

Спектральные и температурные особенности когерентного пикосекундного нелинейного отклика ВТСП при низком уровне возбуждения

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

Показано, что при правильном выборе спектрального диапазона измерений (точки совмещения частот компонент накачки в методах бигармонической накачки и вырожденной четырехфотонной спектроскопии) спектральные и температурные особенности пикосекундного нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), обусловленного межзонными переходами в спектре состояний с метастабильной энергетической щелью, устойчивы по отношению к уровню возбуждения. При этом характер наблюдаемых особенностей определяется резонансной составляющей полного нелинейного отклика, которая формируется при начальных температурах ВТСП ниже температуры точки фазового перехода (при появлении энергетической щели в спектре состояний).

Ключевые слова: спектральные и температурные особенности нелинейного отклика ВТСП, методы пикосекундной бигармонической накачки и вырожденной четырехфотонной спектроскопии, высокий и низкий уровни возбуждения.

1. Введение

В работах [1–6] спектральные, временные и температурные особенности нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), наблюдавшиеся методами фемто- и пикосекундной спектроскопии [7–15], были интерпретированы в рамках модели, основанной на двух допущениях. Считалось, что щель в спектре состояний ВТСП является метастабильной [16] и что электронная часть нелинейного отклика обусловлена межзонными переходами [10, 17–21]. В частности в [4–6] было показано, что при возбуждении импульсами с энергией $W_p = 4 \times 10^{-7}$ Дж и длительностью $\tau_p = 20$ пс наличие характерного провала 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 бигармонической накачки (БН), формирующегося вблизи критической температуры T_c точки фазового перехода [8, 9], $T_0 \sim T_c$, позволяет определить зависимость ширины щели Δ в спектре состояний от начальной температуры T_0 образца. Было установлено, что при частотном вырождении компонент накачки ($\omega_1 = \omega_2$, метод вырожденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС)) вблизи той же точки с $T_0 \sim T_c$ на зависимости $\eta(T_0)$ формируется скачок. Возникновение последнего может быть результатом как отклонения положений E_c^F и E_h^F уровня Ферми для свободных электронов (состояния над щелью в спектре состояний) и дырок (аналогичные состояния под щелью) $|E_{c,h}^F - E_0^F| \sim 5$ мэВ и электронной температуры $T_c - T_0 \sim 50$ К от своих равновесных значений E_0^F и T_0 [3, 5], так и появления резонансной составляющей χ_r в электронной части нелинейного отклика [4–6].

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

Поступила в редакцию 26 апреля 2007 г., после доработки – 28 июня 2007 г.

Основной целью настоящей работы является выяснение причин такого поведения зависимостей $\eta(T_0)$ в окрестности точки с $T_0 \sim T_c$. Для этого ниже с использованием той же модели нелинейного отклика и тех же значений подгоночных параметров, что и в [1–6], проведено сравнение нелинейного отклика в двух разных ситуациях. Первая из них соответствует тому же (далее – высокому), что и в [1–6], уровню возбуждения ($W_p = 4 \times 10^{-7}$ Дж), а вторая – предельно низкому (далее – низкому, $W_p \rightarrow 0$), при котором уровень Ферми и электронная температура в ВТСП-образце в любой момент времени имеют строго равновесные (начальные) значения.

2. Модель нелинейного отклика и параметры моделирования

Процесс самодифракции описывался в рамках модели четырехфотонного отклика, развитой в [4–6]. Считалось, что полная кубическая нелинейная восприимчивость ВТСП-образца χ включает в себя несколько составляющих:

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

Здесь χ_{nr} и χ_r – нерезонансная и резонансная части электронного нелинейного отклика, отвечающие прямым и непрямым двухфотонным межзонным переходам (см. [4–6]); χ_s – составляющая, обусловленная возбуждением акустических фононов; χ_0 – константа (нерезонансная восприимчивость, учитывающая вклады далеких зон). Расчет вкладов перечисленных составляющих проводился для компоненты нелинейного отклика на частоте $2\omega_1 - \omega_2$ и полностью повторял процедуры, описанные в [4–6].

