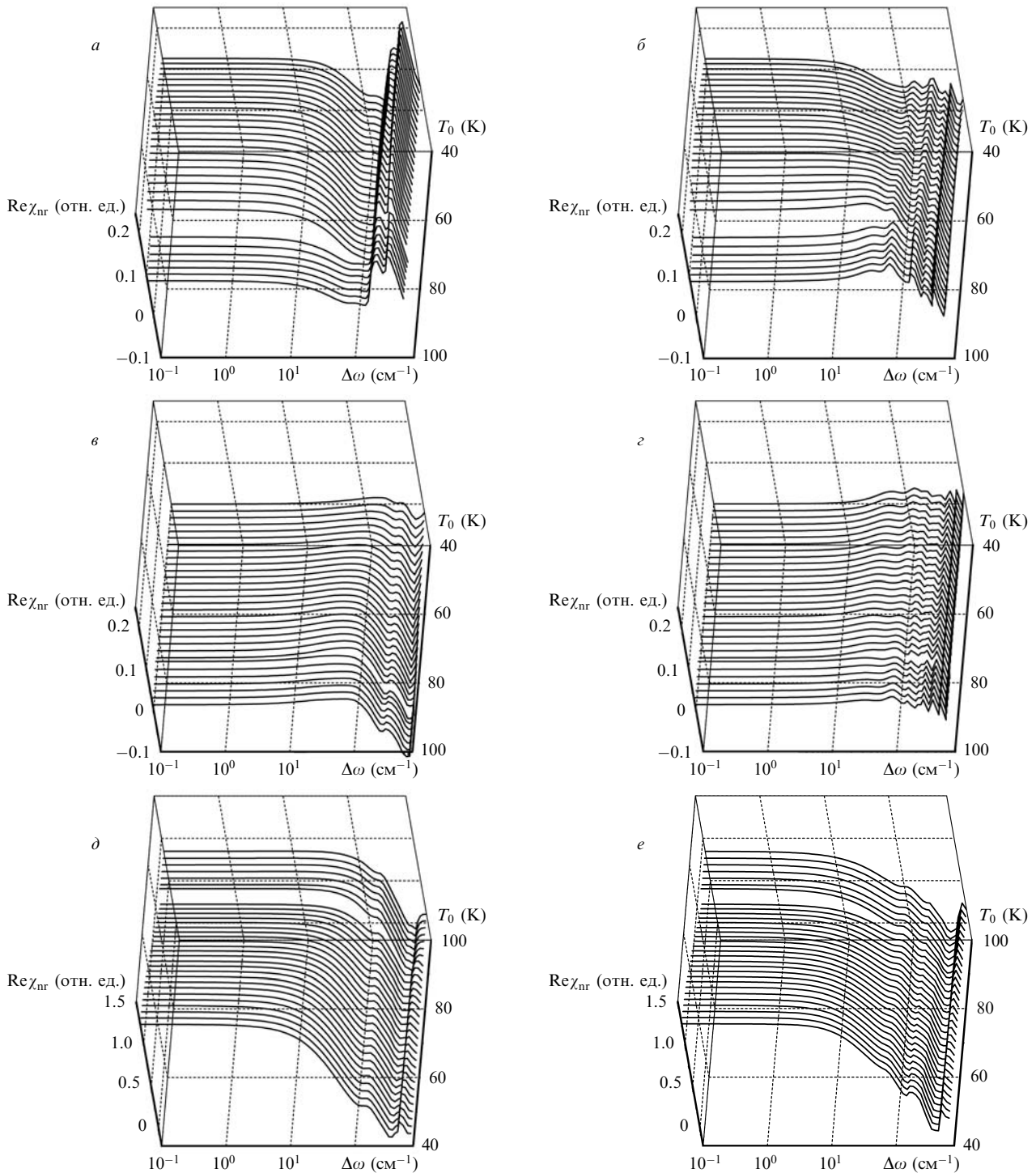


Рис.2. Изменение действительной части $\text{Re}\chi_{\text{nr}}$ нерезонансной составляющей полной нелинейной восприимчивости образца на частотах $2\omega_1 - \omega_2$ (a, b, d) и $2\omega_2 - \omega_1$ (b, c, e) на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Точка $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda_0 = 625$ (a, b), 630 (b, c) и 650 нм (d, e).

