

# Особенности нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников, наблюдаемые методами когерентной пикосекундной четырехфотонной спектроскопии при высоком уровне возбуждения

Ю.В.Бобырев, В.М.Петникова, К.В.Руденко, В.В.Шувалов

*В рамках предположения о нелинейном отклике высокотемпературных сверхпроводников, обусловленном межзонными переходами в спектре состояний с метастабильной энергетической щелью, построена модель, описывающая результаты экспериментов, проведенных методами пикосекундной когерентной четырехфотонной спектроскопии при высоком уровне возбуждения. Показано, что в окрестности точки фазового перехода в сверхпроводящее состояние на зависимости эффективности процесса самодифракции от начальной температуры образца должен наблюдаться скачок. Установлено, что при бигармоническом возбуждении – зондировании щель в спектре состояний можно обнаружить по характерному двухфотонному резонансу.*

**Ключевые слова:** когерентная пикосекундная четырехфотонная спектроскопия, высокотемпературные сверхпроводники, высокий уровень возбуждения, спектральные и температурные особенности нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников.

## 1. Введение

Процессы быстрой релаксации в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) обычно исследуются методом пробного импульса [1–17], с использованием которого чаще всего изучается зависимость коэффициентов отражения/пропускания возбужденного образца от времени задержки  $\tau$  момента зондирования относительно импульса «ударной» накачки [1–5]. Считается [18–20], что за счет электрон-электронного (e–e) рассеяния распределение «горячих» носителей по энергии  $E_e$  сначала быстро ( $\tau_{th} < 10$  фс при  $E_e \sim 1$  эВ [21, 22]) возвращается к форме распределения Ферми–Дирака с электронной температурой  $T_e$ , отличной как от начальной температуры  $T_0$ , так и температуры решетки  $T_p$  [23]. Затем электрон-фононное (e–p) рассеяние за время  $\tau_R$  выравнивает температуры электронной и фононной подсистем ( $T_e \rightarrow T_p$ ). Эксперимент показал [1, 13, 24–26], что в полном согласии с теорией [27–30] в окрестности точки  $T_0 \simeq T_c$  перехода в сверхпроводящее состояние значения  $\tau_{th}$  и  $\tau_R$  резко растут. Однако уже вскоре стало ясно [17], что такой рост наблюдается лишь при высоких уровнях возбуждения, когда образец практически мгновенно должен «забывать» информацию о своем исходном состоянии (о начальной температуре  $T_0$ ).

В [31, 32] спектрально-временные аномалии кинетики нелинейного отклика ВТСП при высоком уровне фемтосекундной накачки были интерпретированы в рамках модели, основанной на предположениях о том, что энергетическую щель в спектре состояний ВТСП нельзя быстро

разрушить даже при сильном отрыве  $T_e$  от  $T_p$  [33] и нелинейный отклик ВТСП обусловлен межзонными электронными переходами [34]. Было показано, что в типичных для подавляющего большинства экспериментов условиях уровни Ферми  $E_{e,h}^F$  для свободных электронов (состояния над щелью) и дырок (состояния под щелью) раздвигаются (вырождение) и энергетический зазор ( $E_c^F - E_h^F$ ) резко растет. Поскольку с ростом энергии носителей процессы безызлучательной трехчастичной рекомбинации подавляются [35], формирование энергетической щели шириной  $\Delta(T_0, T_c) \neq 0$  при  $T_0 \leq T_c$  в спектре электронных состояний ВТСП радикально меняет кинетику  $E_c^F(t)$  и  $T_{e,p}(t)$ , что и позволяет объяснить наблюдающиеся в экспериментах аномалии.

В [36] было показано, что указанные аномалии должны иметь аналоги и в том случае, когда для возбуждения ВТСП и зондирования его состояния по изменениям коэффициентов отражения–пропускания используются два совмещенных во времени пикосекундных импульса. При этом процессы вырождения (расхождение уровней Ферми  $E_{e,h}^F$ ) должны проявиться в нетривиальной (резкий скачок в окрестности точки  $T_0 \simeq T_c$ ) зависимости величины нелинейного отклика ВТСП от начальной температуры.