При расчете χ_{nr} частоты резонансов находились интерполяцией тех же [22] данных о зонной структуре La_2CuO_4 (энергии $E_i(\mathbf{k}_c)$ электрона в состоянии (i, \mathbf{k}_c) , где i – номер зоны, \mathbf{k}_c – квазиимпульс) с учетом требований к симметрии и периодичности [23]. Охлаждение

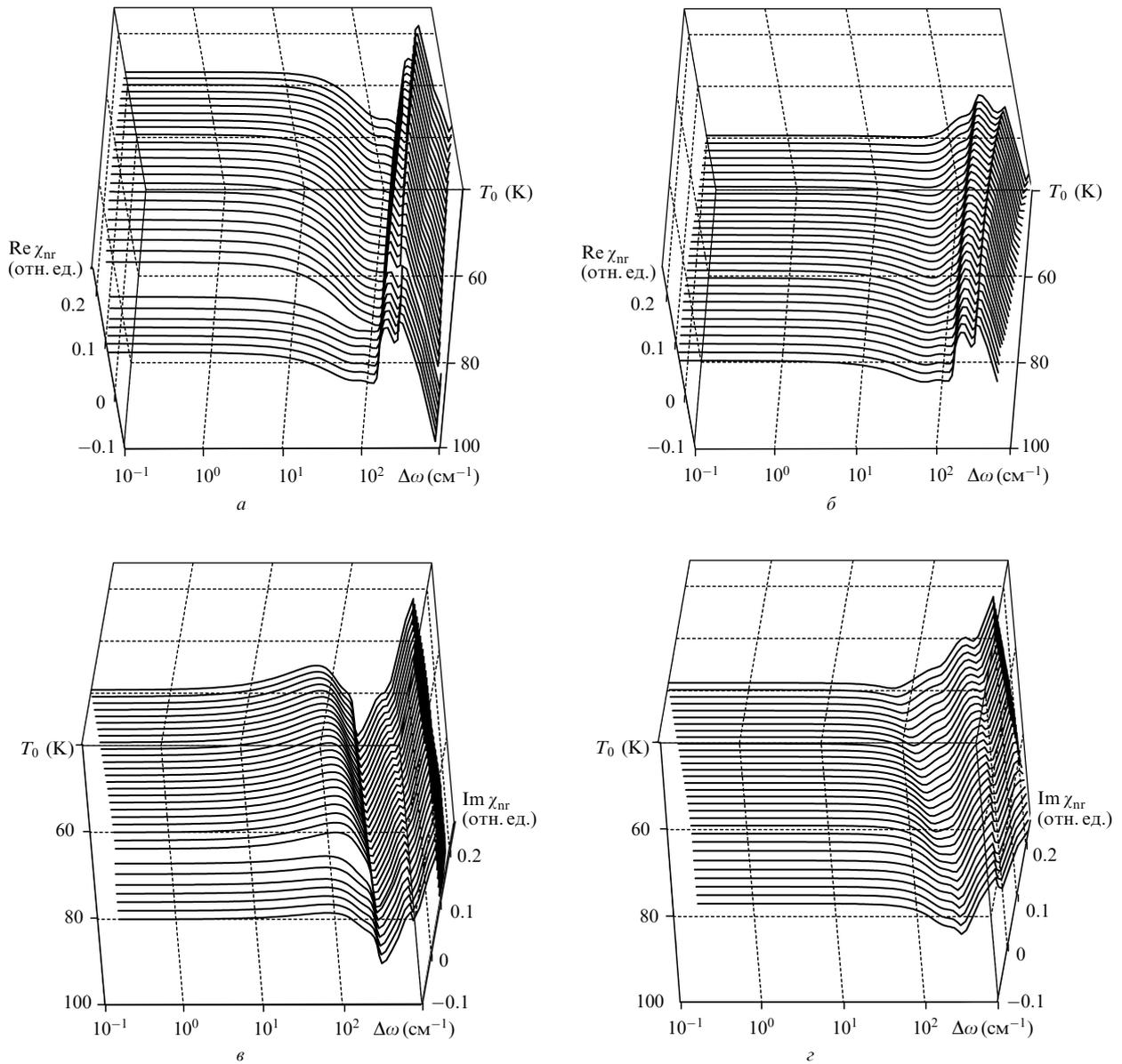


Рис.1. Изменения действительной ($Re\chi_{nr}$, $a, б$) и мнимой ($Im\chi_{nr}$, $в, г$) частей нерезонансной составляющей χ_{nr} электронной нелинейной восприимчивости на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Метод БН при высоком ($a, в$) и низком ($б, г$) уровнях возбуждения; точка $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda_0 = 625$ нм.