Отметим, что этот результат отличается от данных эксперимента [27], согласно которым уже при сравнительно малых ($\Delta\omega \sim 10 \text{ см}^{-1}$) частотных расстройках компонент БН зависимости $\eta(\Delta\omega)$ для антистоксовой и стоксовой компонент нелинейного отклика пленок узкозонных полупроводников $\text{PrVa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ заметно отличаются друг от друга.

4. Заключение

Итак, в рамках описанной в [4, 5] модели нелинейного отклика ВТСП для метода пикосекундной бигармониче-

ской накачки с учетом рассчитанных в [3, 5] средних (по длительности совмещенных импульсов накачки) изменений положения уровня Ферми E_c^F и электронной температуры T_e нами показано, что стоксова и антистоксова компоненты нелинейного отклика ВТСП асимметричны. Это означает, что при частотных расстройках компонент БН $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2 > 100 \text{ см}^{-1}$ генерация сигнала самодифракции в направлениях $2\mathbf{k}_{1,2} - \mathbf{k}_{2,1}$ на частотах $2\omega_{1,2} - \omega_{2,1}$ идет с разной эффективностью η за счет наличия однофотонных межзонных резонансов. Тем не менее благодаря симметрии нелинейного отклика ВТСП в области малых частотных расстройек ($\Delta\omega < 100 \text{ см}^{-1}$) по