Ниже, основываясь на расчетной кинетике  $E_c^F(t)$  и  $T_{e,p}(t)$ , приведенной в [36], будет показано, что и при использовании двух других методов пикосекундной нелинейной спектроскопии (бигармонической накачки [8] и вырожденной четырехфотонной спектроскопии [37]) в окрестности точки  $T_0 \simeq T_c$  на зависимости величины нелинейного отклика ВТСП от начальной температуры  $T_0$  должны наблюдаться аналогичные скачки. Причем и в этом случае при бигармонической накачке энергетическая щель в спектре состояний ВТСП может быть обнаружена по характерному двухфотонному резонансу [8, 38].

Ю.В.Бобырев, В.М.Петникова, К.В.Руденко, В.В.Шувалов. Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: vsh@vsh.phys.msu.ru

## 2. Модель нелинейного отклика

Итак, в настоящей работе мы остановимся на стационарной (пикосекундной) версии методов бигармонической накачки (БН) [8] и вырожденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС) [37]. Будем считать, что возбуждение и зондирование состояния образца проводится двумя совмещенными во времени, но распространяющимися под углом друг к другу (волновые векторы  $\mathbf{k}_1 \neq \mathbf{k}_2$ ) сравнительно длинными (длительность  $\tau_p = 20$  пс) импульсами на длинах волн  $\lambda_{1,2}$  (частоты  $\omega_{1,2}$ ). Измеряемым параметром считается зависимость эффективности процесса самодифракции  $\eta$  (эффективность генерации поля в направлении  $\mathbf{k}_3 = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$  на частоте  $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$ ) от частотной расстройки  $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$  компонент накачки (метод БН [8]) либо от длины волны  $\lambda$  возбуждения – зондирования при совпадении,  $\omega_1 = \omega_2$ , частот этих компонент (ВЧФС [37]).

Описание процесса самодифракции проводилось в рамках модели когерентного четырехфотонного отклика, развитой в [39]. При этом считалось, что полная кубическая нелинейная восприимчивость образца  $\chi$  включает в себя несколько составляющих:

$$\chi = \chi_r + \chi_{nr} + \chi_s + \chi_0. \quad (1)$$

Здесь  $\chi_r$  и  $\chi_{nr}$  – резонансная и нерезонансная (см. ниже) части электронного отклика, обусловленные межзонными переходами;  $\chi_s$  – компонента нелинейной восприимчивости, связанная с процессами рассеяния электронов на акустических фононах;  $\chi_0$  – некая константа, обусловленная погрешностями используемой модели и, в первую очередь, конечностью области интегрирования по начальным и конечным электронным состояниям. Ограничение этой области в численных расчетах (см. ниже) неизбежно влечет за собой погрешности при описании нерезонансных процессов, обусловленных переходами в неучтенные зоны, поглощением на свободных носителях и т. д.

При расчете  $\chi_{nr}$  использовался уже применявшийся нами ранее подход [39], в рамках которого стандартным образом [40] учитываются вклады всех возможных одно- и двухфотонных резонансных электронных переходов в реальном (рассчитанном по заимствованным из литературы данным [41]) спектре состояний ВТСП образца и их реальные (рассчитанные по данным о кинетике  $E_e^F$  и  $T_{e,p}$  [36]) числа заполнения:

$$\chi_{nr} \propto P_0(K_+P_+ + K_-P_-), \quad (2)$$

где

$$P_0 = \sum_{i,i'} \iint \frac{|d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2 n_i(\mathbf{k}) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}')] }{[\omega_1 - \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') - i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')]^2} d\mathbf{k}d\mathbf{k}', \quad (3)$$

$$P_{\pm} = \sum_{i,i'} \iint \frac{|d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2 n_i(\mathbf{k}) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}')] }{[\omega_1 \pm \Delta\omega - \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \pm i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')]^2} d\mathbf{k}d\mathbf{k}', \quad (4)$$

$$K_{\pm} = \sum_{i,i'} \iint \frac{|d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2 n_i(\mathbf{k}) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}')] }{[\pm\Delta\omega + \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \pm i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')]^2} d\mathbf{k}d\mathbf{k}'. \quad (5)$$

