

Московский государственный университет  
имени М.В. Ломоносова  
физический факультет

На правах рукописи

Бобырев Юрий Владимирович

**Нелинейная спектроскопия высокотемпературных  
сверхпроводников: интерпретация спектральных, временных и  
температурных особенностей нелинейного отклика при высоких  
и низких уровнях возбуждения**

Специальность 01.04.21 - лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Москва, 2007

Работа выполнена на кафедре общей физики и волновых процессов физического  
факультета

Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова

Научный руководитель	доктор физико - математических наук, профессор Владимир Владимирович Шувалов
Официальные оппоненты:	доктор физико - математических наук Першин Сергей Михайлович доктор физико - математических наук, профессор Акципетров Олег Андреевич
Ведущая организация	Институт спектроскопии РАН

Защита состоится “19” \_апреля\_ 2007 года в \_\_\_\_\_ часов на заседании  
диссертационного совета Д 501.001.31 в Московском государственном университете  
им. М.В. Ломоносова по адресу: 119992 ГСП-2, г.Москва, ул. Академика Хохлова, д.  
1, Корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке физического факультета МГУ

Автореферат разослан “ \_\_\_ ” \_\_\_\_\_ 2007 года

Ученый секретарь диссертационного  
Совета Д 501.001.31, доцент

Т.М. Ильинова

## Актуальность проблемы

Развитие методов и техники генерации сверхкоротких лазерных импульсов стимулировало изучение процессов сверхбыстрой релаксации фотовозбуждения в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП). Конечно, столь значительный интерес к экспериментам подобного рода связан и с прекрасными перспективами практического использования сверхбыстрых и сверхчувствительных ВТСП болометров. Однако гораздо важнее то, что такие исследования способны дать качественно новую информацию, проливающую свет на физику самого явления ВТСП, которое до сих пор так и не имеет однозначной трактовки.

На сегодняшний день уже накоплен огромный экспериментальный материал по исследованию кинетики тонких пленок ВТСП самыми разными методами. Однако характер процессов, протекающих в таких пленках во время и сразу после их сверхбыстрого оптического возбуждения, пока остается не до конца ясным. Так, в ряде экспериментов, проведенных в классической модификации метода пробного пучка, было установлено, что в окрестности точки (температуры)  $T_0 \approx T_c$  фазового перехода в сверхпроводящее состояние время релаксации  $\tau_R$  нелинейного отклика, которое традиционно связывалось с процессами релаксации фотовозбужденных носителей, резко растет. Именно такое поведение  $\tau_R$  вблизи  $T_c$  предсказывала и теория для низкотемпературных сверхпроводников, поскольку одновременно с формированием энергетической (сверхпроводящей) щели в их электронном спектре более жесткими должны становиться и ограничения, налагаемые на фазовое пространство электронных состояний в актах рассеяния. Однако уже вскоре было показано, что указанная особенность наблюдается лишь при очень высоких уровнях возбуждения, т.е. именно в тех условиях, когда исходно сверхпроводящий образец практически мгновенно должен «забывать» любую информацию о своем исходном состоянии (начальной температуре  $T_0$ ). В экспериментах по пикосекундному двухфотонному зондированию кинетики спектра электронных состояний сверхпроводящих пленок  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , предварительно возбужденных столь же коротким импульсом накачки, (нестационарная модификация метода бигармонической накачки (БН)) было выяснено, что, несмотря на весьма

существенное изменение температуры ( $\Delta T \sim 20 \div 40$  К) исходно сверхпроводящего ( $T_0 \approx 80$  К) образца за счет импульса накачки, при задержках момента зондирования вплоть до  $\tau \sim 1$  нс все признаки наличия энергетической щели в его электронном спектре сохраняются. В то же время, из исследований кинетики проводимости ВТСП мостиков хорошо известно, что сверхпроводимость в таких условиях должна исчезать за времена  $\sim 1$  пс. В экспериментах, проведенных с использованием пробного импульса с длиной волны  $\lambda$ , отличающейся от длины волны импульса накачки  $\lambda_p$ , было показано, что время релаксации нелинейного отклика меняется от 180 до 800 фс в зависимости от выбора спектрального положения точки  $\lambda$  зондирования. При этом на зависимости  $\Delta R(\lambda, \tau)$  величины мгновенных ( $\tau = \text{const}$ ) изменений коэффициента отражения  $R$  ВТСП образца наблюдаются хорошо выраженные спектральные особенности. В то же время, интерпретация данных, полученных в ходе подобных экспериментов, почти всегда проводится в рамках предположения о поглощении излучения на свободных носителях. Спектральные особенности у нелинейного отклика при этом должны просто отсутствовать, что прямо противоречит результатам упомянутых выше экспериментов.

На момент начала работы над диссертацией в области нестационарной нелинейной спектроскопии ВТСП сложилась парадоксальная ситуация, в которой модельные представления, развитые для интерпретации данных соответствующих экспериментов, оказались далеко не универсальными и не могли объяснить всех перечисленных выше спектральных, температурных и временных особенностей характера поведения нелинейного отклика. Модели, разработанные для объяснения результатов экспериментов, проведенных в каких-то конкретных условиях каким-то конкретным методом нелинейной спектроскопии, не только не объясняли данных, полученных в других условиях с использованием других методов, а чаще всего им просто полностью противоречили.

