

飞秒瞬态反射谱研究 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 费密面变化与电声子耦合

熊光成 邹英华 夏宗炬 袁 平 连贵君 李 浩

(北京大学人工微结构与介观物理国家重点实验室, 物理系, 北京 100871)

(1993 年 10 月 4 日收到)

利用飞秒脉冲激光与泵浦-探测技术测量了 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (其中 $\delta = 0.0, 0.1, 0.4, 0.8$) 外延薄膜的瞬态反射率改变随时间变化曲线。由于氧含量的不同使得样品瞬态反射率改变随时间变化曲线有很大差异。瞬态反射率改变随时间变化的曲线符号变化可以理解为氧含量的变化改变了样品费密面附近的能带结构。对实验数据的拟合表明 $\delta = 0.4$ 的样品电声子耦合远弱于高 T_c $\delta = 0$ 的样品。

PACC: 7470V; 7475; 7847

1 引 言

利用超短激光脉冲激发样品中非平衡载流子, 测量样品瞬态光谱的变化是近年发展的一种研究样品费密面附近电子能带结构及电声子相互作用的新实验技术。在泵浦-探测光学实验方法中, 超短脉冲泵浦激光束将样品中载流子激发到非平衡位置, 改变了样品的光学性质。利用延时到达的探测光可以测量到样品中被激发的非平衡载流子弛豫过程。样品的瞬态光谱变化反映了费密面附近电子能带的结构信息, 而非平衡载流子的弛豫过程主要受电子-声子相互作用影响。超短光脉冲及检测技术的进展推进了这一领域的研究工作^[1-3]。利用飞秒激光脉冲可以研究亚皮秒级的弛豫过程; 使用锁相放大与差分技术可以探测光强 10^{-5} 的变化; 计算机控制的光学延迟线与数据采集系统可以方便地检测瞬态光谱及进行数据拟合。

由超快激光脉冲激发的非平衡载流子弛豫过程主要反映非平衡载流子通过电子-声子相互作用趋向平衡的过程。1987 年 Allen 提出可以通过飞秒瞬态时间光谱的测量数据计算得到电声子耦合常数 λ 并给出理论分析公式^[4]。实验中电子被超快激光脉冲加热到远高于晶格温度和样品德拜温度。通过电子-声子相互作用, 电子温度 T_e 弛豫趋向平衡值。在此, 弛豫时间由超导理论中重要的电声子耦合常数 $\lambda\langle\omega^2\rangle = \eta/M$ 所决定。分析工作表明, 目前还没有其它实验能更直接测得 $\lambda\langle\omega^2\rangle$ ^[5]。近年来利用飞秒激光脉冲、泵浦-探测和光学延时技术研究氧化物高 T_c 材料性质的文献已发表多篇^[7-11]。

氧化物高 T_c 超导体发现不久, 人们就认识到 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 中氧含量的变化对样品的性质影响极大^[12]。在 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 中, $\delta = 0$ 的材料是超导体 $T_c \sim 92\text{K}$ 。当 $\delta \sim 0.5$

时, 样品显现半导体材料的输运特性。钇系超导体性质随氧缺位的改变通常用能带中与氧有关的空穴数变化来解释^[13]。为了进一步认清这一现象, 我们利用飞秒瞬态光谱对氧缺位引起的样品费密面变化及电声子相互作用进行了研究。

本文介绍我们对高 T_c 超导体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 外延薄膜样品的室温飞秒瞬态反射率改变随时间变化的研究结果。

2 实验与样品

在超快激光脉冲热调制引起样品瞬态反射率随时间变化的测量中使用了飞秒脉冲激光器、泵浦-探测技术、计算机控制的光学延迟线、锁相放大及数据采集系统。该实验设备与技术细节详述如下。锁模 YAG 激光器二次谐波同步泵浦染料激光系统产生脉宽 150 fs 的超短激光脉冲, 脉冲重复频率约为 76 MHz。利用分光镜将飞秒脉冲分为泵浦光束与探测光束。泵浦光与探测光的光强比约为 10:1。极化后的泵浦光经透镜聚焦垂直入射样品表面, 入射光斑直径约为 30 μm 。极化方向与泵浦光垂直的探测光经计算机控制的可调节光学延迟线后聚焦到样品表面, 聚焦光斑直径约为 20 μm 。为测量样品由飞秒泵浦脉冲产生的热调制引起的反射率改变, 探测光斑位于泵浦光斑内。为了使用锁相放大器放大经硅光敏二极管检测到的光信号, 利用斩波器对泵浦光进行调制, 调制频率约为 3 kHz。为消除激光脉冲能量涨落对测量的影响, 在泵浦光束中分出参考信号同时引入锁相放大器进行差分放大。利用计算机控制与调节光学延迟线及采集记录反射光变化数据。整个实验装置见图 1。

