

Оптическое исследование когерентных и тепловых фононов в высокотемпературных сверхпроводниках

© О.В. Мисочко

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

E-mail: misochko@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию 23 ноября 1999 г.)

Исследованы низкоэнергетические фононы в сверхпроводящих монокристаллах $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ и $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ методами спектроскопии комбинационного рассеяния света и отражения с фемтосекундным временным разрешением. Комбинационное рассеяние света дает информацию о равновесных тепловых фононах, тогда как при измерении во временной области фононная система переводится первым ультракоротким импульсом в когерентное состояние и зондируется с заданной временной задержкой вторым импульсом. Показано, что обе методики дают сходные результаты в отношении энергий фононных мод, тогда как скорости энергетической релаксации и расфазировки имеют тенденцию к расхождению.

До недавнего времени основная информация о динамике длинноволновых фононных мод в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) обеспечивалась исследованиями комбинационного рассеяния света (КР) и инфракрасной спектроскопии (ИК) [1,2]. Поскольку ВТСП кристаллы центросимметричны, правило альтернативного запрета ограничивает информацию, извлекаемую из КР спектров, четными, а в случае ИК спектров нечетными фононами. Оба вида спектроскопии, будучи типичными представителями методик частотной области, обеспечивают информацию о равновесных тепловых фононах. Продолжающийся процесс в лазерной технологии сделал возможным уменьшение длительности лазерного импульса до нескольких фемтосекунд, что открыло новые разнообразные перспективы исследований. Доступность и широкое использование фемтосекундных импульсов совпали по времени с открытием ВТСП, сделав доступным изучение колебаний решетки в реальном времени. Кроме того, при длительности импульса меньшей, чем обратная частота колебаний решетки, фононы могут быть приготовлены и исследованы в когерентном, а не в тепловом состоянии. Исследования в реальном времени, одним из типичных представителей которого является метод накачки данного фононного состояния с последующим зондированием двумя разделенными во времени лазерными импульсами (НЗ), в настоящее время активно проводятся для многих конденсированных систем [3]. Как правило, во временной области регистрируются КР активные фононы с энергиями меньше обратной длительности возбуждающего импульса, и для ВТСП такие исследования были проведены только для системы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, приготовленной в виде пленок на различных подложках [4–6].

Для того чтобы проследить сходство и возможное различие информации, извлекаемой из исследований в частотной и временной областях, мы провели сравнительное изучение фононных характеристик монокристаллов $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (Nd123) и $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (Bi2212) двумя взаимодополняющими оптическими методами —

КР и НЗ. Кристаллы Nd123 и Bi2212 имели температуры сверхпроводящего перехода $T_c = 94$ и 91 К, однако все измерения в данной работе сделаны при комнатной температуре. Изучение оптического отклика проводилось на ab плоскостях кристаллов. КР исследования осуществлялись в геометрии обратного рассеяния с использованием тройного спектрометра, оснащенного многоканальным детектором, при возбуждении линией $\lambda = 514$ nm Ar^+ лазера [7]. Измерения во временном диапазоне проводились с использованием фазочувствительного детектирования и импульсов лазера на титанате сапфира ($\lambda = 800$ nm) с длительностью менее 50 фемтосекунд [6].

На рис. 1, *a* показан типичный оптический отклик при возбуждении и последующем зондировании кристалла Bi2212 фемтосекундными импульсами. Возбужденное состояние кристалла релаксирует к равновесному состоянию за времена порядка 300–400 фемтосекунд. Наложены на эту электронную релаксацию являются быстрые осцилляции, показанные на вставке рис. 1, *a*. В данной работе исследуется только осциллирующая часть оптического отклика, порождаемая возбуждением когерентных оптических фононов. Для того чтобы проверить, как осцилляции, наблюдаемые методом НЗ, соответствуют КР активным модам кристалла, данные временного диапазона были численно трансформированы в частотный диапазон при помощи Фурье-преобразования. Типичный спектр, полученный в результате этого преобразования, представлен на рис. 1, *b*, тогда как КР спектр $x'x'$ -поляризации этого же кристалла показан на рис. 1, *c*. Два ярко выраженных пика на частотах 60 и 125 cm^{-1} соответствуют полносимметричным фононным модам, порождаемым смещениями ионов Bi и Cu. Согласно расчетам динамики решетки, обе моды происходят от смещений ионов перпендикулярно CuO_2 плоскости [8], однако экспериментальное исследование указало, что низкочастотная мода может быть поляризована в плоскости CuO_2 [9]. Сравнение полученных результатов показывает, что позиции фононных пиков, получаемых из измерений во временной и частотной областях, совпа-