### Цель работы

Целью настоящей диссертационной работы являлось непротиворечивое объяснение основных спектральных, временных и температурных особенностей характера поведения нелинейного отклика ВТСП, наблюдавшихся разными методами нестационарной (фемтосекундной и пикосекундной) нелинейной

спектроскопии в разных условиях (в том числе при разных уровнях возбуждения). Для этого в ходе выполнения работы необходимо было решить следующие задачи:

- 1) построить кинетическую модель, адекватно описывающую характер изменения поведения термодинамических параметров (положения уровней Ферми  $E_{e,h}^F$  для свободных «электронов» и «дырок», температур электронной и дырочной подсистемы  $T_{e,h}$ , и температуры решетки  $T_p$ ) ВТСП пленки во время и после ее быстрого возбуждения коротким импульсом накачки при изменении начальной температуры  $T_0$  ВТСП образца и уровня его возбуждения;
- 2) построить модель, адекватно описывающую нелинейный отклик ВТСП пленки в разных модификациях метода пробного импульса (режимы однофотонного и двухфотонного зондирования спектра возбужденных состояний) за счет максимально реалистичного учета особенностей электронного спектра ВТСП, а также корректного учета других вкладов в полный нелинейный отклик;
- 3) в рамках этих моделей с использованием единого набора подгоночных параметров интерпретировать все те спектральные, температурные и временные особенности нелинейного отклика ВТСП, которые на сегодняшний день известны из результатов реальных экспериментов по фемтосекундной и пикосекундной спектроскопии ВТСП с однофотонным и двухфотонным зондированием спектра возбужденных состояний.

#### Научная новизна

- 1) В предположении замороженной (метастабильной) энергетической щели в спектре возбужденных электронных состояний ВТСП для модельной зонной структуры, учитывающей основные особенности электронного спектра, построена кинетическая модель, описывающая кардинальное изменение характера кинетики термодинамических параметров  $E_{e,h}^F$ ,  $T_{e,h}$  и  $T_p$  электронной, дырочной и фононной подсистем при изменении уровня возбуждения ВТСП образца импульсом накачки.
- 2) В рамках того же предположения о замороженной энергетической щели в спектре состояний и той же зонной структуры построена модель, единым образом описывающая нелинейный отклик ВТСП в разных модификациях метода пробного импульса (однофотонное либо двухфотонное зондирование кинетики состояний,

возбуждаемых фемтосекундными либо пикосекундными лазерными импульсами) при разных уровнях возбуждения.

3) С использованием двух указанных моделей с единым набором подгоночных параметров впервые интерпретированы практически все известные спектральные, температурные и временные особенности нелинейного отклика ВТСП, которые наблюдались в реальных экспериментах по фемтосекундной и пикосекундной нелинейной спектроскопии ВТСП пленок при разном уровне их возбуждения и однофотонном и двухфотонном зондировании кинетики возбужденных состояний.

#### Защищаемые положения

1) Учет вкладов от всех возможных межзонных переходов в электронном спектре с особенностью, имитирующей метастабильную энергетическую щель, в линейную и нелинейную восприимчивость ВТСП позволяет в рамках единой модели с ограниченным набором подгоночных параметров интерпретировать спектральные, временные и температурные особенности нелинейного отклика, наблюдавшиеся в ВТСП методами нелинейной спектроскопии при разных уровнях возбуждения. В частности, это позволяет объяснить:

- температурные особенности на зависимости времени релаксации  $\tau_R$  нелинейного отклика от начальной температуры  $T_0$  ВТСП образца в окрестности точки  $T_0 \approx T_c$  фазового перехода (метод пробного импульса, высокий уровень возбуждения);
- спектральные особенности на зависимостях изменения коэффициента отражения  $\Delta R$  и времени релаксации  $\tau_R$  нелинейного отклика от длины волны зондирования  $\lambda$  (метод пробного импульса, низкий и высокий уровень возбуждения);
- сохранение признаков существования энергетической щели в спектре состояний ВТСП, возбуждаемых пикосекундным импульсом накачки при задержках момента двухфотонного зондирования вплоть до  $\tau \sim 1$  нс (нестационарная модификация метода пикосекундной бигармонической накачки).

2) Метод пикосекундной бигармонической накачки может быть использован как эффективный инструмент диагностики параметров энергетической щели в спектре электронных состояний ВТСП при размещении точки совмещения частот компонент БН в окрестности точек, в которых нерезонансная часть электронного нелинейного

отклика подавляется за счет интерференции вкладов от нескольких одновременно протекающих электронных межзонных переходов.

#### Апробация работы

Результаты диссертационной работы докладывались на семи международных конференциях: IQEC 2002 (Moscow, Russia, June 22 – 27, 2002), 11<sup>th</sup> International Laser Physics Workshop (Slovakia, Bratislava, July 1-5, 2002), Ломоносовские чтения 2003, секция физики (Россия, Москва, Физический факультет МГУ, 18 - 25 апреля, 2003), XI Conference on Laser Optics (Russia, St. Petersburg, June 30 – July 4, 2003), 12<sup>th</sup> International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT'2004, Italy, Rome, «Sapienza» University – Frascati, ENEA Centre, September 10 - 15, 2004), ICONO 2005 (Russia, St. Petersburg, May 11 - 15, 2005), 13<sup>th</sup> International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT'2005, China, Tianjin, September 03 - 06, 2005) и опубликованы в трудах перечисленных выше конференций, а также в 9 статьях в журнале «Квантовая электроника»

#### Структура и объем работы

Диссертация состоит из введения, четырех глав, приложения, заключения и списка использованной литературы. Полный объем диссертационной работы составляет 156 страниц, включая 27 рисунков. Библиография использованной литературы содержит 187 наименований, в том числе 18 авторских публикаций.