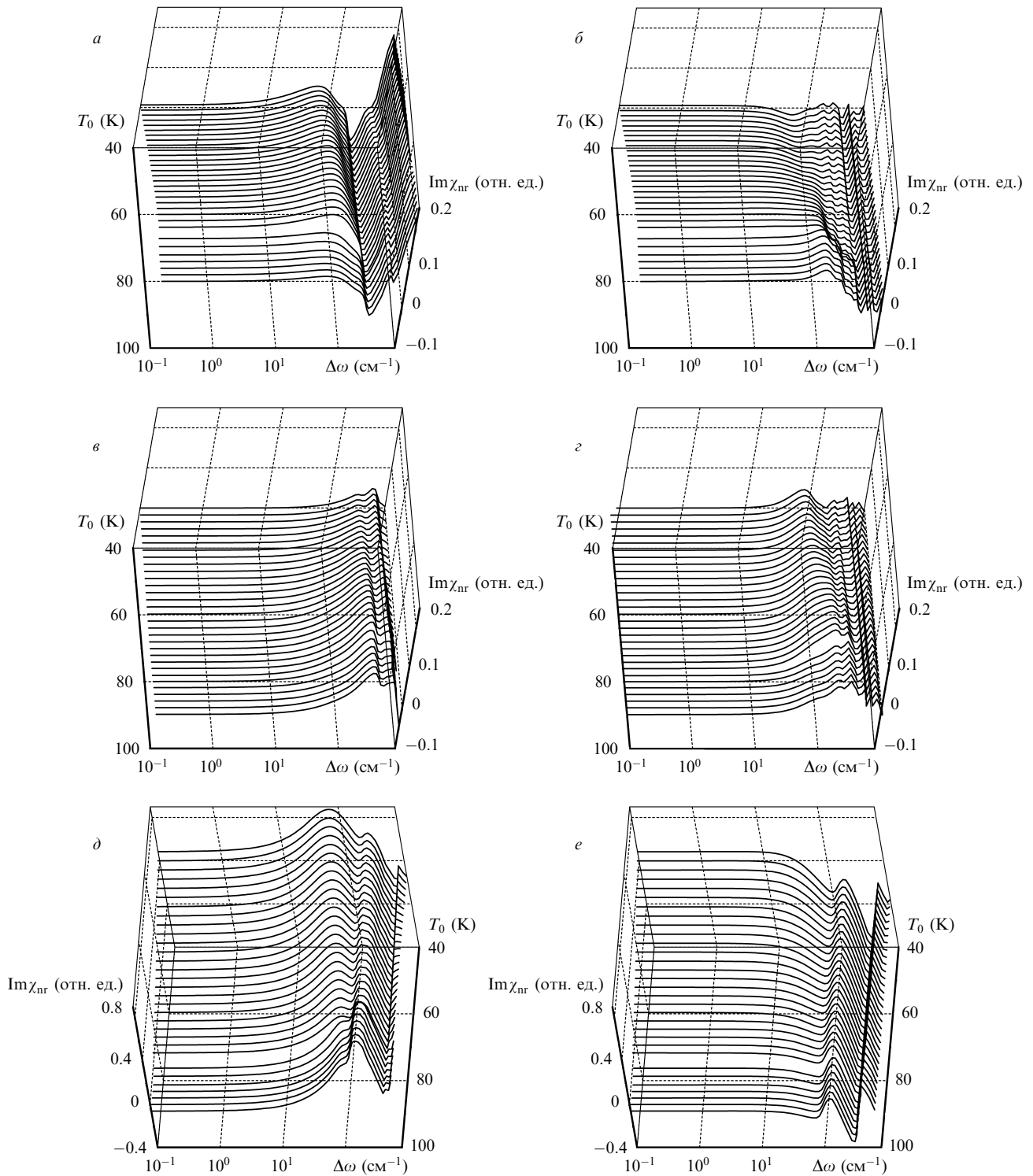


Рис.3. Изменение мнимой части $\text{Im}\chi_{nr}$ нерезонансной составляющей полной нелинейной восприимчивости образца на частотах $2\omega_1 - \omega_2$ (a, c, d) и $2\omega_2 - \omega_1$ (b, e, f) на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Точка $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda_0 = 625$ (a, b), 630 (c, e) и 650 нм (d, f).

экспериментально измеренной зависимости $\eta(\Delta\omega, T_0)$ как стоксовой, так и антистоксовой компонент сохраняется возможность определить зависимость ширины энергетической щели Δ в спектре состояний ВТСП-образца от его начальной температуры T_0 по наличию характерного двухфотонного резонанса.

1. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 720 (2005).
2. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 729 (2005).
3. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 1039 (2005).

4. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **36**, 408 (2006).
5. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **36**, 895 (2006).
6. Chekalin S.V. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3860 (1991).
7. Bagratashvili V. et al. *Phys. Lett. A*, **164**, 99 (1992).
8. Bonn D.A. et al. *Phys. Rev. B*, **47**, 11314 (1993).
9. Zherikhin A.N. et al. *Phys. Lett. A*, **179**, 145 (1993).
10. Zherikhin A.N. et al. *Physica C*, **221**, 311 (1994).
11. Quinlan S.M. et al. *Phys. Rev. B*, **49**, 1470 (1994).
12. Farztdinov V.M. et al. *Brazilian J. Phys.*, **26**, 482 (1996).
13. Smith D.C. et al. *J. Low Temperature Phys.*, **117**, 1059 (1999).
14. Demsar J. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 054519 (2001).