Здесь  $i$  и  $i'$  нумеруют зоны, задействованные в электронном переходе  $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$  с дипольным моментом

$d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  и резонансной частотой  $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = E_{i'}(\mathbf{k}') - E_i(\mathbf{k})$ ;  $\mathbf{k}$  – квазимпульс электрона;  $E_i(\mathbf{k})$  и  $n_i(\mathbf{k})$  – нормированная энергия и число заполнения состояния  $(i, \mathbf{k})$ ;  $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  – скорость релаксации межзонной поляризации.

Расчет  $\chi_{nr}$  проводился в предположениях о том, что переходы  $(i, \mathbf{k}) \rightarrow (i', \mathbf{k}')$  всегда прямые ( $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ ), а  $d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = d$  и  $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \Gamma$  являются константами, не зависящими от  $i$ ,  $i'$  и  $\mathbf{k}$ . Частоты переходов  $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  находились интерполяцией тех же, что и в [32, 36], данных о спектре состояний  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  при комнатной температуре [41] с учетом требований к симметрии и периодичности [39]. Как и ранее [31, 32, 36], охлаждение образца моделировалось заменой  $E_i(\mathbf{k}) \rightarrow E_0^F \pm \{[E_i(\mathbf{k}) - E_0^F]^2 + \Delta(T_0)^2\}^{1/2}$  при  $E_i(\mathbf{k}) > E_0^F$  и  $E_i(\mathbf{k}) < E_0^F$  соответственно, которая описывала перераспределение плотностей состояний вблизи поверхности Ферми при фазовом переходе. Ширина энергетической щели

$$\Delta(T_0) \equiv \begin{cases} 3.12k_B T_c (1 - T_0/T_c)^{1/2} & \text{при } T_0 \leq T_c, \\ 0 & \text{при } T_0 > T_c \end{cases} \quad (6)$$

считалась константой, зависящей только от  $T_0$  и  $T_c$  (замороженная щель [33] s-симметрии в приближении слабой связи теории БКШ [42]). Здесь  $E_0^F$  – равновесное (начальное) положение уровня Ферми;  $k_B$  – постоянная Больцмана. Интегрирование проводилось по зонам, попадающим в диапазон  $|E_i(\mathbf{k}) \pm E_0^F| \leq 2.5$  эВ, методом особых точек [43]. Числа заполнения  $n_i(\mathbf{k})$  считались константами, заданными распределением Ферми – Дирака со средними по длительности импульса накачки  $\tau_p = 20$  пс значениями термодинамических параметров  $\langle E_e^F \rangle_t$  и  $\langle T_e \rangle_t$ , рассчитанными в [36]. Это моделировало ситуацию с совмещенными во времени моментами (импульсами) накачки и зондирования пленки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (температура фазового перехода  $T_c = 91$  К) на подложке из  $\text{SrTiO}_3$ , поглощающей 30% (толщина пленки  $\sim 200$  нм) от полной энергии  $4 \times 10^{-7}$  Дж импульсов накачки, сфокусированных в пятно диаметром 150 мкм. Единственным подгоночным параметром модели при расчете  $\chi_{nr}$  являлась скорость релаксации поляризации, значение которой  $\Gamma = 150 \text{ см}^{-1}$  выбиралось исходя из требования соответствия расчетной ширины спектральных особенностей нелинейного отклика в методе ВЧФС данным реальных экспериментов [5, 24] и в дальнейшем не варьировалось.

Очевидно, что использованное нами при расчете  $\chi_{nr}$  приближение  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  приводит к потере вкладов, вносимых двухфотонными резонансными переходами  $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$  между двумя состояниями зоны проводимости, разделенными энергетической щелью. С учетом соотношения  $\mathbf{k}' = \mathbf{k} + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$  роль переходов такого типа будет существенна только для состояний, локализованных в сравнительно узкой окрестности  $|\mathbf{k}| \leq |\mathbf{k}^F| - |\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2|$  вблизи поверхности Ферми при  $\Delta\omega \sim 2\Delta(T_0)$ . Собственно, именно это и отражает введенный нами для обозначения  $\chi_{nr}$  термин – нерезонансная часть электронного нелинейного отклика.