#### Личный вклад

Все изложенные в работе оригинальные результаты получены автором диссертации лично либо при его непосредственном участии. Автор принимал участие в постановке задач исследования и построении всех физических моделей, проводил написание и отладку программ, необходимых для проведения численных расчетов, а также само численное моделирование и анализ полученных его рамках физических результатов.

#### Содержание работы

**Во введении** сформулированы цель диссертационной работы, защищаемые положения, научная новизна и практическая значимость полученных результатов. Здесь же кратко изложено содержание диссертации по главам.

**Первая глава** носит обзорный характер и в основном посвящена анализу результатов, полученных в ходе экспериментальных исследований ВТСП разными спектроскопическими методами. Рассмотрены особенности спектра электронных состояний ВТСП, проявления которых собственно и должны наблюдаться во всех подобных экспериментах. Проведен краткий обзор результатов, полученных при попытках их обнаружить с помощью стандартных (с точки зрения спектроскопии низкотемпературных сверхпроводников) стационарных методик (туннельная и ИК спектроскопия, спектроскопия спонтанного комбинационного рассеяния света). Проанализированы данные, полученные в ходе экспериментальных исследований кинетики релаксационных процессов гибридными (боллометрическими) методами, а также в различных модификациях метода пробного импульса. В частности - в модификациях с однофотонным (классическая версия метода пробного импульса и спектрохронография) и двухфотонным (нестационарные версии методов БН и ВЧФС) зондированием возбужденных состояний. Основное внимание при этом уделено спектральным, временным и температурным особенностям характера нелинейного отклика, которые были обнаружены практически во всех экспериментах такого рода, а также весьма серьезным проблемам, возникающим при попытках их интерпретации. В заключительном параграфе этой главы проведена аргументация предположения о метастабильном характере энергетической щели (псевдощели) в спектре состояний ВТСП, на котором собственно и основано последовательное объяснение наблюдаемых методами нелинейной спектроскопии «аномалий» в последующей, оригинальной части диссертационной работы.

**Вторая глава** диссертации является оригинальной. В этой главе построена замкнутая система кинетических уравнений, описывающая временную эволюцию отклонения термодинамических параметров  $E_{e,h}^F$ ,  $T_{e,h}$  и  $T_p$  электронной, дырочной и фононной подсистем ВТСП пленки от исходных (равновесных) значений  $E_0^F$ ,  $T_0$  во время и после ее ударного возбуждения коротким импульсом накачки. При этом использована максимально реалистичная модель электронного спектра, представляющего собой заимствованную из литературы зонную структуру  $La_2CuO_4$ , в которую принудительно введена особенность, температурная зависимость ширины которой имитирует поведение замороженной (метастабильной) энергетической щели

и соответствует теории БКШ. В конце главы приведены результаты численного решения построенной системы для начальных условий и значений параметров, соответствующих условиям реальных экспериментов с пленками  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  на подложках из  $\text{SrTiO}_3$ , поглощающими 30% (толщина пленки  $\sim 200$  нм) от полной энергии  $4 \cdot 10^{-7}$  Дж импульса накачки на длине волны  $\lambda_p = 800$  нм, имеющего длительность 30 фс либо 20 пс и сфокусированного в пятно диаметром 150 мкм. Показано, что характер временной эволюции всех перечисленных выше термодинамических параметров пленки имеет ярко выраженные температурные особенности (Рис.1), возникающие лишь при высоком уровне возбуждения образца за счет резкого снижения скоростей процессов трехчастичной безызлучательной рекомбинации избыточных свободных носителей в условиях сильного вырождения. Установлено, что именно такая ситуация реализуется в ВТСП за счет специфики распределения плотности электронных состояний практически сразу же после снижения начальной температуры  $T_0$  образца до температуры  $T_c$  открытия энергетической щели в спектре состояний.

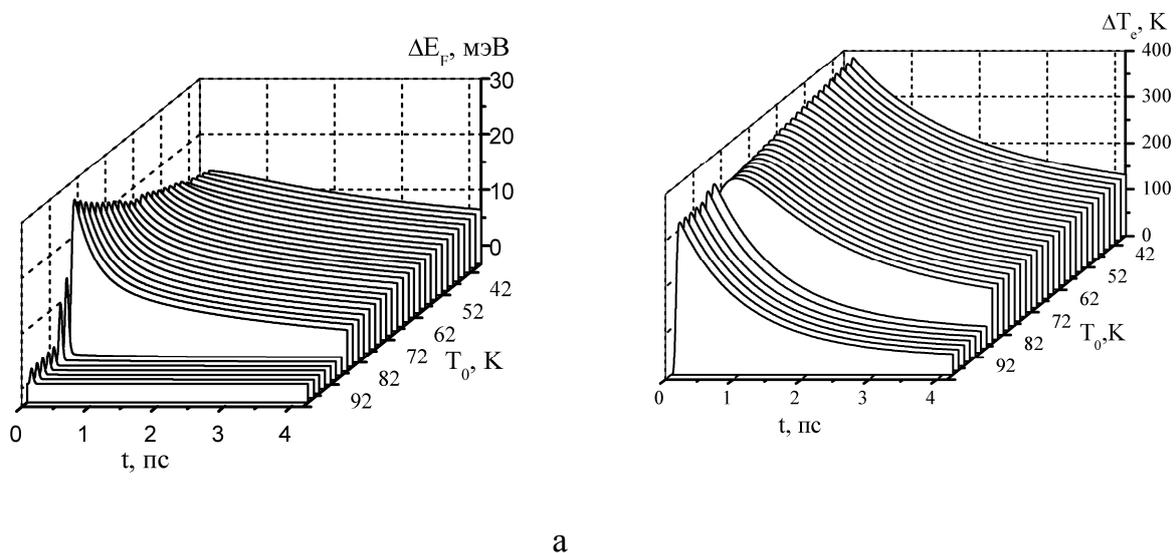


Рис.1. Изменение кинетики  $\Delta E_F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$  (а) и  $\Delta T_e(t) = T_e(t) - T_0$  (б) за счет импульса накачки (длительность  $\tau_p = 30$  фс, энергия  $4 \cdot 10^{-7}$  Дж) при вариациях  $T_0$ .