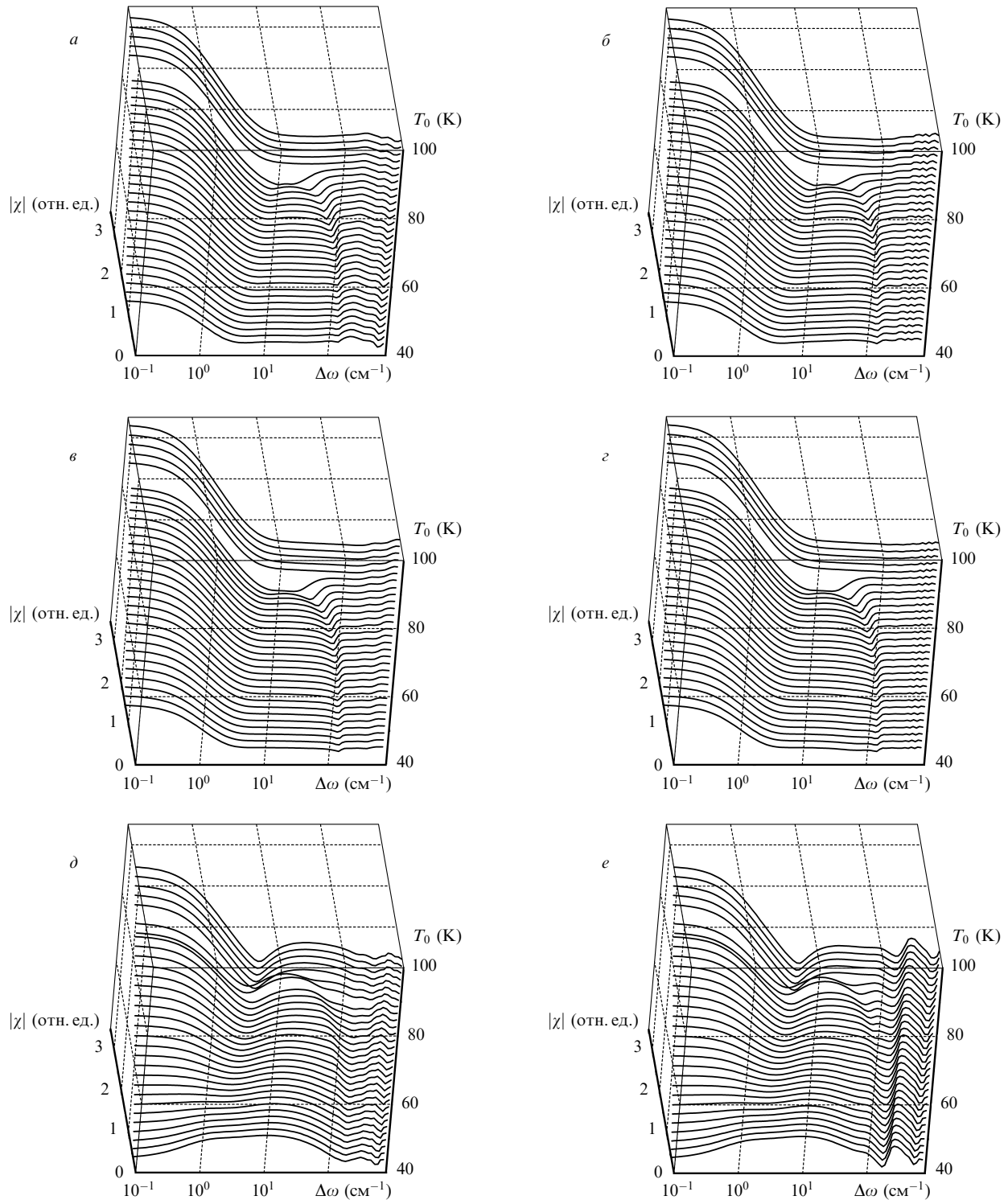


Рис.4. Изменение модуля $|\chi|$ полной нелинейной восприимчивости образца на частотах $2\omega_1 - \omega_2$ (а, в, д) и $2\omega_2 - \omega_1$ (б, з, е) на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Точка $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda_0 = 625$ (а, б), 630 (в, з) и 650 нм (д, е).

15. Segre G.P. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 137001 (2002).
16. Schneider M.L. et al. *Europhys. Lett.*, **60**, 460 (2002).
17. Schneider M.L. et al. *Eur. Phys. J. B*, **36**, 327 (2003).
18. Воронов А.В. *ЖЭТФ*, **120**, 1256 (2001).
19. Dobryakov A.L. et al. *Phys. Scripta*, **60**, 572 (1999).
20. Farztdinov V.M. et al. *Phys. Scripta*, **60**, 579 (1999).
21. Lozovik Yu.E. et al. *Laser Phys.*, **9**, 557 (1999).
22. Петникова В.М. и др. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
23. Kuznetsova L.P. et al. *J. o Raman Spectroscopy*, **31**, 755 (2000).
24. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **31**, 1067 (2001).
25. Devos A., Lerouge C. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 2669 (2001).
26. Бобырев Ю.В. *Квантовая электроника*, **32**, 789 (2002).
27. Жерихин А.Н. и др. *Квантовая электроника*, **21**, 574 (1994).
28. Schubert M., Wilhelmi B. *Nonlinear Optics and Quantum Electronics* (New York: Wiley, 1986).
29. Perry J.K. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 144501 (2001).
30. Kornienko A.G. et al. *J. Appl. Phys.*, **80**, 2396 (1996); Петникова В.М. и др. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
31. Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. *Статистическая физика. Ч.2. Теория конденсированного состояния* (М.: Наука, 1978).