

СПЕКТРАЛЬНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ РЕЛАКСАЦИИ В $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ПРИ ФЕМТОСЕКУНДНОМ ЛАЗЕРНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

И.И.Венгрус*, А.Л.Добряков, С.А.Коваленко[†], В.С.Летохов, Ю.Е.Лозовик¹⁾, Г.Маровский[‡], Ю.А.Матвеев, В.М.Фарзтдинов, Н.Р.Эрнстинг[‡]

Институт Спектроскопии РАН
142092 Троицк, Московская область, Россия

*Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
117234 Москва, Россия

[†]Max-Planck-Institut für Biophysikalische Chemie, Abteilung Laserphysik, P.O.Box 2841
D-37077 Göttingen, Germany

[‡]Laser-Laboratorium Göttingen e.V.,
37077 Göttingen, Germany

Поступила в редакцию 17 октября 1995 г.

С помощью фемтосекундной лазерной спектроскопии по временным изменениям оптической плотности пленки $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ обнаружена спектральная зависимость времени энергетической релаксации неравновесных носителей заряда. Время энергетической релаксации резко возрастает в спектральной области, отвечающей переходам в окрестность уровня Ферми. Это дает новый метод определения положения уровня Ферми. В широкой спектральной области зондирования $\hbar\omega_{probe} = 1.6 \div 3.0$ эВ обнаружено возбуждение когерентных фононов с частотами в диапазоне $10-250$ см⁻¹.

Фемтосекундная лазерная спектроскопия оказалась плодотворной для исследования характеристик быстропротекающих процессов в твердых телах, получения из последних фундаментальных констант взаимодействия электронной и фононной подсистем, наблюдения в реальном времени кинетики фазовых переходов (см., например, [1,2]).

В настоящей работе указанный метод используется для исследования возбужденного состояния высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ и детального изучения релаксации неравновесных носителей заряда в фемтосекундном диапазоне времен. Мы обнаружили резкий рост времени энергетической релаксации электронов в определенных спектральных областях, связываемых с переходом в окрестность уровня Ферми. Обнаруженная зависимость открывает возможность для нового метода определения положения уровня Ферми (и установление его существования в системе сильнокоррелированных электронов). Использование импульсов возбуждения и зондирования с длительностями 50 фс позволило по эволюции фотоиндуцированного отклика в фемтосекундном диапазоне времен обнаружить возбуждение в $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ когерентных фононных колебаний.

Исследуемый образец представлял собой пленку $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($T_c = 89$ К) толщиной 0.05 мкм на подложке из $SrTiO_3$ толщиной 0.5 мм. Возбуждение осуществлялось оптическими импульсами с длительностью 50 фс и интенсивностью $2.5 \cdot 10^{11}$ Вт/см² с энергией фотонов $\hbar\omega_{pump} = 2.34$ эВ. Диаметр пятна

¹⁾e-mail: lozovik@isan.msk.su.

возбуждения составлял 100 мкм. Коэффициент пропускания исследовался с помощью зондирующего импульса с длительностью 50 фс в диапазоне 1,6 – 3,0 эВ. Диаметр пятна зондирования равнялся ≈ 80 мкм. Частота повторения импульсов возбуждения и зондирования составляла ≈ 1 Гц. Временной шаг задержки равнялся 7 фс. Максимальная задержка в данном эксперименте достигала ≈ 4 пс. Измерения проводились при комнатной температуре.