Однако из-за резкого скачка плотности состояний в окрестности уровня Ферми в ВТСП роль таких переходов может быть весьма велика. Поэтому в полный нелинейный отклик  $\chi$  вводилась дополнительная резонансная компонента  $\chi_r$ , основная функция которой и своди-

лась к учету соответствующих вкладов. Величина этой компоненты рассчитывалась в рамках модели эффективной двухуровневой системы [44], т. е. анизотропию зонной структуры образца мы игнорировали и интегрирование в (3)–(5) проводили по энергии  $E_i$  с учетом условия  $E_{i'} - E_i = 2\Delta(T_0)$  по аналогии с подходом, использованным в [31]. За счет этого вес компоненты  $\chi_r$  относительно  $\chi_{nr}$  перестал быть однозначно определенным и рассматривался далее как подгоночный параметр, значение которого считалось пропорциональным  $T_0^2$  (вследствие роста амплитуды и крутизны пика плотности состояний с понижением начальной температуры) и равным 0.5 при  $T_0 = 90$  К. Далее значение этого параметра также не варьировалось. Отметим, что при расчете  $\chi_r$  скорость релаксации поляризации на переходе  $k \rightarrow k'$  задавалась существенно меньшей  $\Gamma = 50$  см $^{-1}$ , чем при расчете  $\chi_{nr}$  (см. выше), поскольку лишь при этом условии спектральные особенности нелинейного отклика в методе БН соответствовали данным реального эксперимента [8, 9]. В принципе ничего удивительного в этом обстоятельстве нет, т. к. с приближением к краям зон разрешенных состояний релаксационные процессы действительно должны достаточно резко тормозиться [15, 21, 24].

Вклад процессов, протекающих с участием акустических фононов, рассчитывался в рамках выражения

$$\chi_s = -\frac{\chi_{ac}}{(\Delta\omega)^2 + (4\delta\omega)^2 + i4\delta\omega\Delta\omega}, \quad (7)$$

которое следует из традиционных соотношений для нелинейности типа Мандельштама – Бриллюэна [45], свернутых со спектрами двух компонент накачки с учетом малости длительности импульсов возбуждения – зондирования  $\tau_p$  по отношению к характерным временам затухания звука. При этом спектральная ширина компонент накачки считалась строго заданной условиями реальных экспериментов:  $\delta\omega = 1.5$  см $^{-1}$  [8, 9]. В результате и эта составляющая полного нелинейного отклика  $\chi$  содержала единственный подгоночный параметр – комплексную амплитуду  $\chi_{ac}$ , значение которой считалось пропорциональным  $T_0$  (вследствие учета роста чисел заполнения акустических фононных мод с повышением начальной температуры).

При численном моделировании нелинейного отклика в методе БН считалось, что в точке совмещения частот  $\Delta\omega = 0$  обе компоненты накачки имеют длину волны  $\lambda = 650$  нм, т. е. локализованы в той спектральной области, где нелинейный отклик образца должен быть максимален по данным как эксперимента [5, 24], так и теории [31, 32, 34]. Подгонка результатов расчета проводилась всего по двум параметрам. Считалось, что амплитуда  $\chi_{ac}$  компоненты  $\chi_s$ , а также  $\chi_0$  должны быть выбраны такими, чтобы за счет интерференции всех вкладов в  $\chi$  зависимость эффективности самодифракции  $\eta(\Delta\omega, T_0) \propto |\chi(\Delta\omega, T_0)|^2$  имела «провалы» в двух точках:  $\Delta\omega = 10$  см $^{-1}$  при  $T_0 = 90$  К и  $\Delta\omega = 63$  см $^{-1}$  при  $T_0 = 80$  К, что соответствовало данным эксперимента [8]. Отметим, правда, что в [8] точка совмещения частот компонент БН была выбрана другой и соответствовала  $\lambda \simeq 620$  нм. Зависимости  $\eta(\lambda, T_0) \propto |\chi(\lambda, T_0)|^2$ , измеряемые методом ВЧФС, рассчитывались уже без какой-либо подгонки с использованием тех же выражений (1)–(5) и процедур с учетом условия  $\Delta\omega = 0$  и найденных по описанному выше критерию значений  $\chi_{ac}$  и  $\chi_0$ .