实验中使用的 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 超导薄膜是利用准分子脉冲激光淀积的外延薄膜, 薄膜厚度约为 200 nm。薄膜衬底为取向(100)的抛光钇稳定的氧化锆单晶。准分子激光制备外延高 T_c 超导薄膜的方法见文献[14]。激光制备的 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜有很好的外延质量, 且 c 轴垂直于膜面。利用电感法测量了样品的超导转变温度。 $\delta = 0$ 的高 T_c 样品超

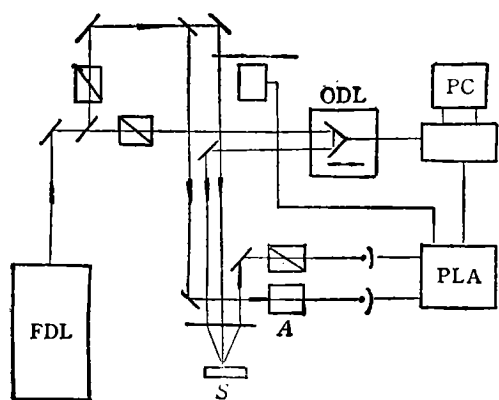


图1 光学瞬态过程及泵浦-探测系统原理图
FDL 为飞秒染料激光器; S 为样品; A 为衰减器;
ODL 为光学延迟线; PLA 为锁相放大器, PC
为计算机

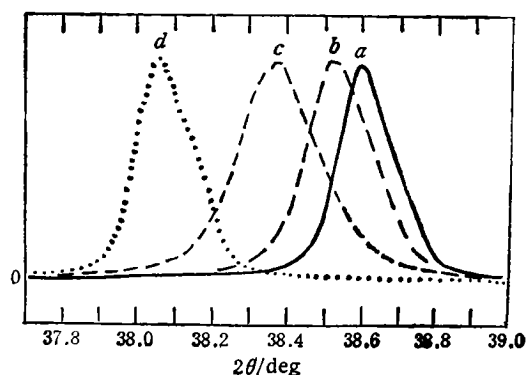


图2 不同氧含量的外延 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜
(005) X 射线衍射峰谱图 对应的 δ 值分
别为 a: $\delta = 0$; b: $\delta = 0.1$; c: $\delta = 0.4$;
d: $\delta = 0.8$

导转变温度 $T_c \sim 91\text{K}$, 转变宽度 $\Delta T < 0.3\text{K}$ 。为了调节 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜样品的氧含量, 在 Ar 气氛中对高 T_c 样品进行了热处理。利用 X 射线衍射测量了经热处理后的样品 c 轴晶格常数。图 2 为四个样品 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}(005)$ X 射线衍射峰谱图。图 2 表明经热处理后样品失去氧引起了 c 轴晶格常数改变。四个样品(005)衍射峰的半高宽均小于 0.3 度, 这说明样品内氧的含量是均匀的。样品的 X 射线衍射图说明脱氧处理对样品的整体结构没有影响。借助大块样品中获得的实验数据利用 X 射线衍射测得的 c 轴晶格常数估计了四块样品中的氧含量^[12]。对应图 2 中样品 a, b, c, d 的 δ 值分别为 $0, 0.1, 0.4, 0.8$ 。

3 实验结果

对于氧含量不同的四个样品测量了飞秒光脉冲引起的反射率改变量 $\Delta R/R$ 随探测光延迟时间的变化, 测量曲线见图 3。实验中使用的激光波长为 647nm 。测量中泵浦光单脉冲能量为 0.5nJ 。

图 3 中的四条曲线在泵浦光脉冲入射前的阶段反映信号在 $\Delta R/R = 0$ 的基准线附近涨落情况。图 3 可见经泵浦光照射后四个样品的 $\Delta R/R$ 瞬态变化有明显不同。 $\delta = 0$ 的高 T_c 超导样品 $a(T_c = 91\text{K})$ 经泵浦光入射后反射率增加, 对应 $\Delta R/R$ 有正的峰(见图 3 曲线 a)。对照曲线 c 与 d , $\Delta R/R$ 显示负的峰变化。这说明 $\delta = 0.4$ (样品 c) 与 $\delta = 0.8$ (样品 d) 的样品经泵浦脉冲激发后反射率下降。样品 $b(\delta = 0.1, T_c = 76\text{K})$ 似乎正跨越 $\Delta R/R$ 由正到负转变的某一临界值, 经泵浦光照射后没有可观察到的迅速变化的 $\Delta R/R$ 峰。