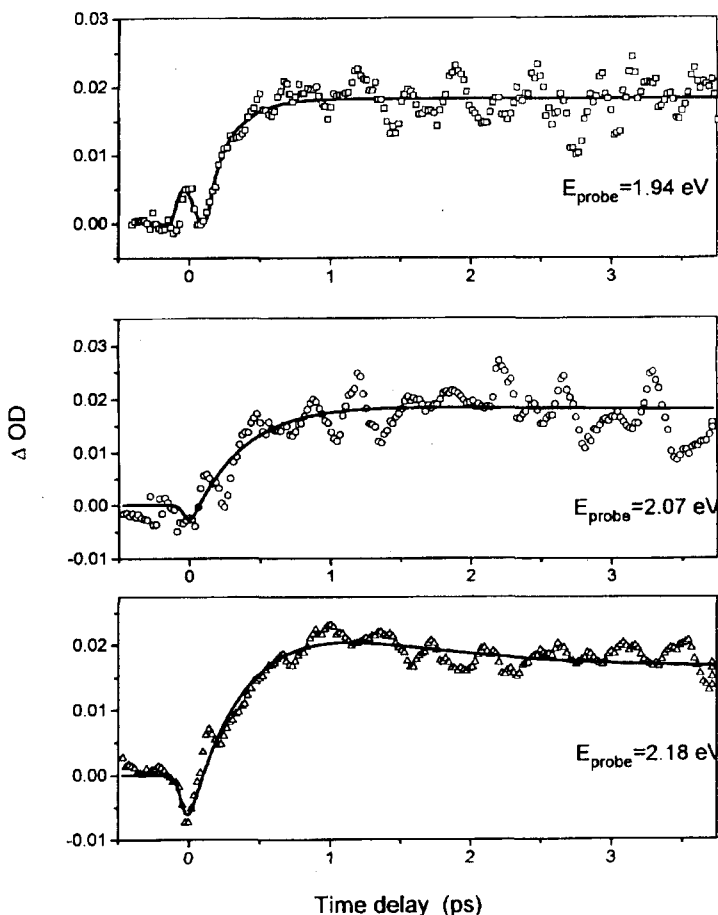


Рис.1. Кинетики фотоиндуцированного изменения оптической плотности пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Временная динамика измеренных спектров оптической плотности $\Delta D_{exp}(\omega, t)$ показана на рис.1. С помощью аппроксимации экспериментальных кинетик подгоночными зависимостями $\Delta D_{fit}(t)$ была получена спектральная зависимость скорости релаксации оптической плотности τ_1 . Было обнаружено, что τ_1 существенно зависит от длины волны зондирующего импульса: оно принимает значение $\tau_1 = 180 \pm 50$ фс в области $1.7 < \hbar\omega < 2$ эВ, возрастает до максимума при $\hbar\omega \approx 2.1$ эВ и принимает значение $\approx 300 \pm 200$ фс в области $2.4 < \hbar\omega < 3$ эВ. Временные зависимости спектров оптической плотности – быстрое уменьшение оптической плотности за время, определяемое длительностью импульса возбуждения, и последующая быстрая релаксация – указывают на то, что основной вклад в изменение оптических свойств на временах, значительно меньших τ_1 , обусловлен электронным откликом. Следовательно в этой области спектра в

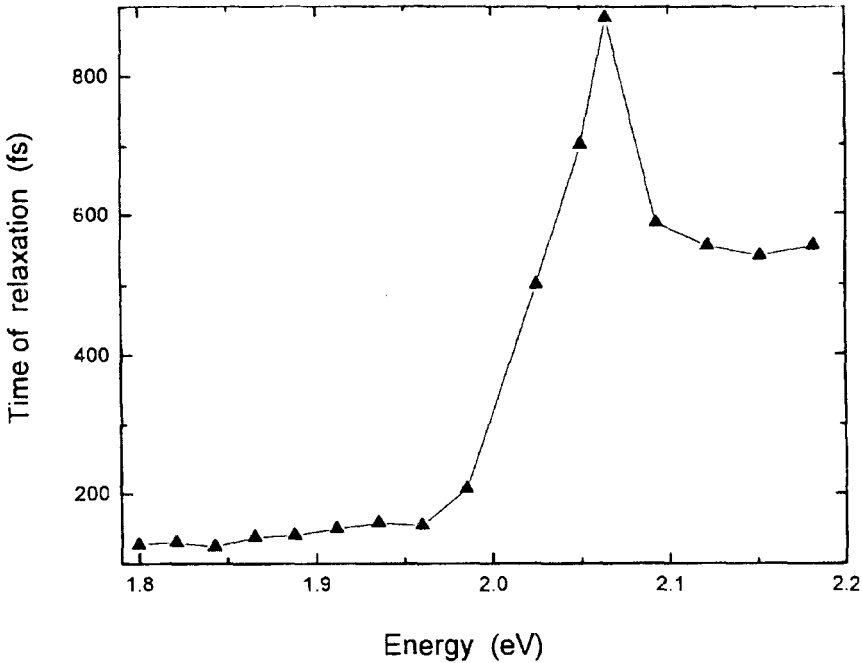


Рис.2. Зависимость времени энергетической релаксации фотовозбужденных носителей пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ от энергии фотонов зондирующего импульса

указанном интервале времен, в принципе, возможно наблюдение уровня Ферми [3]. На временах порядка τ_1 и более вклад электронного отклика мал по величине и основной вклад в изменение пропускания дает решеточный отклик.