### 3. Результаты моделирования

Расчетная трансформация зависимости нерезонансной составляющей  $\chi_{nr}$  полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  образца от частотной расстройки  $\Delta\omega$  компонент накачки при изменении начальной температуры образца  $T_0$  иллюстрируется рис.1. Здесь на плоскости  $(\Delta\omega, T_0)$  в полулогарифмическом масштабе показан характер изменения действительной (рис.1,а) и мнимой (рис.1,б) частей  $\chi_{nr}$ . Легко заметить, что за счет разумного выбора значения  $\Gamma$  при расчете этой компоненты (150 см $^{-1}$ , см. выше) полученное семейство зависимостей  $\chi_{nr}(\Delta\omega)$  имеет ярко выраженные спектральные особенности. Отметим также, что с изменением  $T_0$  наиболее существенно трансформируется зависимость  $\text{Im} \chi_{nr}(\Delta\omega)$ . Хорошо виден и характерный скачок величины составляющей  $\chi_{nr}$  в окрестности точки  $T_0 \sim T_c$  фазового перехода, о существовании которого в случае использования метода пикосекундного пробного импульса уже сообщалось в [36].

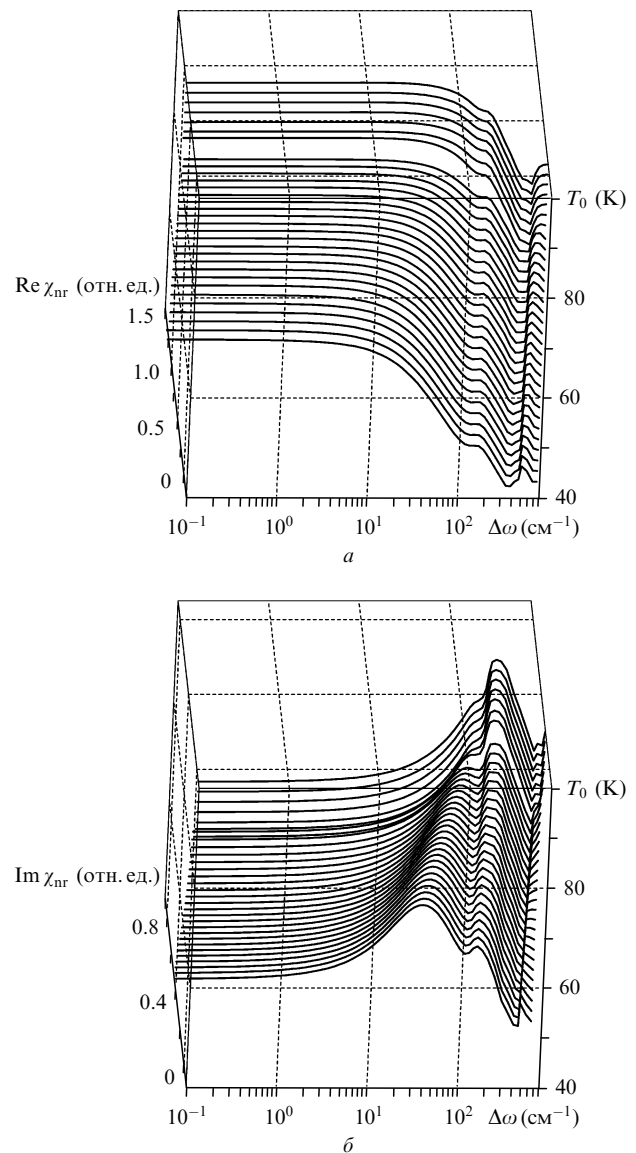


Рис.1. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей нерезонансной составляющей  $\chi_{nr}$  полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  на плоскости  $(\Delta\omega, T_0)$  (метод БН). Точка совмещения частот компонент БН  $\Delta\omega = 0$  соответствует длине волны  $\lambda = 650$  нм.