**Третья глава** диссертационной работы также является оригинальной. В этой главе описана модель электронной части нелинейного отклика ВТСП пленки в

классической модификации метода пробного импульса (одnofотонное зондирование кинетики релаксации возбуждения) и приведены результаты численного моделирования данных соответствующих экспериментов. При моделировании считается, что в нелинейный отклик (изменение  $\Delta R$  коэффициента отражения  $R$ ) ВТСП пленки обусловлен изменением  $\delta\varepsilon$  величины ее исходной комплексной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_0 = \varepsilon(T_0)$ , связанным с отклонением значений термодинамических параметров электронной подсистемы  $E_{e,h}^F$  и  $T_{e,h}$  от своих исходных (равновесных) значений за счет поглощения энергии такого же (длительность 30 фс либо 20 пс) импульса накачки. Расчет  $\delta\varepsilon$  на длине волны зондирования  $\lambda$  проводится с учетом вкладов всех возможных межзонных электронных переходов (интегрирования) в том же (см. выше) реалистичном модельном электронном спектре (зонная структура  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  с принудительно введенной особенностью, имитирующей замороженную энергетическую щель). При этом в качестве исходных данных для расчета мгновенных значений (время задержки момента зондирования  $\tau$ ) чисел заполнения электронных состояний используются полученные в Главе 2 зависимости мгновенных отклонений термодинамических параметров  $E_{e,h}^F(\tau)$  и  $T_{e,h}(\tau)$  от своих равновесных значений. Показано, что в случае фемтосекундного зондирования возбужденных состояний на длине волны  $\lambda = \lambda_p$  экспоненциальная аппроксимация начальных участков семейства расчетных кривых  $\Delta\varepsilon(\tau, T_0) = |\varepsilon(\tau, T_0)| - |\varepsilon_0|$  дает зависимость времени релаксации  $\tau_{\Delta\varepsilon}(T_0)$  с резким скачком в окрестности точки  $T_0 \approx T_c$  (Рис.2а), которая практически точно отражает характер наблюдавшихся в соответствующих экспериментах временных и температурных особенностей поведения нелинейного отклика (Рис.2б). В случае зондирования на длине волны  $\lambda \neq \lambda_p$  (спектрохронография) на оси  $\lambda$  существуют точки, в которых  $\delta\varepsilon(\lambda, \tau, T_0) = 0$  за счет негативной интерференции вкладов нескольких одновременно протекающих электронных межзонных переходов. Эти точки делят ось  $\lambda$  на спектральные области с разным знаком наведенных импульсом накачки изменений  $\Delta R$ , а характер зависимостей  $\tau_{\Delta\varepsilon}(T_0)$  в них также оказывается разным (Рис.3). Перечисленные закономерности также практически точно отражают характер

наблюдавшихся в реальных экспериментах спектральных, временных и температурных особенностей поведения нелинейного отклика.

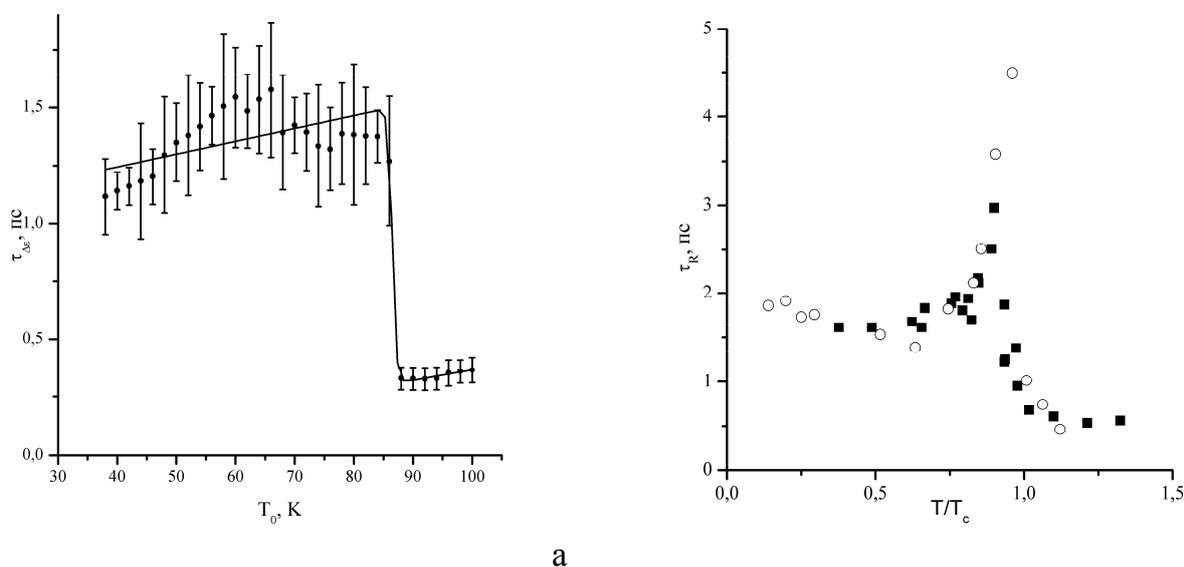


Рис.2. Зависимость времени релаксации  $\tau_{\Delta\epsilon}$  при однофотонном фемтосекундном зондировании возбужденных состояний ВТСП пленки на длине волны импульса накачки ( $\lambda = \lambda_p = 800$  нм) и вариациях начальной температуры  $T_0$ : а) расчетная зависимость, б) из Han S.G. et al. Phys. Rev. Lett. **65** 2708 1990 (квадраты) и Demsar J. et al. Phys. Rev. Lett. **82** 4918 1999 (кружки)