В этой связи наиболее интересным, на наш взгляд является наличие узкого пика в зависимости времени энергетической релаксации τ_1 от энергии (см. рис. 2). Этот пик может быть интерпретирован как возрастание времени неупругого рассеяния вблизи уровня Ферми за счет уменьшения фазового объема конечных состояний. Указанный факт является важной характеристикой ферми-жидкости (см. [3,4]) и по существу определяет возможность введения квазичастиц для ферми-жидкости, затухание которых резко падает вблизи ферми-поверхности. Время электронной энергетической релаксации вблизи уровня Ферми для температур $T_e \ll \hbar\omega_{ph}$, где $\hbar\omega_{ph}$ - характерная энергия фонона ведет себя как $\tau_1 \sim (\epsilon - \epsilon_F)^{-3}$ (при взаимодействии с акустическими фононами, см. [3,4]). В противоположном случае высоких температур, $T_e \gg \hbar\omega_{ph}$, время энергетической релаксации не зависит от $\epsilon - \epsilon_F$. Учитывая, что в нашем случае максимальный разогрев электронной подсистемы составляет величину $\Delta T_e \sim 270$ мэВ и за время порядка τ_1 уменьшается до ~ 30 мэВ получаем, что средняя температура электронов на временах $t < \tau_1$ составляет величину $T_e \sim 180$ мэВ. Сравнивая ее с максимальной энергией фононов в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ $\hbar\omega_{ph} \sim 80$ мэВ получаем, что мы находимся в промежуточном режиме $T_e \gtrsim \hbar\omega_{ph}$. По этой причине зависимость $\tau_1(\epsilon)$ оказывается не столь резкой, как это следовало бы ожидать для случая низких температур.

В пользу приведенной выше интерпретации максимума τ_1 свидетельствует, например, следующий факт. Оказывается, что положение уровня Ферми,

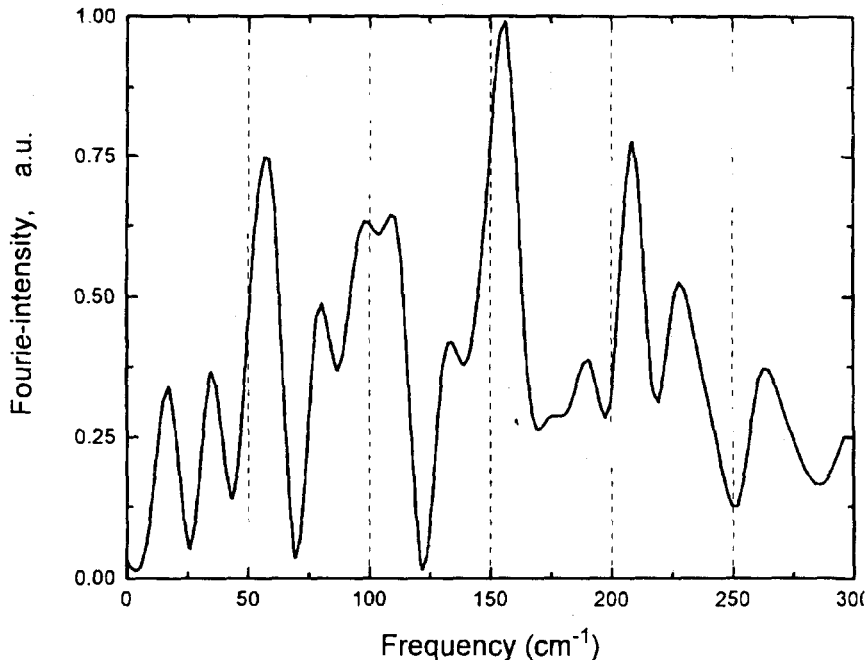


Рис.3. Фурье-спектр когерентных фононов, возбуждаемых фемтосекундным лазерным импульсом в пленке $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

устанавливаемое по максимуму τ_1 , неплохо согласуется с немонотонной зависимостью фотоиндуцированного отклика от энергии для переходов в окрестность уровня Ферми (см. также [1,5]). Происхождение вышеуказанной немонотонной зависимости связано с тем, что происходит фотоиндуцированное опустошение состояний ниже уровня Ферми и обогащение состояний выше уровня Ферми. В результате $\Delta\epsilon_2(\omega)$ – мнимая часть изменения диэлектрической функции при фотовозбуждении оказывается немонотонной функцией $\hbar\omega$. При этом $\Delta\epsilon_2(\omega)$ обращается в нуль для переходов в точности на уровень Ферми. Значение энергии, при которой достигаются, соответственно, максимум τ_1 и нуль $\Delta\epsilon_2$, неплохо согласуется. Отметим, что зависимость τ_1 от энергии оказывается весьма резкой, что дает возможность более точного определения уровня Ферми, чем это давало бы обращение в нуль в зависимости $\Delta\epsilon_2(\omega)$ от энергии пробного фотона. (Следует отметить также, что для получения зависимости $\Delta\epsilon_2$ требуется привлечение дополнительных данных).

По временной зависимости оптической плотности был определен параметр электрон-фононного взаимодействия $\lambda(\omega^2)$, который в спектральной области $1,7 < \hbar\omega_{probe} < 2,0$ эВ оказался равным $\lambda(\omega^2) = 500 \pm 150$ (мэВ)² (что хорошо согласуется с результатами работ [1,6]).

