

Возбуждение когерентных недиагональных комбинационно-активных фононов при взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов с высокотемпературным сверхпроводником $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$

© О.В. Мисочко, М.В. Лебедев

Институт физики твердого тела Российской академии наук,
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

E-mail: misochko@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию 4 октября 2000 г.)

Исследован разрешенный во времени оптический отклик от различных кристаллографических граней монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. При таких измерениях во временной области фононная система переводится первым ультракоротким субпикосекундным импульсом в когерентное состояние и зондируется с заданной временной задержкой вторым импульсом. Сравнение периодограмм временного отклика со спонтанными спектрами комбинационного рассеяния света показывает, что наряду с полностью симметричными фононами вклад во временной отклик вносят недиагональные моды. Обсуждается механизм генерации когерентных фононов в высокотемпературных сверхпроводниках.

Авторы признательны фонду Александра фон Гумбольда (Германия) и Кансайскому исследовательскому центру (Япония) за поддержку данного проекта.

Основная информация о динамике четных длинноволновых фононов в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) получена исследованиями комбинационного рассеяния (КР) света [1]. Характерной чертой большинства ВТСП является то, что в спектре КР доминируют полностью симметричные фононы, тогда как фононы более низкой симметрии (E_g при описании симметрии решетки тетрагональной группой D_{4h}) являются либо значительно менее интенсивными, как в случае $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ [2], либо вообще не проявляются в спектре, как в $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ [3] и в системах типа Tl-Ba-Ca-Cu-O [4]. Исключением является система Hg-Ba-Ca-Cu-O , где недиагональные фононы доминируют в спектре КР при комнатной температуре, однако и в этой системе в сверхпроводящем состоянии полностью симметричные фононы сравниваются по интенсивности с последними [5].

Благодаря прогрессу в лазерной технологии, длительность лазерного импульса уменьшилась до нескольких фемтосекунд, и таким образом открылись новые разнообразные возможности исследований, в их числе изучение колебаний решетки в реальном времени. При длительности импульса меньшей, чем обратная частота колебаний решетки, фононы могут быть приготовлены и исследованы в когерентном, а не в тепловом состоянии, которое обычно исследуется спектроскопией КР. Исследования в реальном времени (одним из типичных представителей которого является метод возбуждения фононного состояния с последующим зондированием двумя разделенными во времени лазерными импульсами — МВЗ) в настоящее время активно проводятся для конденсированных систем [6]. Среди первых непрозрачных кристаллических сред, в которых были зарегистрированы когерентные фононы, были и высокотемпературные сверхпроводники. Первое наблюдение было сделано в

полупроводниковых $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ с $x < 0.4$ [7], за которым последовали исследования когерентных фононов в сверхпроводящих образцах как в нормальном, так и в сверхпроводящем состояниях [8,9]. Во всех этих исследованиях субпикосекундные лазерные импульсы возбуждали низкоэнергетичные полностью симметричные фононы. Полная симметрия возбуждаемых мод частично способствовала использованию механизма смещения [10] для объяснения генерации когерентных фононов в ВТСП. Механизм смещения, модифицированный для сверхпроводящего состояния [11], объяснил феноменологически не только возбуждение когерентных колебаний решетки, но и описал температурную аномалию, заключающуюся в смене полярности и увеличении фотоиндуцированного отклика в сверхпроводящем состоянии. Однако следует отметить, что первые исследования когерентных фононов проводились на c -ориентированных пленках [7–9] и ab -плоскостях монокристаллов [12,13]. Следовательно, сама геометрия эксперимента исключала возможность наблюдения недиагональных E_g фононов. Установление истинного механизма возбуждения когерентных фононов является необходимым для понимания многочисленных интересных аномалий разрешенного во времени оптического отклика, одной из которых является фазозависимый шум когерентных фононов [12].

Возбуждение и детектирование когерентных фононов проводилось методом возбуждения с последующим зондированием субпикосекундными световыми импульсами. Измерялось отражение с использованием фазочувствительного детектирования и импульсов лазера на титанате сапфира ($\lambda = 780 \text{ nm}$) с длительностью 35 fs. Цуг импульсов разбивался на два пучка ортогональной поляризации, причем зондирующий пучок был примерно в 100 раз слабее по мощности (порядка 1 mW), чем пучок накачки. Относительная задержка между пучками