Моделирование случая пикосекундного возбуждения ( $\tau_p = 20$  пс) проведено с использованием усредненных по длительности импульса значений  $E_{e,h}^F$  и  $T_{e,h}$ , что соответствует ситуации с совмещенными во времени импульсами (моментами) возбуждения – однофотонного зондирования (спектроскопия насыщения). Установлено, что перечисленные выше спектральные и температурные особенности поведения нелинейного отклика  $\delta\epsilon(\lambda, T_0)$  при этом также имеют место, однако поскольку максимальная величина изменений  $\Delta R$  в этом случае очень мала, их наблюдение в реальных экспериментах проблематично.

**Четвертая глава** диссертации также является оригинальной. В этой главе описана модель нелинейного отклика (кубической нелинейной восприимчивости  $\chi$ ) ВТСП пленки для ситуаций с двухфотонным зондированием (регистрация эффективности  $\eta \propto |\chi|^2$  процесса самодифракции одного из пробных импульсов) возбужденных состояний и приведены результаты численного моделирования

данных соответствующих этим ситуациям экспериментов (стационарные и нестационарные модификации методов ВЧФС и БН).

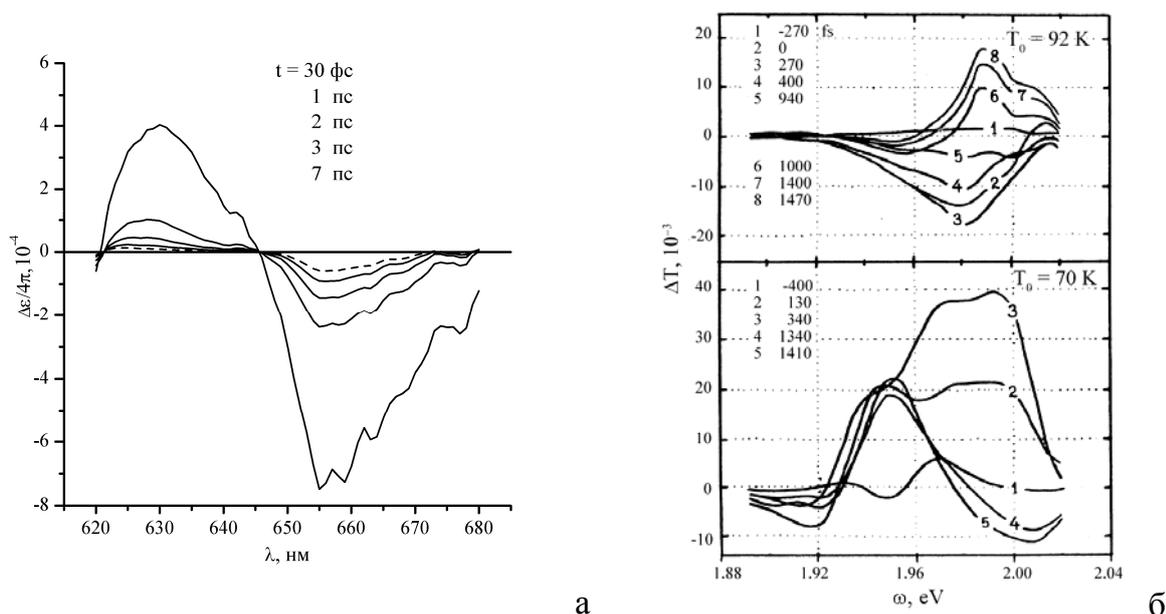


Рис.3. а) Расчетные зависимости  $\Delta\epsilon(\lambda, \tau) = |\epsilon(\lambda, \tau)| - |\epsilon_0(\lambda)|$  при однофотонном фемтосекундном ( $\tau_p = 30$  фс) зондировании возбужденных состояний ВТСП пленки в спектральном диапазоне  $\lambda = 620 \div 680$  нм для  $T_0 = 100$  К; б) Зависимости  $\Delta T$  от частоты  $\omega$  пробного импульса для разных временных задержек  $\tau$  и  $T_0 = 92$  и 70 К из Chekalin S.V. et al. Phys. Rev. Lett. **67** 3860, 1990

Расчет электронной части нелинейного отклика (электронной кубической нелинейной восприимчивости  $\chi_c$ ) ВТСП пленки проводится с учетом вкладов всех возможных прямых и непрямых межзонных электронных переходов (нерезонансная  $\chi_{nr}$  и резонансная  $\chi_r$  части  $\chi_c$  соответственно). При этом интегрирование проводится по тому же (см. выше) модельному спектру электронных состояний ВТСП (зонная структура  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  с особенностью, имитирующей замороженную энергетическую щель). Числа заполнения рассчитываются с использованием полученных в Главе 2 зависимостей мгновенных значений термодинамических параметров  $E_{e,h}^F(\tau)$  и  $T_{e,h}(\tau)$  для тех же (30 фс либо 20 пс) длительностей импульса накачки. В случае фемтосекундного возбуждения и вырожденного по частоте  $\omega$  (длине волны  $\lambda$ ) двухфотонного зондирования зависимости  $E_{e,h}^F(\tau)$  и  $T_{e,h}(\tau)$  используются непосредственно, т.е. проводится прямой расчет кинетики релаксации мгновенного