ВТСП-образца описывалось заменой $E_i(\mathbf{k}_e) \rightarrow E_0^F \pm \{[E_i(\mathbf{k}_e) - E_0^F]^2 + \Delta(T_0)^2\}^{1/2}$ при $E_i(\mathbf{k}_e) > E_0^F$ и $E_i(\mathbf{k}_e) < E_0^F$ соответственно, моделирующей перераспределение плотности состояний вблизи поверхности Ферми при фазовом переходе. Существование энергетической псевдощели в спектре состояний ВТСП-образца при $T_0 > T_c$, как и в [1–6], не учитывалось. Поэтому ширина энергетической щели

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

считалась величиной, зависящей только от T_0 и T_c («замороженная» [16] щель s-симметрии в приближении слабой связи теории БКШ [24]). Здесь k_B – постоянная Больцмана. Интегрирование выражений для электронной части отклика (формулы (58), (59) из работы [5]) проводилось по зонам, для которых $|E_i(\mathbf{k}_e) \pm E_0^F| \leq 2.5$ эВ. При расчете χ_{nr} и χ_r скорости Γ фазовой релаксации были

теми же, что и в [4–6], и составляли 150 и 50 cm^{-1} соответственно, что обеспечивало согласие расчетной ширины спектральных особенностей отклика с данными экспериментов [7, 10]. Как и в [4, 6], величина χ_r рассчитывалась в рамках модели эффективной двухуровневой системы [25], а χ_s – с использованием традиционного соотношения для нелинейности мандельштам–бриллюэновского типа [26], свернутого со спектрами компонент БН шириной $\delta\omega = 1.5$ cm^{-1} [8, 9] в предположении малой скорости затухания звука. Значения остальных параметров модели соответствовали [4–6], т. е. относительные амплитуды составляющих χ_r , χ_s и χ_0 были выбраны такими, чтобы при выборе положения точки совмещения частот (частотная расстройка $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2 = 0$), соответствующей длине волны $\lambda_0 = 625$ нм обеих компонент БН, при введении расстройки зависимость $\eta(\Delta\omega, T_0) \propto |\chi(\Delta\omega, T_0)|^2$ имела провалы в точках $\Delta\omega = 10$ и 63 cm^{-1} при $T_0 = 90$ и 80 К соответственно, что согласуется с данными эксперимента [8].