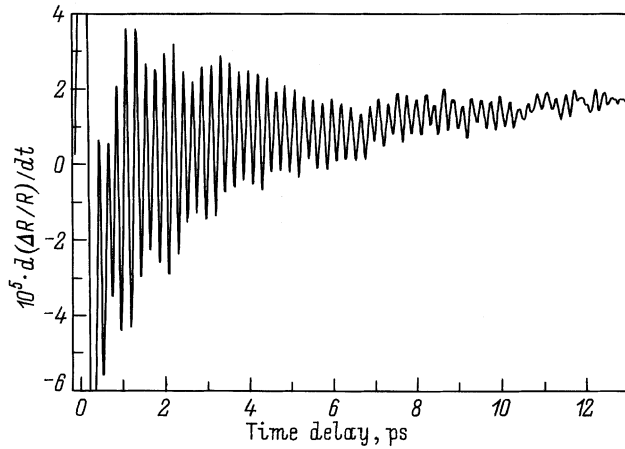


Рис. 1. Разрешенное во времени нормализованное отражение для базисной ab -плоскости монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$.

варьировалась изменением одного из оптических путей шаговым двигателем с шагом $1 \mu\text{m}$. Модуляция пучка накачки осуществлялась покачиванием ретрорефлектора с частотой 550 Hz и амплитудой, не превышающей длительность используемых световых импульсов. КР исследования проводились в геометрии обратного рассеяния при возбуждении линией $\lambda = 514 \text{ nm}$ Ar^+ -лазера с использованием тройного спектрометра, оснащенного многоканальным детектором. Детальное описание аппаратуры, использованной для получения разрешенных во времени оптических откликов и спонтанных спектров КР, можно найти в работах [12,13].

Измерения проводились при комнатной температуре на ab - и ac -гранях монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. Исследованный кристалл $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ имел температуру сверхпроводящего перехода $T_c = 92 \text{ K}$. Поскольку кристалл был двойникован, мы не могли различить кристаллографические направления a и b , которые являлись для нас эквивалентными.

На рис. 1 показан типичный оптический отклик при возбуждении и последующем зондировании ab -плоскости кристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ ультракороткими импульсами. Возбужденное состояние кристалла релаксирует к равновесному состоянию за времена порядка $1-2 \text{ ps}$. На эту электронную релаксацию наложены быстрые осцилляции, порождаемые когерентными фононами. Когерентные осцилляции затухают по экспоненциальному закону, что свидетельствует о возбуждении одной моды. При изменении геометрии эксперимента — измерении оптического отклика ac -плоскости — характер осцилляций изменяется. На рис. 2 представлены оптические отклики, полученные в идентичных, за исключением геометрии эксперимента, условиях. Верхняя осциллирующая кривая соответствует геометрии $\mathbf{E}_e \parallel \mathbf{c}$, $\mathbf{E}_p \parallel \mathbf{a}$, средняя кривая — $\mathbf{E}_e \parallel \mathbf{a}$, $\mathbf{E}_p \parallel \mathbf{c}$ (где \mathbf{E}_e и \mathbf{E}_p — векторы электрического поля пучков возбуждения и зондирования соответственно, тогда как нижняя кривая получена с базисной плоскости при $\mathbf{E}_e \perp \mathbf{c}$, $\mathbf{E}_p \perp \mathbf{c}$

и $\mathbf{E}_e \perp \mathbf{E}_p$. При исследовании оптического отклика ac -плоскости вместо затухающих осцилляций наблюдаются следы биений, свидетельствующих о наблюдении нескольких фоннных мод. Кроме того, характер осцилляций зависит от ориентации поляризации возбуждающего лазерного импульса относительно кристаллографических осей. Для проверки того что осцилляции, наблюдаемые во временной области, при различной геометрии эксперимента соответствуют КР активным модам кристалла, данные временного диапазона были численно трансформированы в частотный диапазон при помощи Фурье-преобразования. Типичный спектр мощности (периодограмма), полученный в результате этого преобразования, представлен на рис. 3, a, b, c , тогда как спектры КР zz -, xx - и zx -поляризации этого же кристалла показаны на рис. 3, d, e, f . Поскольку полносимметричные тензоры КР для тетрагонального кристалла диагональ-