нелинейного отклика  $\eta(\lambda, \tau, T_0) \propto |\chi(\lambda, \tau, T_0)|^2$  в нестационарной версии метода ВЧФС. В пикосекундном же варианте, как и в Главе 3, полученные в Главе 2 зависимости  $E_{e,h}^F(\tau)$  и  $T_{e,h}(\tau)$  предварительно усредняются по длительности импульса, что соответствует ситуации с совмещенными во времени импульсами возбуждения - двухфотонного зондирования (стационарные версии методов БН и ВЧФС). При этом в полный нелинейный отклик  $\chi$  ВТСП пленки дополнительно включаются еще две аддитивных составляющих  $\chi_s$  и  $\chi_0$ , обусловленных процессами рассеяния на акустических фононах и погрешностями модели (конечностью области интегрирования по начальным и конечным электронным состояниям) соответственно. Показано, что в нестационарной версии метода ВЧФС спектральные, временные и температурные особенности семейства зависимостей  $\eta(\lambda, \tau, T_0) \propto |\chi(\lambda, \tau, T_0)|^2$  имеют примерно тот же характер, что и описанные выше особенности поведения нелинейного отклика  $\delta\varepsilon(\lambda, \tau, T_0)$  в спектрохронографии (однофотонное зондирование, Глава 3). В пикосекундной же версии метода ВЧФС за счет сравнительно эффективного двухфотонного возбуждения акустических фононов (компонента  $\chi_s$ ) спектральные особенности полного нелинейного отклика  $\eta(\lambda, T_0) \propto |\chi(\lambda, T_0)|^2$  ВТСП пленки оказываются инвертированными. Размещение точки  $\lambda_0$  совмещения частот  $\omega_{1,2}$  компонент БН в окрестности одной из точек, в которых вклад нерезонансной составляющей  $\chi_{nr}(\lambda_0, \Delta\omega, T_0)$  в полную нелинейную восприимчивость  $\chi(\lambda_0, \Delta\omega, T_0)$  подавляется за счет интерференции вкладов от нескольких одновременно протекающих электронных межзонных переходов, позволяет использовать этот метод как эффективный инструмент диагностики параметров энергетической щели в спектре электронных состояний ВТСП. Ширина щели  $\Delta$  при этом может быть определена по положению (частоте  $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2 = \Delta$ ) хорошо выраженной спектральной особенности - двухфотонному резонансу («провалу») на зависимости  $\eta(\lambda_0, \Delta\omega, T_0) \propto |\chi(\lambda_0, \Delta\omega, T_0)|^2$  (Рис.4), формирование которого при  $T_0 \leq T_c$  связано с появлением вклада резонансной электронной составляющей  $\chi_r(\lambda_0, \Delta\omega, T_0)$  в полной нелинейной восприимчивости  $\chi(\lambda_0, \Delta\omega, T_0)$  ВТСП пленки.

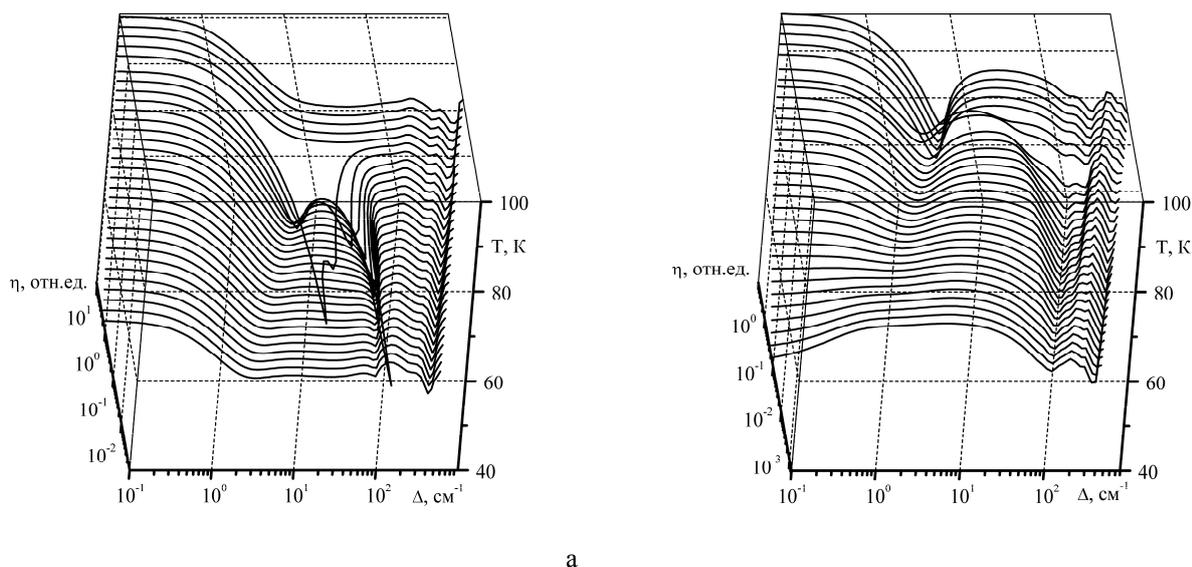


Рис.4. Расчетная зависимость  $\eta(\Delta\omega, T_0)$  в методе БН. Точка совмещения частот  $\Delta\omega=0$  соответствует  $\lambda=625$  (а) и  $650$  (б) нм

**В приложении** приведены данные, полученные автором диссертационной работы в ходе экспериментов по пикосекундной нелинейной спектроскопии тонких (толщина 10 - 20 нм) металлических (Pt) пленок и соответствующего теоретического анализа. Показано, что в этом случае, как и в нелинейной спектроскопии ВТСП, формирование спектральных особенностей на зависимостях величины нелинейного отклика (эффективности самодифракции  $\eta$ ) от длины волны  $\lambda$  вырожденно по частоте двухфотонного пикосекундного зондирования (метод ВЧФС) обусловлено изменением фаз двух интерферирующих компонент нерезонансной электронной нелинейной восприимчивости.