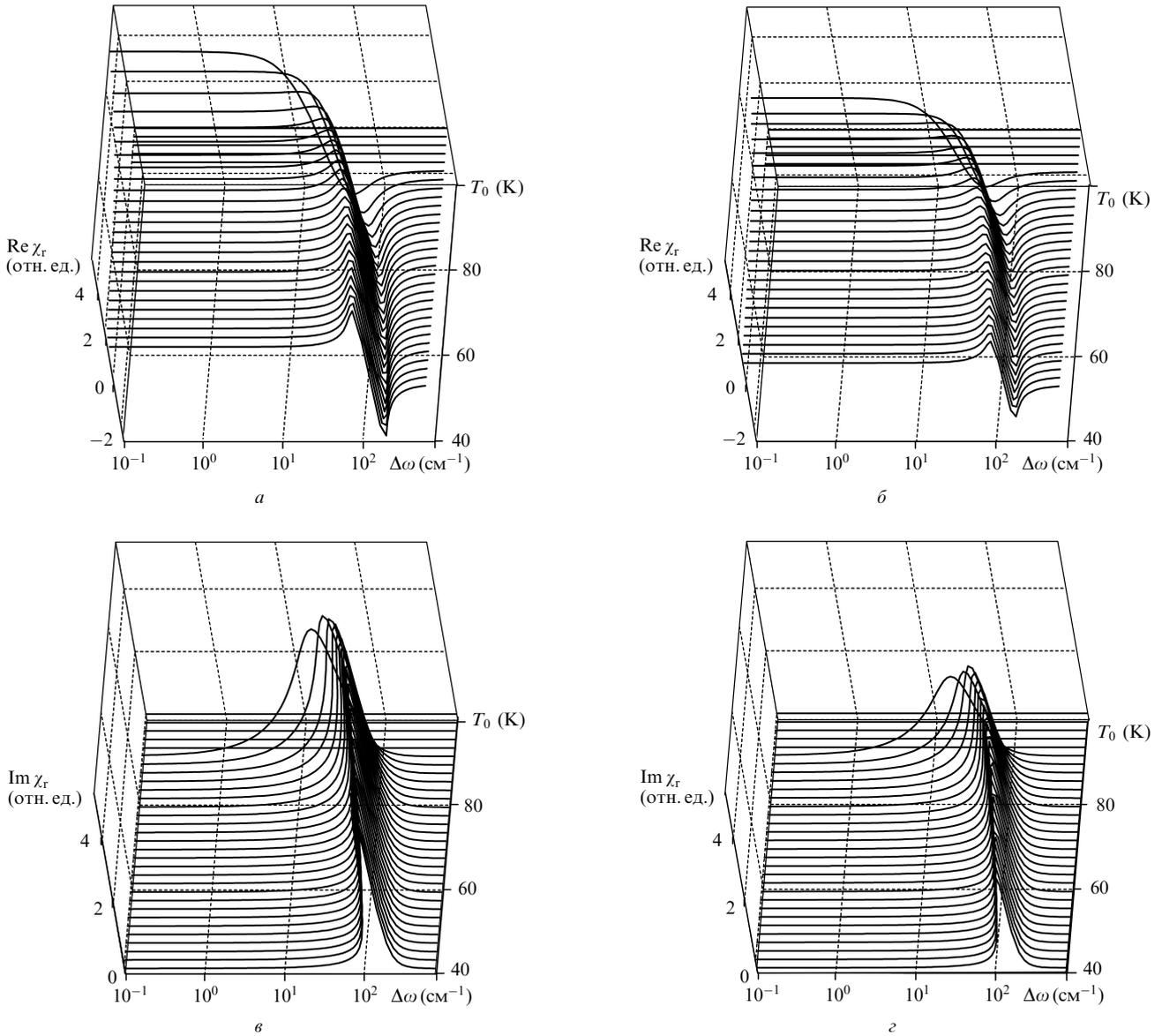


Рис.2. Изменения действительной ($\text{Re}\chi_r$, a, b) и мнимой ($\text{Im}\chi_r$, c, d) частей резонансной составляющей χ_r электронной нелинейной восприимчивости на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Метод БН при высоком (a, c) и низком (b, d) уровнях возбуждения; точка $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda_0 = 625$ нм.

Как и в [3–6], высокий уровень возбуждения отвечал ситуации с совмещенными моментами прихода импульсов возбуждения – зондирования длительностью $\tau_p = 20$ пс в пленку $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($T_c = 91$ К) на подложке из SrTiO_3 , поглощающую 30 % энергии $W_p = 4 \times 10^{-7}$ Дж импульсов накачки (толщина пленки ~ 200 нм), сфокусированных в пятно диаметром 150 мкм [8, 9]. Числа заполнения электронных состояний при интегрировании по электронному спектру рассчитывались по средним значениям $E_{e,h}^F$ и $T_{e,h}$ по длительности импульса [4–6]. Низкий уровень возбуждения отвечал пределу $W_p \rightarrow 0$, а при расчете чисел заполнения считалось, что $E_e^F = E_h^F = E_0^F$ и $T_e = T_h = T_0$.

3. Результаты моделирования

На рис.1 в полулогарифмическом (по $\Delta\omega$) масштабе на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$ для $\lambda_0 = 625$ нм показана трансформация реальной и мнимой частей зависимости нерезонансной электронной составляющей χ_{nr} от частотной

расстройки $\Delta\omega$ при изменении начальной температуры T_0 ВТСП образца в случаях высокого (рис.1, a, c) и низкого (рис.1, b, d) уровней возбуждения. Легко убедиться, что за счет перераспределения носителей по состояниям снижение энергии импульсов накачки весьма существенно сказывается на характере зависимости $\chi_{nr}(\Delta\omega, T_0)$. Однако самым важным является то, что при этом полностью исчезает характерный скачок χ_{nr} , наблюдающийся при вариациях T_0 вблизи точки $T_0 \sim T_c$ в случае высокого уровня возбуждения.