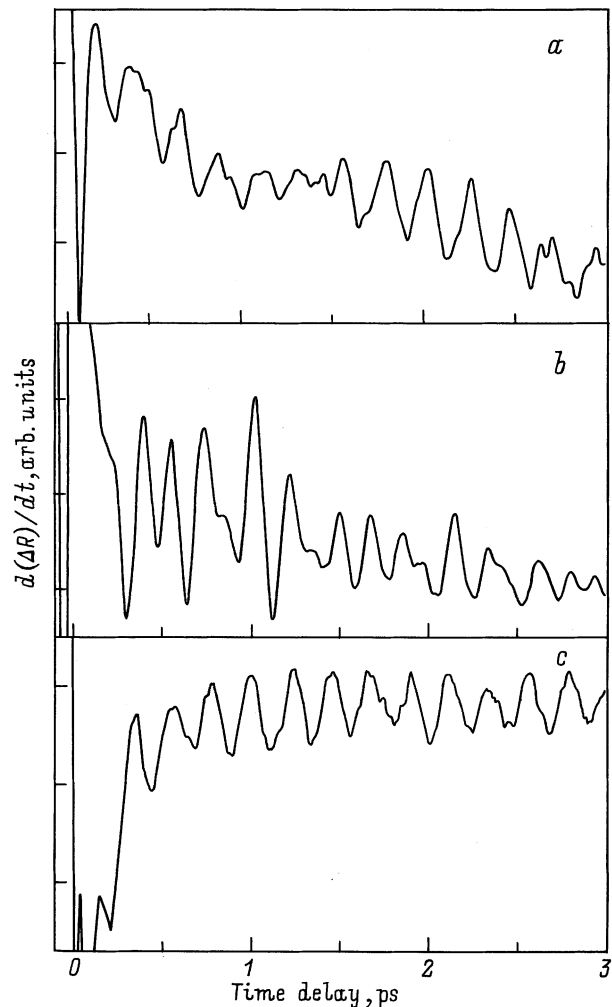


Рис. 2. Разрешенное во времени отражение, полученное с различных кристаллографических граней. Верхняя (a) и средняя (b) осциллирующие кривые соответствуют $\mathbf{E}_e \parallel \mathbf{c}$, $\mathbf{E}_p \parallel \mathbf{a}$ и $\mathbf{E}_e \parallel \mathbf{a}$, $\mathbf{E}_p \parallel \mathbf{c}$ соответственно, нижняя кривая (c) получена с базисной ab -плоскости при $\mathbf{E}_e \perp \mathbf{c}$, $\mathbf{E}_p \perp \mathbf{c}$ и $\mathbf{E}_e \perp \mathbf{E}_p$.

ны $\begin{pmatrix} a & & c \\ & a & b \\ & & c \end{pmatrix}$, а E_g тензоры имеют вид $\begin{pmatrix} & & c \\ c & & \\ & & c \end{pmatrix}$,

сравнение данных КР-поляризаций позволяет идентифицировать моды, наблюдаемые во временном отклике. В поляризованных xx - и zz -спектрах два ярко выраженных пика на частотах 3.6 (120 cm^{-1}) и 4.5 THz (150 cm^{-1}) соответствуют полносимметричным фононным модам, отвечающим смещениям ионов Ва и Си, тогда как пик на 10.1 THz (337 cm^{-1}) порождается антифазными смещениями кислорода купратной плоскости. Последняя мода имеет B_{1g} симметрию для тетрагональной группы, что исключает ее наблюдение в zz -спектре, однако для орторомбической группы D_{2h} , которая является истинной группой симметрии для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ симметрия моды повышается до A_g . В деполаризованном (zx -) спектре КР присутствуют моды E_g симметрии (B_{2g} и B_{3g} в обозначениях орторомбической группы), в исследованном спектральном диапазоне, показанном на рис. 3, это пики на частотах 2.0, 6.3 и 9.3 THz. Сравнение относительных интенсивностей двух высокочастотных мод с данными, полученными на раздвойникованном монокристалле [2], свидетельствует, что в спектре присутствуют компоненты как B_{3g} , так и B_{2g} симметрии, что обусловлено двойникованием кристалла. Эти две моды порождаются y - и x -смещениями мостикового кислорода. Низкочастотная E_g мода отвечает поляризованными в базисной плоскости смещениями иона Ва [14]. В периодограмме, показанной на рис. 3, a , присутствует мода на частоте 6.3 THz (210 cm^{-1}), которая может быть отнесена к E_g симметрии (B_{3g} для орторомбической группы), генерируемой y -смещениями мостикового кислорода из плоскости ВаО. Следует отметить, что спонтанные E_g спектры КР примерно на порядок менее интенсивны, чем полносимметричные спектры КР. Однако в периодограмме, изображенной на рис. 3, a , полносимметричные и недиагональные моды, наблюдаемые во временном отклике, имеют примерно одинаковые интенсивности. Возможным объяснением данного несоответствия являются различные резонансные условия, реализуемые в частотной и временной областях. В первом случае спектры получены с использованием света с $\lambda = 514 \text{ nm}$, тогда как во втором случае длина волны лазерного излучения была значительно больше: $\lambda = 780 \text{ nm}$. Строго говоря, сравнение относительных интенсивностей должно проводиться только при идентичных резонансных условиях. Известно, что полносимметричные фононные моды оптимально легированного $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ становятся менее интенсивными при увеличении длины волны лазерного света [15], однако резонансные зависимости недиагональных мод до настоящего времени неизвестны.