**В заключении** сформулированы основные результаты, полученные в ходе выполнения настоящей диссертационной работы:

1. В рамках предположения о замороженной (метастабильной) энергетической щели в спектре состояний ВТСП пленки, возбужденной коротким лазерным импульсом, построена система кинетических уравнений, описывающая эволюцию термодинамических параметров системы (положений уровней Ферми  $E_{e,h}^F$ , а также температур  $T_{e,h}$  и  $T_p$  электронов, дырок и решетки) при разных уровнях оптического возбуждения.

2. Для реалистичной модели спектра электронных состояний (заимствованная из литературы зонная структура  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , в которую принудительно введена особенность - энергетическая щель, температурная зависимость ширины которой  $\Delta$  соответствует теории БКШ) проведен расчет кинетики  $E_e^F(t)$ , а также  $T_e(t)$  и  $T_p(t)$  в случаях фемто- (длительность импульса  $\tau_p = 30$  фс) и пикосекундного ( $\tau_p = 20$  пс) возбуждения.

3. Показано, что при высоком уровне возбуждения (энергия импульса накачки  $4 \cdot 10^{-7}$  Дж) скорости процессов безызлучательной рекомбинации резко падают сразу же вслед за открытием в спектре состояний ВТСП щели (снижение начальной температуры  $T_0$  ниже точки фазового перехода  $T_c$ ). Кинетика релаксации отклонений  $\Delta E_e^F$ ,  $\Delta T_e$  и  $\Delta T_p$  от своих равновесных значений перестает при этом быть экспоненциальной. Причем если при фемтосекундном возбуждении ( $\tau_p = 30$  фс) электронные состояния за счет этого вырождаются ( $\Delta E_F > \Delta$ ), то при пикосекундном ( $\tau_p = 20$  пс) -  $\Delta E_e^F$  и  $\Delta T_e$  оказываются существенно меньше и эффекты вырождения не должны столь сильно сказываться на данных экспериментов по пикосекундной нелинейной спектроскопии ВТСП.

4. Для реалистичного спектра электронных состояний (заимствованная из литературы зонная структура  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , в которую принудительно введена замороженная особенность - энергетическая щель, температурная зависимость ширины которой  $\Delta$  соответствует теории БКШ) построена модель, описывающая кинетику однофотонного отклика ВТСП пленки  $\Delta \epsilon$  через временную эволюцию термодинамических параметров (положений уровней Ферми  $E_{e,h}^F$ , а также температур  $T_{e,h}$  электронной и дырочной подсистем).

5. В рамках построенной модели проведено численное моделирование спектральных, временных и температурных особенностей нелинейного отклика  $\Delta \epsilon$  при сильном (энергия импульса накачки  $4 \cdot 10^{-7}$  Дж) фемтосекундном ( $\tau_p = 30$  фс) и пикосекундном ( $\tau_p = 20$  пс) возбуждении и показано, что:

а) при фемтосекундном зондировании ВТСП пленки на длине волны накачки  $\lambda = 800$  нм (метод пробного импульса) расчетная зависимость  $\tau_{\Delta\varepsilon}(T_0)$  практически точно отражает все наблюдавшиеся ранее в реальных экспериментах аномалии кинетики нелинейного отклика;

б) при зондировании ВТСП пленки на других длинах волн (спектральный диапазон  $\lambda = 620 \div 680$  нм, спектрохронография) на оси  $\lambda$  имеются особые точки, в которых  $\Delta\varepsilon \equiv 0$  и которые разделяют спектральные области с разными знаками наведенных импульсом накачки изменений  $\Delta\varepsilon$ , что также согласуется с данными проведенных экспериментов;

в) при возбуждении - зондировании ВТСП пленки двумя совмещенными во времени пикосекундными импульсами ее нелинейный отклик  $\Delta\varepsilon$  при вариациях  $T_0$  в окрестности точки  $T_0 \approx T_c$  также испытывает резкий скачок, однако величина  $\Delta\varepsilon$  оказывается слишком мала для практической реализации метода спектроскопии насыщения.

6. Для реалистичного спектра электронных состояний (заимствованная из литературы зонная структура  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , в которую принудительно введена замороженная особенность - энергетическая щель, температурная зависимость ширины которой  $\Delta$  соответствует теории БКШ) построена модель, описывающая кинетику двухфотонного отклика ВТСП пленки  $\chi$  через временную эволюцию термодинамических параметров (положений уровней Ферми  $E_{e,h}^F$ , а также температур  $T_{e,h}$  электронной и дырочной подсистем).