На рис.2 приведены аналогичные рис.1 зависимости для резонансной электронной составляющей $\chi_r(\Delta\omega)$. Легко заметить, что снижение уровня накачки сказывается лишь на величине вклада этой составляющей в χ , в то время как положение локального экстремума $\chi_r(\Delta\omega, T_0)$ при изменении T_0 по-прежнему отслеживает зависимость ширины щели Δ в спектре состояний от начальной температуры T_0 .

Зависимости $\chi_s(\Delta\omega, T_0)$ здесь не приводятся, т. к. они, как и константа χ_0 , не меняются при вариациях уровня

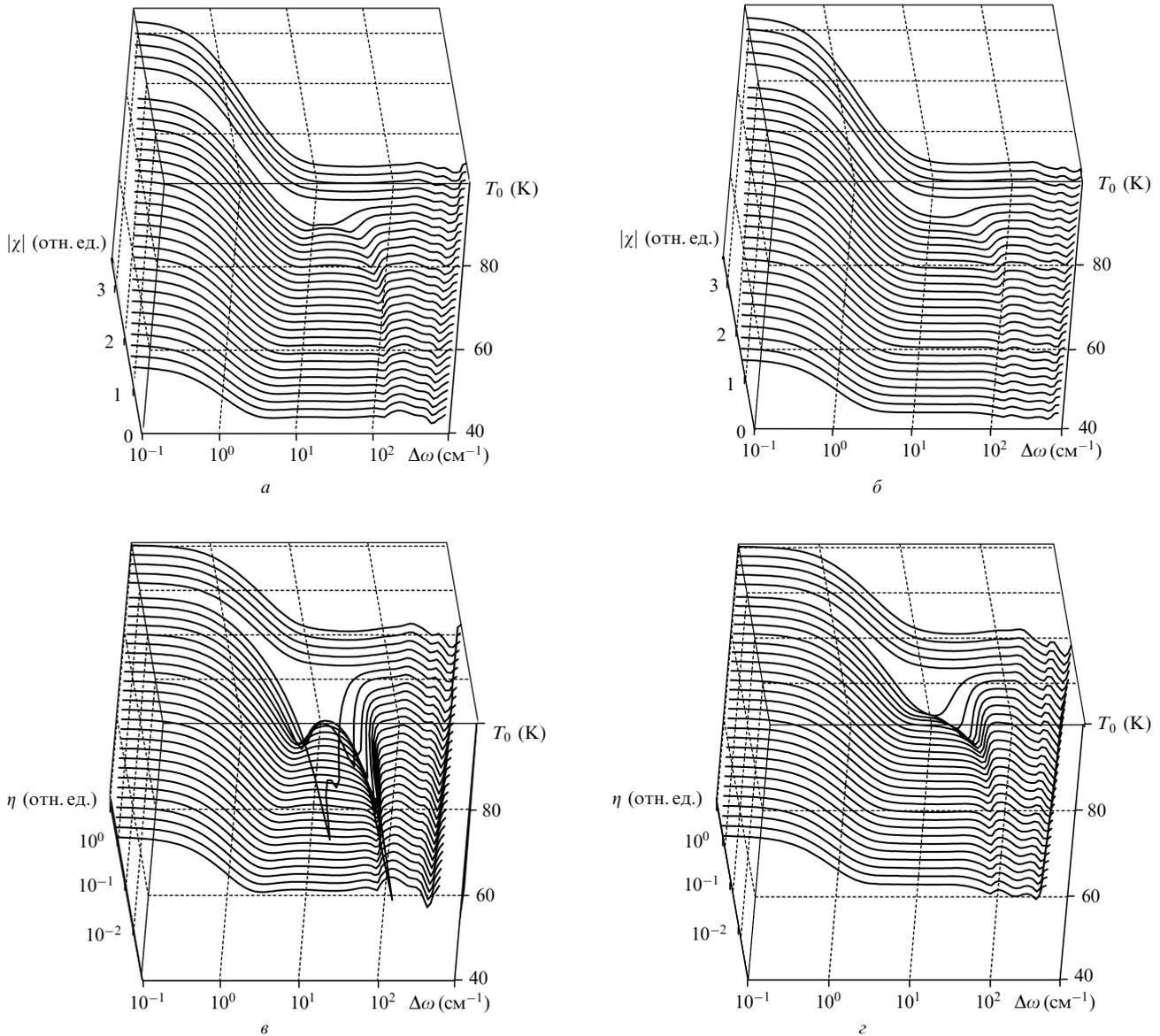


Рис.3. Изменения модуля нелинейной восприимчивости $|\chi|$ (*a, б*) и эффективности самодифракции η (*в, г*) на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Метод БН при высоком (*a, в*) и низком (*б, г*) уровнях возбуждения; точка $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda_0 = 625$ нм.

возбуждения и поэтому просто повторяют данные работы [4].

На рис.3 в полулогарифмическом (по $\Delta\omega$, рис.3,*a, б*) и двойном логарифмическом (по $\Delta\omega$ и η , рис.3,*в, г*) масштабах для той же точки $\lambda_0 = 625$ нм показана трансформация зависимостей модуля полного нелинейного отклика $|\chi(\Delta\omega)|$ и эффективности процесса самодифракции $\eta(\Delta\omega) \propto |\chi(\Delta\omega)|^2$ при вариациях T_0 в режимах высокого (рис.3, *a, в*) и низкого (рис.3,*б, г*) уровней возбуждения. Легко видеть, что поскольку роль нерезонансной составляющей χ_{nr} в χ в диапазоне $\Delta\omega < 100$ см⁻¹ при $\lambda_0 = 625$ нм сравнительно невелика (см. [4–6]), возможность определить из данных эксперимента зависимость ширины щели Δ в спектре состояний ВТСП-образца от его начальной температуры T_0 по эволюции положения характерного двухфотонного резонанса $\Delta\omega \approx \Delta$ сохраняется. По-прежнему при $T_0 \sim 90$ К на зависимости $\eta(\Delta\omega)$ формируется провал, который наблюдался в реальном эксперименте [8, 9]. Однако самым любопытным является то, что даже при низком уровне возбуждения вблизи $\Delta\omega \approx 0$ и при

вариациях T_0 в окрестности температуры T_c точки фазового перехода в $|\chi|$ и η наблюдается скачок, почти такой же, как и при высоком уровне возбуждения.

На рис.4 на плоскости $(\lambda = \lambda_0, T_0)$ показана трансформация зависимостей $|\chi(\lambda)|$ и $\eta(\lambda) \propto |\chi(\lambda)|^2$, измеряемых методом ВЧФС, при вариациях начальной температуры T_0 для случаев высокого (рис.4,*a, в*) и низкого (рис.4,*б, г*) уровней возбуждения. Легко убедиться, что снижение уровня накачки несущественно меняет результат расчета. По-прежнему при $T_0 \sim 90$ К на обеих зависимостях формируются характерные скачки $|\chi|$ и η , позволяющие экспериментально обнаружить момент (температуру T_0), в который начинает формироваться энергетическая щель (резонансная составляющая χ_r в полном нелинейном отклике χ) в спектре состояний.

4. Заключение

Итак, в рамках описанной в [4–6] модели нелинейного отклика для методов пикосекундной бигармонической