有 $\Delta R/R$ 瞬态变化峰的四条曲线随时间衰减情况也有显著不同。样品 a 的 $\Delta R/R$ 曲线经峰值后衰减的弛豫时间小于 200fs 。样品 c 与 d 的 $\Delta R/R$ 曲线衰减弛豫时间要远大于 a 的弛豫时间。样品 a, c 与 d 的 $\Delta R/R$ 曲线变化的前沿均上升或下降十分迅速, 约 200fs 则达到极值。考虑到样品处的泵浦光脉冲宽度约为 165fs (经样品处 KDP 中二次谐波产生测得的自相关曲线推算得到的数值), 与样品 $\Delta R/R$ 变化联系的是一快速过程。

4 数据分析与讨论

图 3 中观察的是样品被泵浦光照射后引起的反射率改变随时间变化的曲线。材料的反射率 R 是由材料复介电常数所决定。在飞秒脉冲泵浦光入射后, 材料的复介电常数发生了变化, 这导致样品的反射率改变。图 3 中三个有瞬态反射率改变峰的曲线均有很快变化的峰前沿。考虑到泵浦光的脉宽, 迅变的 $\Delta R/R$ 峰前沿说明与泵浦光照射联系的是电子吸收泵浦光子能量而激发的快速过程。飞秒实验中, 泵浦光入射激发电子使样品电子温度升高。电子温度升高改变了费密面附近电子的态密度, 使费密面进一步模糊并改变了样品的介电常数。与飞秒瞬态谱有关的是吸收能量为 $\hbar\omega$ 光子的电子跃迁过程, 在此 ω 为探测光频率。飞秒反射率实验中迅变的 $\Delta R/R$ 峰反映由于费密面模糊而引起电子跃迁几率变化。由费密统计分布决定的样品费密面附近电子能态密度在由于泵浦光