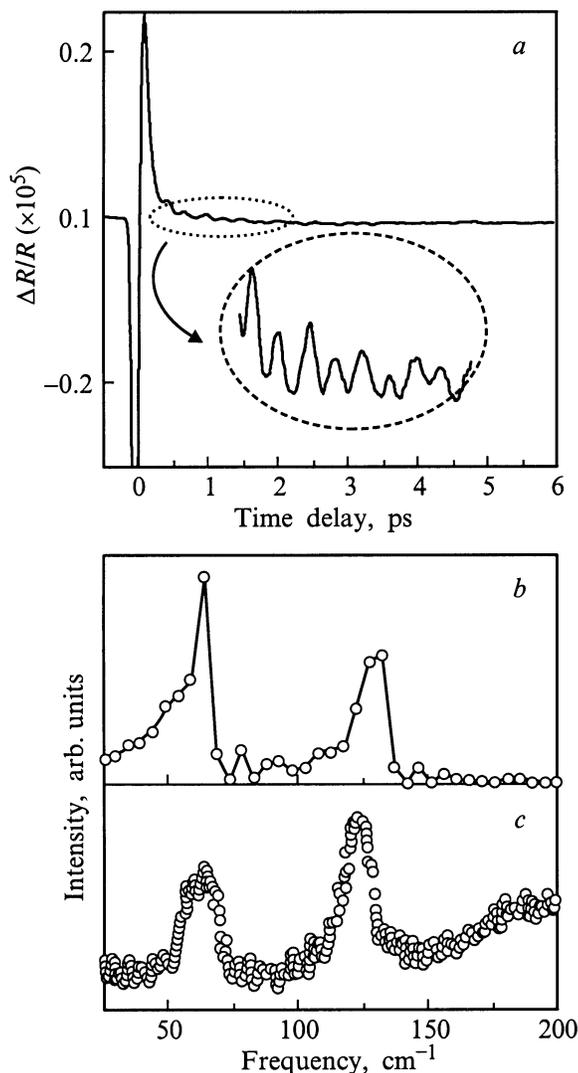


Рис. 1. Разрешенное во времени нормализованное отражение для кристалла $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. Вставка показывает осцилляции (a). Фурье-преобразованный временной отклик (b). КР спектр (c).

дают в пределах точности измерений. Также не сильно различаются относительные интенсивности пиков для КР спектра и фурье-преобразованного временного отклика. Однако полуширина спектральной линии $\Delta\nu$, получаемая из временных измерений, и соответственно параметр $Q = \nu/\Delta\nu$ ($Q = 12$ и 22 для низкочастотной и высокочастотной мод) всегда несколько больше, чем соответствующие величины, извлекаемые из данных КР ($Q = 9$ и 17).

Рис. 2 показывает аналогичный набор данных для случая кристалла Nd123 . В сравнении с Bi2212 осцилляции в Nd123 имеют большую амплитуду, однако амплитуда осцилляций меньше, чем в пленках Y123 [6]. В КР спектре Nd123 в низкочастотной части доминирует мода иона Ва, расположенная на 120 cm^{-1} [10].