7. В рамках построенной модели проведено численное моделирование спектральных, временных и температурных особенностей двухфотонного нелинейного отклика  $\chi$  при сильном (энергия импульса накачки  $4 \cdot 10^{-7}$  Дж) фемтосекундном ( $\tau_p = 30$  фс, метод ВЧФС) и пикосекундном ( $\tau_p = 20$  пс, методы БН и ВЧФС) возбуждении и показано, что:

а) при вырожденном по частоте двухфотонном фемтосекундном зондировании (метод ВЧФС) ВТСП пленок характер трансформации зависимости  $\chi(\lambda)$  практически полностью повторяет наблюдавшиеся в экспериментах с однофотонным

зондированием (метод пробного импульса) спектральные, временные и температурные особенности кинетики нелинейного отклика;

б) при невырожденном по частоте двухфотонном пикосекундном зондировании (метод БН), несмотря на разогрев ВТСП пленки, энергетическая щель в спектре ее состояний может быть обнаружена по наличию характерного двухфотонного резонанса, что согласуется с данными проведенных ранее экспериментов. При этом для определения параметров щели, положение точки совмещения частот компонент БН нужно выбирать исходя из критерия минимальности амплитуды нерезонансной составляющей.

в) при вырожденном по частоте двухфотонном пикосекундном зондировании (метод ВЧФС) температурные особенности нелинейного отклика  $\chi(\lambda, T_0)$  остаются практически теми же, что и в случае использования фемтосекундных импульсов, в то время как спектральные - инвертируются. При этом положения максимумов и минимумов  $\chi(\lambda, T_0)$  на оси  $\lambda$  меняются местами за счет эффективного возбуждения процессов, протекающих с участием акустических фононов. Поэтому при переходе к ситуации с двухфотонным пикосекундным возбуждением - зондированием спектральное положение области, в которой проводятся измерения, необходимо смещать.

Публикации по теме диссертации:

1. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Межзонные электронные переходы и рассеяние избыточных свободных носителей на поверхности в нелинейной спектроскопии сверхтонких металлических пленок // Квантовая электроника, 2001, т.31, №12, с.1067-1070.
2. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Вырожденная четырехфотонная спектроскопия сверхтонких пленок Au и Pt // Квантовая электроника, 2002, т.32, №9, с.789-792.
3. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V. Picosecond degenerate four-photon spectroscopy as a tool for precise measurements of subpicosecond intra-band relaxation times in ultra-thin metal films // IQEC 2002, Technical Digest, Moscow, Russia, June 22 – 27, 2002, p.301.

4. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V. Inter-band electronic transitions in picosecond nonlinear optical spectroscopy of ultra-thin metal films // 11<sup>th</sup> International Laser Physics Workshop 2002. July 1-5, 2002. Bratislava, Slovakia. Book of Abstracts. P.183.
5. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шипова А.Ю., Шувалов В.В. Интерференция компонент нелинейного отклика в вырожденной четырехфотонной спектроскопии сверхтонких металлических пленок // Квантовая электроника, 2003, т.33, №11, с.998-1000.
6. Бобырев Ю.В., Воронов А.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Спектроскопия сверхтонких металлических пленок: метод вырожденной четырехфотонной спектроскопии // Ломоносовские чтения 2003. Секция физики. 18-25 апреля 2003 г. Сборник расширенных тезисов докладов. Москва, Физический факультет МГУ, 2003. Стр.83-84.
7. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V., Voronov A.V. Picosecond degenerate four-photon spectroscopy as an energy gap diagnostic tool for HTSC compounds // XI Conference on Laser Optics, Technical Program, St. Petersburg, Russia, June 30 – July 4, 2003. P.73.
8. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V., Voronov A.V. Long-living metastable non-equilibrium states of HTSC compounds in transient four-photon spectroscopy // Advanced Laser Technologies (ALT-04). Rome - University “Sapienza”, Frascati – ENEA Center, Italy. September 10-15, 2004. Technical Digest, p.123-124.
9. Бобырев Ю.В., Воронов А.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Спектральные особенности нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводниковых пленок в методах вырожденной четырехфотонной спектроскопии // Квантовая электроника, 2005, т.35, №1, с.102-106.
10. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Вырождение электронных состояний и «аномальная» кинетика нелинейного отклика ВТСП в спектроскопии пробного импульса // Квантовая электроника, 2005, т.35, №8, с.720-728.

11. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Вырожденное четырехфотонное зондирование кинетики нелинейного отклика ВТСП в спектроскопии пробного импульса // Квантовая электроника, 2005, т.35, №8, с.729-733.
12. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Роль процессов вырождения в пикосекундной нелинейной спектроскопии ВТСП // Квантовая электроника, 2005, т.35, №11, с.1039-1041.
13. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V., Voronov A.V. Long-living meta-stable non-equilibrium states of HTSC compounds in transient four-photon spectroscopy // Proceedings SPIE, Advanced Laser Technologies 2004, 2005, v.5850, p.211-217.
14. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V. Kinetics of degenerate nonlinear response of HTSC films in transient spectroscopy // ICONO 2005, Technical Digest, St. Petersburg, Russia, May 11-15, 2005, ISuM5.
15. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V. "Anomalous" kinetics of nonlinear response in pump-probe spectroscopy of HTSC // The 13<sup>th</sup> International Conference on Advanced Laser Technologies (ALT 05), TEDA, Sept.3-Sept.6, 2005. Abstract Collection. Tianjin, China, 2005. P.73.
16. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Особенности нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников, наблюдаемые методами когерентной пикосекундной четырехфотонной спектроскопии при высоком уровне возбуждения // Квантовая электроника, 2006, т.36, №5, с.408-414.
17. Bobyrev Yu.V., Petnikova V.M., Rudenko K.V., Shuvalov V.V. "Anomalous" kinetics of nonlinear response in pump-probe spectroscopy of HTSC // Proceedings SPIE, Advanced Laser Technologies 2005, 2006, v.6344, p.358-366.
18. Бобырев Ю.В., Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. Спектральные, временные и температурные особенности нелинейного отклика ВТСП в методах нестационарной нелинейной спектроскопии // Квантовая электроника, 2006, т.36, №10, с.895-917.