Механизм смещения [10] позволяет объяснить генерацию когерентных фононов в непрозрачных кристаллических средах только для полносимметричных мод. Эта теория подразумевает, что электронная система быстро термализуется, приобретая полную симметрию, и условием ее применимости является $\tau_{e-e} \ll \tau_{e-l}$,

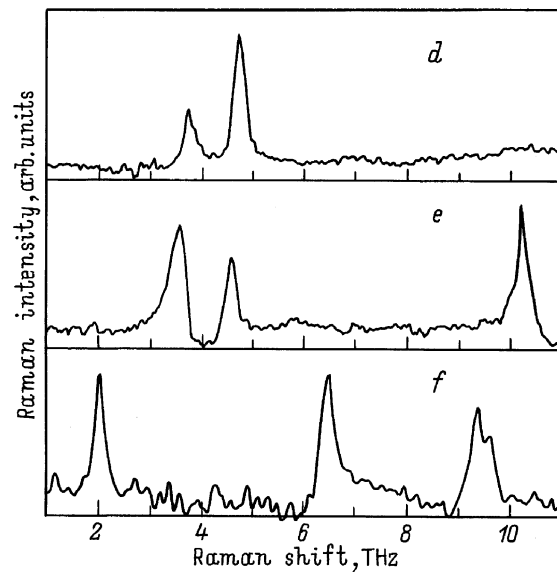
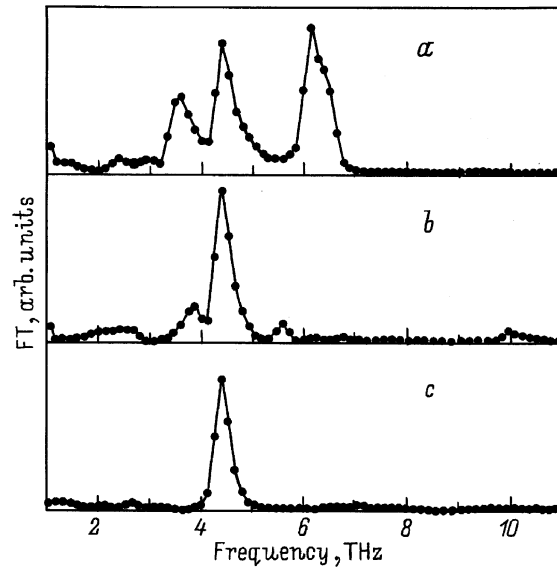


Рис. 3. Фурье-преобразованный временной отклик: $a - E_e \parallel c, E_p \parallel a$; $b - E_e \parallel a, E_p \parallel c$; $c - E_e \perp c, E_p \perp c$ и $E_e \perp E_p$; спонтанный спектр КР в различных поляризациях: $d - x(zz)x, e - z(xx)z, f - y(xz)y$.

т.е. время электрон-электронной релаксации τ_{e-e} значительно меньше, чем время электрон-решеточной релаксации τ_{e-l} . Наблюдение недиагональной фононной моды во временном отклике свидетельствует, что ионы решетки успевают отреагировать на начальное электронное распределение, которое имеет более низкую симметрию. Возможной причиной нарушения неравенства $\tau_{e-e} \ll \tau_{e-l}$ является сингулярность Ван Хофа, присущая ВТСП и ведущая к тому, что для некоторых направлений, принадлежащих купратной плоскости, движение электронов происходит более медленно, чем движение ионов решетки [16]. Следует также отметить, что недавно в ряде систем, для которых начально во временной

области регистрировались только полносимметричные моды, были детектированы недиагональные когерентные комбинационно-активные фононы [6,17,18]. Этот факт был интерпретирован в пользу механизма генерации решеточной когерентности за счет вынужденного КР. Более того, было показано, что механизм смещения может быть сведен к одному из частных случаев резонансного вынужденного КР [6]. При микроскопическом описании когерентные осцилляции обусловлены макроскопическим заселением фононной моды с $\mathbf{q} = 0$, что делает ситуацию подобной Бозе-конденсации [19]. Отметим, что преобразование Боголюбова, которое используется для описания сжатых фононных состояний [20]. Последние к настоящему времени были зарегистрированы в кристаллах с перовскитной структурой, схожей со структурой ВТСП [21], и в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ [12].