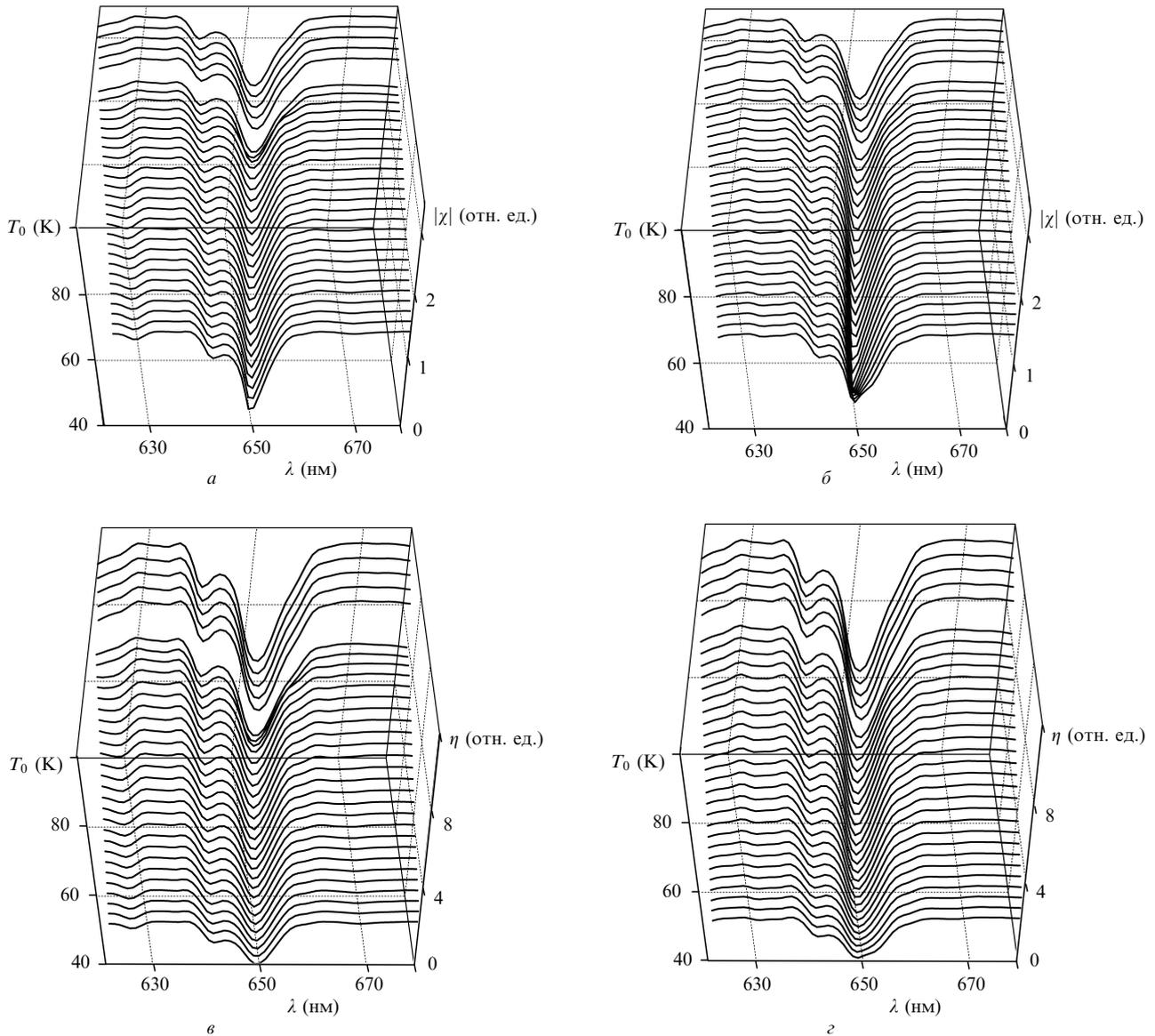


Рис.4. Изменения модуля нелинейной восприимчивости $|\chi|$ (a, б) и эффективности самодифракции η (в, з) на плоскости (λ, T_0) . Метод ВЧФС при высоком (a, в) и низком (б, з) уровнях возбуждения.