Использование ультракоротких оптических импульсов позволило наблюдать возбуждаемые ими когерентные колебания решетки, модулирующие изменение диэлектрической проницаемости и изменяющие интенсивность прошедшего или отраженного света. Фурье-анализ временной зависимости изменения оптической плотности $[\Delta D_{exp}(t) - \Delta D_{fit}(t)]$ использовался для определения характерных частот решеточных колебаний в области частот 10–250 см⁻¹. Обнаруже-

но, что возбуждение когерентных фононов происходит во всей спектральной области зондирования $\hbar\omega_{probe} = 1,6 \div 3,0$ эВ. Для определения частот когерентных фононов, которые эффективно возбуждаются во всей исследуемой зондируемой области спектра, все фурье-спектры были перемножены - то есть вычислялся средне-геометрический спектр колебаний [7]. В результате было обнаружено, что доминирующим в данной спектральной области является колебание с частотой $\sim 152\text{ см}^{-1}$. С более низкой амплитудой наблюдаются колебания ~ 57 , ~ 110 , $\sim 210\text{ см}^{-1}$ и ряд других мод. Возбуждение мод с частотами ~ 116 и $\sim 150\text{ см}^{-1}$ наблюдалось в работе [8] с помощью фемтосекундных импульсов длительностью $\approx 100\text{ фс}$ с энергией возбуждающих и зондирующих фотонов $\hbar\omega \approx 2\text{ эВ}$, причем наиболее интенсивной модой (при комнатной температуре), так же, как и в нашем случае, была мода $\sim 150\text{ см}^{-1}$. Интересно, что в полученном нами фурье-спектре когерентных фононов наблюдаются не только рамановски-активные (см. [9-11] и цитированную там литературу) фононные моды (~ 116 , ~ 150 , $\sim 210\text{ см}^{-1}$), но и моды, характерные для ИК спектров [9,12]: ~ 190 , $\sim 210\text{ см}^{-1}$. ИК активная мода с частотой $\sim 230\text{ см}^{-1}$ наблюдалась в рамановских спектрах [11] при резонансном возбуждении с энергией фотонов $\hbar\omega \approx 2.2 \pm 0.2\text{ эВ}$. Наблюдение мод, характерных для ИК спектров, вероятно связано со снятием альтернативного запрета из-за дефектов материала, связанных с вакансиями кислорода [11].

Работа частично поддержана грантами Межотраслевой программы по ВТСП, Российского фонда фундаментальных исследований, Международного научного фонда.

-
1. S.V. Chekalin, V.M. Farztdinov, V.V. Golovlev et al., Phys. Rev. Lett. **67**, 3860 (1991); Yu.E. Lozovik, Yu.A. Matveetz, A.G. Stepanov et al., Pis'ma v ZhETF, **52**, 851 (1990); I.E.Kardash, V.S.Letokhov, Yu.E.Loizovik, et al., Pis'ma v ZhETF, **58**, 134 (1993).
 2. Ultrafast Phenomena VIII, Springer Series in Chem. Phys. **55** (1992).
 3. А.А.Абрикосов, Л.П.Горьков, И.Е.Дзялошинский, *Методы квантовой теории поля в статистической физике*, М.: Физматгиз, 1962 г.
 4. В.Ф.Гантмахер, И.Б.Левинсон, *Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках*. М.: Наука, 1984 г.
 5. A.L.Dobryakov, V.M.Farztdinov, Yu.E.Loizovik and V.S.Letokhov, Opt.Comm. **105**, 309 (1994); A.L. Dobryakov, V.V. Golovlev, V.S. Letokhov et al., Optika i Spectroscopia **76**, 975 (1994).
 6. S.D.Brorson, A.Kazeroonian, D.W.Face, et al. Solid State Commun. **74**, 1305 (1990).
 7. A.L. Dobryakov, S.A. Kovalenko, V.S. Letokhov et al. Pis'ma v ZhETF **61**, 957 (1995).
 8. W.Albrecht, Th.Kruse, and H.Kurz. Phys. Rev. Lett. **69**, 1451 (1992).
 9. R.Feile, Physica **C159**, 1 (1989).
 10. K.F.McCarty, J.Z.Liu, R.N.Shelton and H.B.Radousky, Phys. Rev. **B41**, 8792 (1990).
 11. D.R.Wake, F.Slakey, M.V.Klein et al., Phys. Rev. Lett. **67**, 3728 (1991).
 12. K.Kamaras, S.L.Herr, C.D.Porter et al., Phys. Rev. Lett. **64**, 84 (1990); C.C.Homes, T.Timusk, R.Liang et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1645 (1993).