Подводя итог, мы видим что в результате оптического исследования на различных гранях монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, проведенного в частотной и временной областях, показано, что во временной отклик вносят вклад недиагональные фононы. Возбуждение недиагональных фононных мод ставит под сомнение механизм смещения как основной механизм генерации когерентных фононных мод в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. Альтернативным объяснением может быть механизм вынужденного КР, который способен описать в перспективе не только генерацию когерентных фононов, но и их необычные статистические свойства.

Список литературы

- [1] R. Feile. *Physica* **C159**, 1 (1989); C. Thomsen. In: *Light Scattering in Solids VI* / Ed. by M. Cardona, G. Güntherodt. Springer, Berlin (1991). P. 285.
- [2] В.Д. Кулаковский, О.В. Мисочко, В.Б. Тимофеев. *ФТТ* **31**, 220 (1989).
- [3] R. Liu, M.V. Klein, P.D. Han, D.A. Payne. *Phys. Rev.* **B45**, 7392 (1992).
- [4] Л.В. Гаспаров, В.Д. Кулаковский, О.В. Мисочко, В.Б. Тимофеев. *ЖЭТФ* **96**, 2115 (1989).
- [5] A. Sacuto, A. Lebon, D. Colson, A. Bertinotti, J.-F. Marucco, V. Viallet. *Physica* **C259**, 209 (1996); A. Sacuto, R. Combescot, N. Bontemps, C.A. Muller, V. Viallet, D. Colson. *Phys. Rev.* **B58**, 11 721 (1998); X. Zhou, M. Cardona, D. Colson, V. Viallet. *Phys. Rev.* **B55**, 12 770 (1997).
- [6] R. Merlin. *Solid State Commun.* **102**, 207 (1997).
- [7] J.M. Chwalek, C. Uher, J.F. Whitaker, G.A. Mourou, J.A. Agostinelli. *Appl. Phys. Lett.* **58**, 980 (1991).
- [8] W. Albrecht, Th. Kruze, H. Kurz. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1451 (1992); A. Kutt, W. Albrecht, H. Kurz. *IEEE J. Quantum Electron.* **QE28**, 2434 (1992).
- [9] O.V. Misochko, K. Kisoda, K. Sakai, S. Nakashima. *Phys. Rev.* **B61**, 4305 (2000).
- [10] H.J. Zeiger, J. Vidal, T.K. Cheng, E.P. Ippen, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus. *Phys. Rev.* **B45**, 768 (1992).
- [11] I.I. Mazin, A.I. Liechtenstein, O. Jepsen, O.K. Andersen, C.O. Rodriguez. *Phys. Rev.* **B49**, 9210 (1994).

- [12] O.V. Misochko. *Phys. Lett.* **A269**, 97 (2000).
- [13] О.В. Мисочко. *ФТТ* **42**, 1169 (2000).
- [14] W. Kress, U. Schroder, J. Prade, A.D. Kulkarni, F.W. de Wette. *Phys. Rev.* **B38**, 2906 (1988).
- [15] О.В. Мисочко. *ФТТ* **31**, 1998 (1989); О.В. Мисочко, Е.Я. Шерман. *ЖЭТФ* **99**, 330 (1991); O.V. Misochko, E.Ya. Sherman, V.B. Timofeev. *Physica* **C185-189**, 1025 (1991).
- [16] R.S. Markiewicz. *J. Phys. Chem. Solid.* **58**, 1179 (1997).
- [17] G.A. Garrett, T.F. Albrecht, J.F. Whitaker, R. Merlin. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3661 (1996).
- [18] M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, S. Nakashima, M. Tani, K. Sakai, M. Hangyo. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2474 (1996).
- [19] A.V. Kuznetsov, C.J. Stanton. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3243 (1994).
- [20] M.M. Nieto. In: *Frontiers of Nonequilibrium Statistical Physics* / Ed. by G.T. Moore, M.O. Scully. Plenum Press, N.Y. (1986). P. 287.
- [21] G.A. Garrett, J.F. Whitaker, A.K. Sood, R. Merlin. *Optics Express* **1**, 385 (1997); G.A. Garrett, A.G. Rojo, A.K. Sood, J.F. Whitaker, R. Merlin. *Science* **275**, 1638 (1996); A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2981 (2000).