накачки и вырожденной четырехфотонной спектроскопии нами показано, что при снижении уровня возбуждения ВТСП-образцов и правильном выборе спектрального диапазона измерений (точки совмещения частот компонент БН) все спектральные и температурные особенности нелинейного отклика ВТСП сохраняются. Это значит, что характер таких особенностей в этих методах практически полностью определяется поведением резонансной составляющей χ_r полного нелинейного отклика χ , которая формируется при начальных температурах T_0 ВТСП-образца ниже температуры точки фазового перехода T_c (при появлении энергетической щели в спектре состояний). Поэтому по данным об эволюции положения характерного двухфотонного резонанса на экспериментальной зависимости эффективности самодифракции η от частотной расстройки компонент БН $\Delta\omega$ с изменением начальной температуры T_0 образца при любом уровне возбуждения легко отследить температурную зависимость ширины щели Δ в спектре его состояний ($\Delta\omega \approx \Delta$). Вместе с тем по температуре формирования характерного скачка η в методе ВЧФС можно столь же легко оп-

ределить момент (температуру T_0) начала формирования энергетической щели в спектре состояний. Такая устойчивость результатов экспериментов по отношению к уровню возбуждения является прямым следствием сравнительно низкой скорости накачки в методах пикосекундной нелинейной спектроскопии и выгодно отличает их от фемтосекундных аналогов.

Отметим также, что определить зависимость ширины энергетической щели в спектре состояний ВТСП-образца от температуры по данным [8, 9] достаточно сложно, поскольку диапазон измерений был здесь слишком узок ($T_0 = 80 - 92$ К). Однако конкретный выбор характера этой зависимости в проведенном моделировании, а также игнорирование псевдощели в спектре состояний не могут повлиять на сформулированные нами выше выводы.

1. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. *Квантовая электроника*, **35** (8), 720 (2005).
2. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. *Квантовая электроника*, **35** (8), 729 (2005).
3. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В.

- Квантовая электроника*, **35** (11), 1039 (2005).
4. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. *Квантовая электроника*, **36** (5), 408 (2006).
 5. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. *Квантовая электроника*, **36** (10), 895 (2006).
 6. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Роянова Г.А. и др. *Квантовая электроника*, **36** (2), 162 (2007).
 7. Chekalin S.V., Farztdinov V.M., Golovlyov V.V., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **67** (27), 3860 (1991).
 8. Zherikhin A.N., Lobastov V.A., Petnikova V.M., Shuvalov V.V. *Phys. Lett. A*, **179** (2), 145 (1993).
 9. Zherikhin A.N., Lobastov V.A., Petnikova V.M., Shuvalov V.V. *Physica C*, **221** (3–4), 311 (1994).
 10. Farztdinov V.M., Lozovik Yu.E., Matveets Yu.A. *Brazilian J. Phys.*, **26** (2), 482 (1996).
 11. Smith D.C., Gay P., Stevens C.J., et al. *J. Low Temperature Phys.*, **117** (5–6), 1059 (1999).
 12. Demsar J., Hudej R., Karpinski J., et al. *Phys. Rev. B*, **63** (5), 054519 (2001).
 13. Segre G.P., Gedik N., Orenstein J., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88** (13), 137001 (2002).
 14. Schneider M.L., Demsar J., Glinka Y., et al. *Europhys. Lett.*, **60** (3), 460 (2002).
 15. Schneider M.L., Rast S., Onellion M., et al. *Eur. Phys. J. B*, **36** (3), 327 (2003).
 16. Воронов А.В., Петникова В.М., Шувалов В.В. *ЖЭТФ*, **120** (5), 1256 (2001).
 17. Dobryakov A.L., Farztdinov V.M., Lozovik Yu.E., Marowsky G. *Physica Scripta*, **60**, 572 (1999).
 18. Lozovik Yu.E., Kovalenko S.A., Dobryakov A.L., et al. *Laser Phys.*, **9** (2), 557 (1999).
 19. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. *Квантовая электроника*, **31** (12), 1067 (2001).
 20. Devos A., Lerouge C. *Phys. Rev. Lett.*, **86** (12), 2669 (2001).
 21. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. *Квантовая электроника*, **32** (9), 789 (2002).
 22. Perry J.K., Tahir-Kheli J., Goddard W.A. III. *Phys. Rev. B*, **63** (14), 144510 (2001).
 23. Kornienko A.G., Petnikova V.M., Shuvalov V.V., et al. *J. Appl. Phys.*, **80** (4), 2396 (1996).
 24. Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. *Статистическая физика, Ч.2, Теория конденсированного состояния* (М.: Физматлит, 2001).
 25. Апанасевич П.А. *Основы взаимодействия света с веществом* (Минск: Наука и техника, 1977).
 26. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981).