Интенсивность моды иона Cu с частотой 152 cm^{-1} значительно меньше, что является характерным отличием от изоморфного Y123 , в котором интенсивности двух низкочастотных мод сравнимы по величине для данной поляризации [6,11]. Так же как в Bi2212 , обе моды являются полностью симметричными, и смещения поляризованы перпендикулярно купратной плоскости. Фурье-преобразованный временной отклик Nd123 показывает сходные с КР спектром частоты для двух низкочастотных мод. Интересно отметить, что относительные интенсивности мод, наблюдаемые в фурье-трансформированном отклике временной области, примерно совпадают с относительными интенсивностями КР спектра. Для Y123 сообщалось значительное расхождение между относительными интенсивностями мод в частотной и временной областях, и в большинстве исследований при

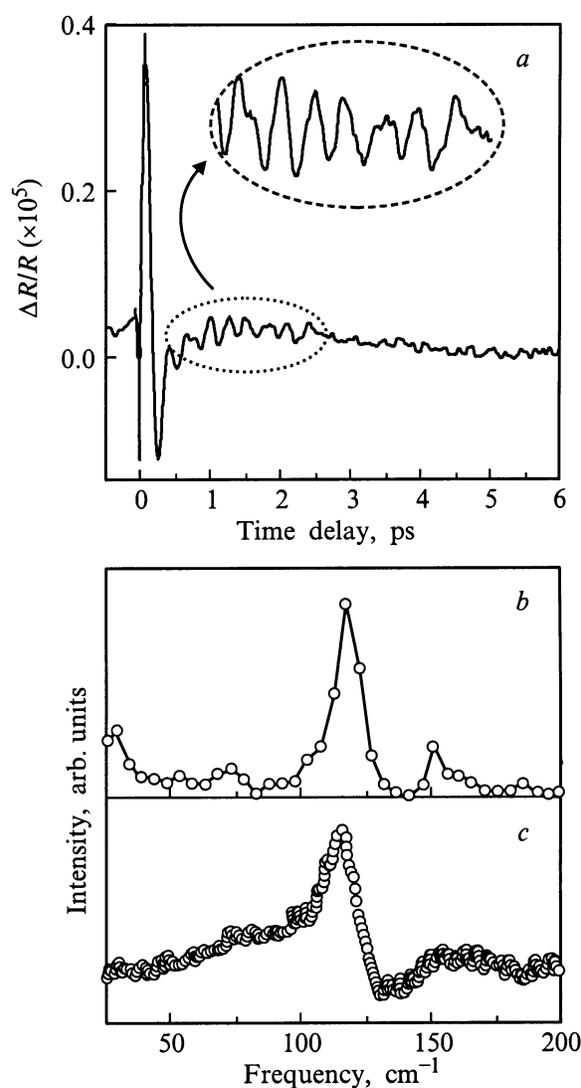


Рис. 2. Разрешенное во времени нормализованное отражение для кристалла $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$. Вставка показывает осцилляции (a). Фурье-преобразованный временной отклик (b). КР спектр (c).

комнатной температуре мода иона Cu была значительно слабее Ва-моды в спектрах временной области [4–6]. В кристалле Nd123, так же как и в Bi2212, параметр $Q = 21$ и 30 для низкочастотной и высокочастотной мод, наблюдаемых в временной области, больше, чем в КР спектре, где $Q = 11$ для низкочастотной моды. Различие в параметрах формы спектральной линии для данных временной и частотной областей не является неожиданным, поскольку две методики фактически измеряют различные состояния фононной системы — в случае фемтосекундных импульсов система приготовлена накачивающим импульсом в когерентном состоянии, для которого фаза является хорошо определенной величиной, тогда как КР измеряет систему в тепловом состоянии, где фаза неопределенна. Поэтому во временной области спектральная ширина фурье-преобразованного отклика характеризует скорость расфазировки (потеря фазовой памяти), а ширина фононной линии в КР спектре характеризует затухание. Фононное затухание определяется взаимодействием с резервуаром, которым в данном случае служат все остальные моды кристалла, и доминирующим вкладом является ангармоничный распад на две, как правило, акустические, моды.