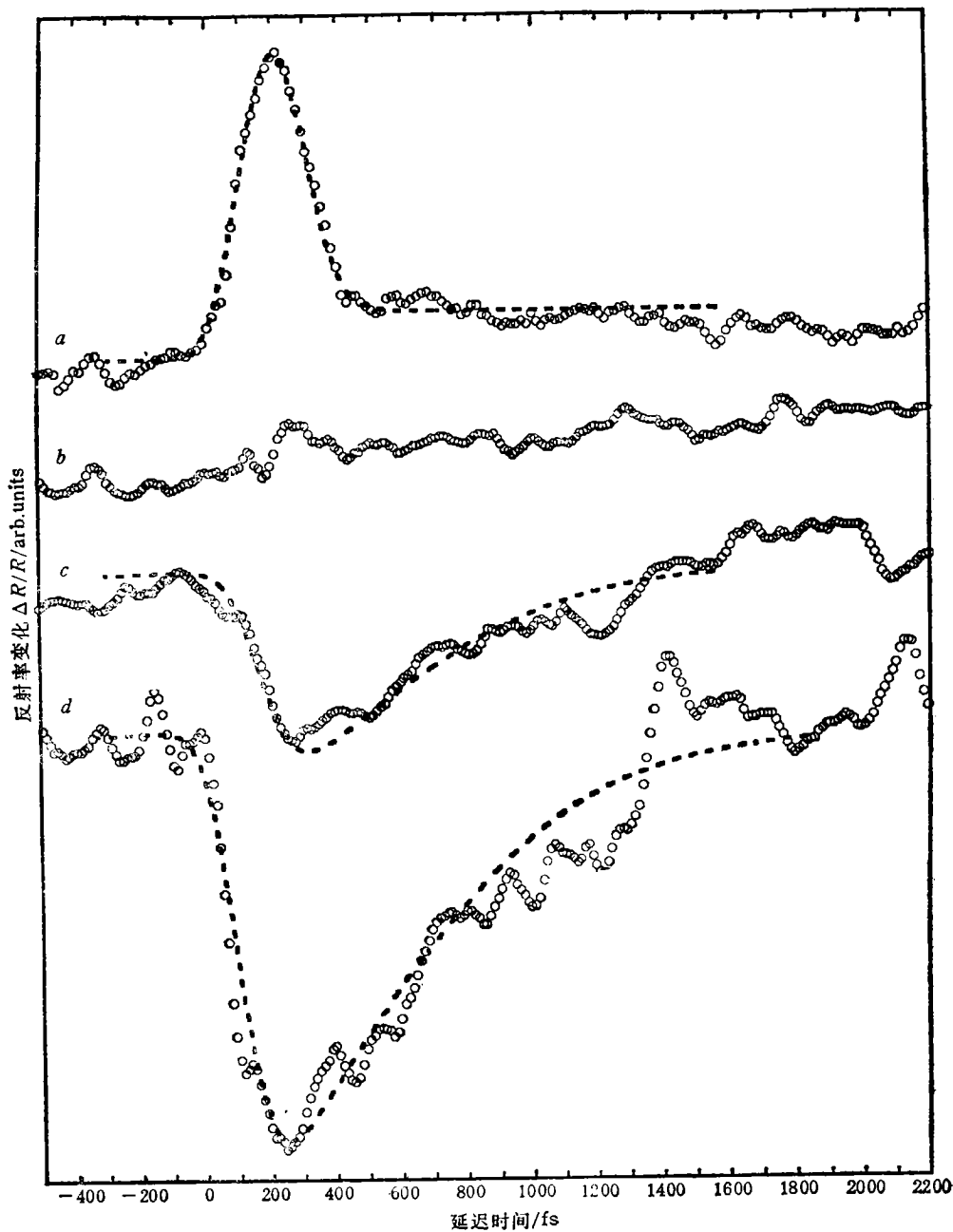


图3 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 样品的飞秒瞬态反射率改变随时间变化的数据 对应的样品分别为 $a: \delta = 0$;
 $b: \delta = 0.1$; $c: \delta = 0.4$; $d: \delta = 0.8$; 虚线为依(1)式对实验数据进行的拟合曲线

激发引起电子温度升高后改变. 比费密面高的电子态密度增加, 比费密面低的电子态密度减少. 正是费密面上下电子态密度变化趋势的不同导致飞秒瞬态光谱中 $\Delta R/R$ 信号符号的变化是对这一实验的合理解释^[1,7]. 在图3中观察到的 $\Delta R/R$ 数据符号的变化则反映在 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 样品中氧含量的变化(δ 值不同)改变了材料费密面附近的能带结构.

飞秒瞬态谱 $\Delta R/R$ 峰变化的后沿反映被泵浦光激发到高温的电子与晶格交换能量, 趋于热力学平衡态的过程。电子与晶格温度趋向平衡态的弛豫过程可以用两个非线性微分方程来描述^[15,16]

$$c_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = -G(T_e - T_l), \quad (1a)$$

$$c_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e - T_l), \quad (1b)$$

其中 T_e 与 T_l 分别为电子温度与晶格温度, c_l 为晶格比热, $c_e = \gamma T_e$ 为电子比热。方程(1)可以利用计算机求解得到 T_e 与 T_l 随时间变化的曲线。在 $\Delta R = a\Delta T_e + b\Delta T_l$ 的假设下通过拟合实验数据求得常数 G 的数值^[6]。Allen 认为飞秒实验中过热的电子通过电声子相互作用与晶格交换能量, 因此方程(1)中的 $G = 3\hbar\gamma\lambda\langle\omega^2\rangle/\pi k_B$, 其中 $\lambda\langle\omega^2\rangle = \eta/M$ 为超导理论中很重要的反映电声子耦合的参数。利用方程(1)对 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 样品 $\Delta R/R$ 有瞬态变化峰的三组实验数据进行了拟合。拟合曲线见图 3 虚线。利用拟合曲线计算了不同样品瞬态谱的弛豫时间。对应样品 a , c 和 d 的弛豫时间分别为 170, 575 和 600fs。弛豫时间的变化说明 δ 的变化对 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 中电声子相互作用也有相当大的影响。

超导实验中由于 δ 的增加 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 的超导转变温度 T_c 将下降, 这可理解为氧的缺位使得参与输运过程的超导有贡献的空穴数减少。Hall 系数的测量证实了这点。在飞秒瞬态光谱实验中观察到由于 δ 增加引起了 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 能带结构的变化以及对电声子相互作用的影响。飞秒瞬态反射率改变的峰对应于样品费密面附近电子激发与弛豫的情况。结合超导实验可以用两带模型理解飞秒实验观察到的现象。氧缺位的增加使 CuO_2 面的空穴浓度下降。若对输运与超导无贡献的局限空穴与晶格相互作用不强, 这可解释随 δ 增加电声子相互作用有引人注目的减弱。