Отметим, что при сравнительном изучении сверхпроводящих Y123 пленок и полуметаллов во временной и частотной областях была зарегистрирована похожая тенденция для параметра Q [5,6,12]. Также отметим попытку [5] приписать расхождение в ширине спектральной линии для частотной и временной областей различным длинам волн лазерного излучения, используемых в экспериментах (затухание Ландау) [13]. В данных экспериментах были также использованы различные длины волн для возбуждения, поэтому мы не можем исключить подобный эффект, однако наши предыдущие исследования подобных кристаллов методом КР не обнаружили порогового характера зависимости ширины линии от длины волны возбуждающего лазера [11]. Возможно, что отсутствие затухания Ландау в КР спектрах [14] связано с наличием структурного беспорядка в исследуемых кристаллах, поскольку для Nd123 существует беспорядок вблизи CuO_2 плоскостей, а для Bi2212 — вблизи Bi -плоскостей [10,11]. Следует также обратить внимание на то, что, хотя информация о фононной подсистеме в обеих методиках извлекается из измерений, производимых на фотонном поле, различные корреляционные функции измеряются в частотной и временной областях. За КР отвечают корреляторы типа $\langle a_i^\dagger a_i \rangle$, в то время как во временной области оптический отклик зависит от корреляторов типа $\langle a_i^\dagger a_j a_j^\dagger a_i \rangle$, где a_i^\dagger и a_i — операторы рождения и уничтожения. Во временной области мы измеряем корреляции интенсивности, зависимость которых от корреляций первого порядка определяется статистикой рассеивающих частиц (фононов) [15].

Таким образом, при помощи оптического исследования в частотной и временной областях проведено сравнение тепловой и когерентной динамик фононов для монокристаллов $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ и $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$.

Показано, что энергии тепловых и когерентных фононов совпадают, в то время как потеря фазовой информации в когерентном состоянии происходит медленнее, чем энергетическая релаксация.

Автор выражает благодарность Кансайскому исследовательскому центру, и в частности К. Сакани, за поддержку данного проекта.

Список литературы

- [1] R. Feile. *Physica* **C159**, **1** (1989); C. Thomsen. In: *Light Scattering in Solids VI* / Ed. by M. Cardona, G. Guenterodt. Springer, Berlin (1991). P. 285.
- [2] D.N. Basov, T. Timusk. In: *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths* / Ed. by K.A. Dschneidner, LeRoy Eyring, M.B. Maple. North-Holland (1999).
- [3] R. Merlin. *Solid State Commun.* **102**, 207 (1997).
- [4] J.M. Chwalek, C. Uner, J.F. Whitaker, G.A. Mourou, J.A. Agostinelli. *Appl. Phys. Lett.* **58**, 980 (1991).
- [5] W. Albrecht, Th. Kruze, H. Kurz. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1451 (1992).
- [6] O.V. Misochko, K. Kisoda, H. Harima, K. Mizogouchi, K. Sakai, S. Nakashima. *Physica* **C320**, 213 (1999); O.V. Misochko, K. Kisoda, K. Sakai, S. Nakashima. *Phys. Rev.* **B61** (2000), in press.
- [7] O.V. Мисочко. *ФТТ* **31**, 280 (1989).
- [8] J. Prade, A.D. kulkarni, F.W. de Wette, U. Shroeder, W. Kress. *Phys. Rev.* **B39**, 2771 (1989).
- [9] R. Liu, M.V. Klein, P.D. Han, D.A. Payne. *Phys. Rev.* **B45**, 7392 (1992).
- [10] O.V. Misochko, K. Kuroda, N. Koshizuka. *Phys. Rev.* **B56**, 9116 (1997).
- [11] O.V. Misochko, E.Ya. Sherman. *J. Modern Physics* **B24**, 2455 (1998).
- [12] T.K. Cheng, S.D. Brorson, A.S. Kazeroonian, J.S. Moodera, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus, E.P. Ippen. *Appl. Phys. Lett.* **57**, 1004 (1990).
- [13] B. Friedl, C. Thomsen, H.-U. Habermeyer, M. Cardona. *Sol. State Commun.* **81**, 989 (1992).
- [14] O.V. Misochko, E.Ya. Sherman. *Phys. Rev.* **B51**, 1326 (1995).
- [15] A.B. Белинский, М.В. Чехова. *ЖЭТФ* **108**, 1956 (1995); S. Ruhman, A.G. Joly, K.A. Nelson. *IEEE J. Quant. Electronics* **24**, 460 (1988).