5 结 论

利用飞秒激光与泵浦-探测技术测量了 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 不同氧含量样品 ($\delta = 0, 0.1, 0.4, 0.8$) 的瞬态反射率改变随时间变化的曲线。观察到由于 δ 改变引起样品费密面附近能带结构的变化而造成 $\Delta R/R$ 信号由正到负的转变。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 中的氧缺位还使电声子相互作用有引人注目的减小。 δ 增加使样品 T_c 下降及观察到的飞秒瞬态光谱变化可以用两带模型来理解。

感谢甘子钊教授提出并支持了这项研究工作。对林为洙教授、曾文生博士在实验技术方面的合作与帮助及与韩汝珊教授的有益讨论表示衷心感谢。

[1] G. L. Eesley, *Phys. Rev. Lett.*, **51**, (1983), 2140.

[2] J. Shah, B. Deveaud, T. C. Damen, W. T. Tsang, A. C. Cossard, P. Lugli, *Phys. Rev. Lett.*, **59** (1987), 2222.

[3] P. C. Becker, D. Lee, A. M. Johnson, A. G. Prosser, R. D. Feldman, R. F. Austin, R. E. Beh-

- ringer, *Phys. Rev. Lett.*, **68** (1992), 1876.
- [4] P. C. Becker, H. L. Fragnito, C. H. B. Cruz, J. Shah, R. L. Fork, J. E. Cunningham, J. E. Henry, C. Y. Shank, *Appl. Phys. Lett.*, **53** (1988), 2089.
- [5] K. S. Wong, S. G. Han, Z. V. Vardeny, *J. Appl. Phys.*, **70** (1991), 1896.
- [6] P. B. Allen, *Phys. Rev. Lett.*, **59** (1987), 1460.
- [7] S. D. Brorson *et al.*, *Solid State Commun.*, **74** (1990), 1305.
- [8] S. G. Han, Z. V. Vardeny, K. S. Wong, O. G. Symko, G. Koren, *Phys. Rev. Lett.*, **65** (1990), 2708.
- [9] A. S. Kazeroonian *et al.*, *Solid State Commun.*, **78** (1991), 95.
- [10] S. V. Chekalin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **67** (1991), 3860.
- [11] W. Albrecht, Th. Kruse, H. Kurz, *Phys. Rev. Lett.*, **69** (1992), 1451.
- [12] J. M. Tarascon, P. Barboux, B. G. Bagley, L. H. Greene, W. R. McKinnon, G. W. Hull, in *Chemistry of High-Temperature Superconductors*, eds. by D. L. Nelson, M. S. Whittingham, T. F. George (American Chemical Society, Washington DC, 1987), p. 198.
- [13] Z. Z. Wang, J. Clayhold, N. P. Ong, J. M. Tarascon, L. H. Greene, W. R. McKinnon, B. W. Hull, *Phys. Rev.*, **B36** (1987), 7222.
- [14] 熊光成、连贵君、李洁、甘子钊, 低温物理学报, **14**(1992), 167.
- [15] H. E. Elsayed-Ali, T. B. Norris, M. A. Pessot, G. A. Mourou, *Phys. Rev. Lett.*, **58** (1987), 1212.
- [16] R. W. Schoenlein, W. Z. Lin, J. G. Fujimoto, G. L. Easley, *Phys. Rev. Lett.*, **58** (1987), 1680.

THE RELATIVE FERMI LEVEL POSITION AND THE ELECTRON-PHONON COUPLING OF $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ STUDIED BY FEMTOSECOND TRANSIENT REFLECTIVITY

XIONG GUANG-CHENG ZOU YING-HUA XIA ZONG-JU

YUAN PING LIAN GUI-JUN LI JIE

(National Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics,
Department of Physics, Peking University, Beijing 100871)

(Received 4 October 1993)

ABSTRACT

The femtosecond pulsed laser and pump-probe method have been used to measure the transient change of reflectivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($\delta = 0.0, 0.1, 0.4$ and 0.8) thin films. From the experimental curves the transient changes are found to be very different for samples with different oxygen content. The sign of the changes can be reversed as decreasing the oxygen content. It may be attributed to the changes of energy band structure near the Fermi level. After fitting the experimental data, we reveal that the electron-phonon coupling in the sample of $\delta = 0.4$ is much weaker than high T_c ($\delta = 0.0$) sample.

PACC: 7470V; 7475; 7847