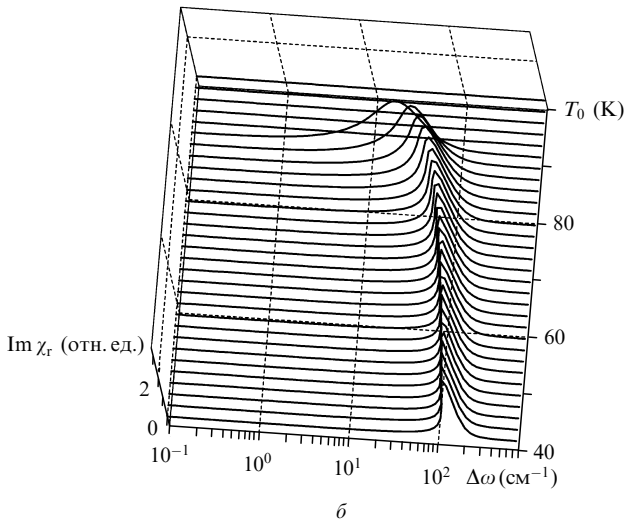
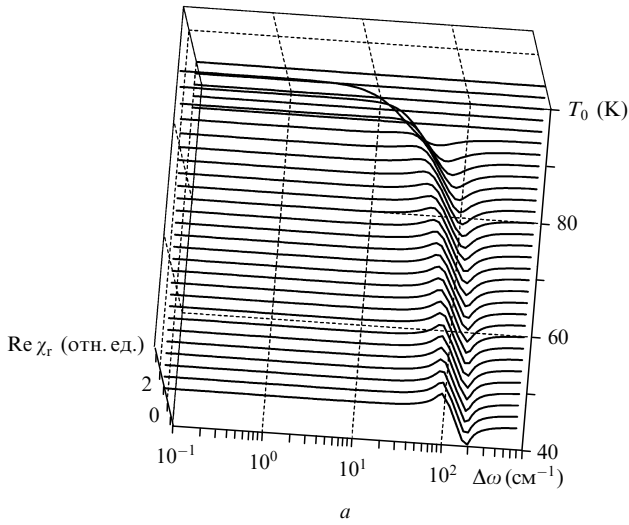


Рис.2. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей резонансной составляющей  $\chi_r$  полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  на плоскости  $(\Delta\omega, T_0)$ . Точка  $\Delta\omega = 0$  соответствует  $\lambda = 650$  нм.

Поведение резонансной составляющей  $\chi_r$  полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  на той же плоскости, показанное на рис.2,а и б для действительной и мнимой частей  $\chi_r$  в том же масштабе, оказывается существенно более простым. Возникая при снижении начальной температуры образца  $T_0$  в момент формирования щели в спектре состояний (т. е. в точке  $T_0 = T_c$ ), в дальнейшем  $\chi_r(\Delta\omega)$ , по существу, просто отслеживает рост ширины  $\Delta$  этой щели. Отметим также, что из-за конечности скорости релаксации  $\Gamma$  ( $50 \text{ см}^{-1}$ ), использованной при расчете этой составляющей, ее вклад оказывается существенным и при  $\Delta\omega = 0$  (случай вырождения по частотам компонент накачки). Поэтому использованное в [32, 34] приближение прямых межзонных переходов при моделировании именно такой ситуации ( $\omega_1 = \omega_2$  при  $k_1 \neq k_2$ ) должно было неизбежно приводить к определенным погрешностям.

Характер изменения составляющей  $\chi_s$  полного нелинейного отклика  $\chi$  образца на плоскости  $(\Delta\omega, T_0)$  после подгонки ее комплексной амплитуды  $\chi_{ac}$  по указанному выше критерию иллюстрирует рис.3, на котором в том же масштабе показаны ее действительная (рис.3,а) и мнимая (рис.3,б) части. Напомним, что все спектральные особенности этой составляющей однозначно опреде-

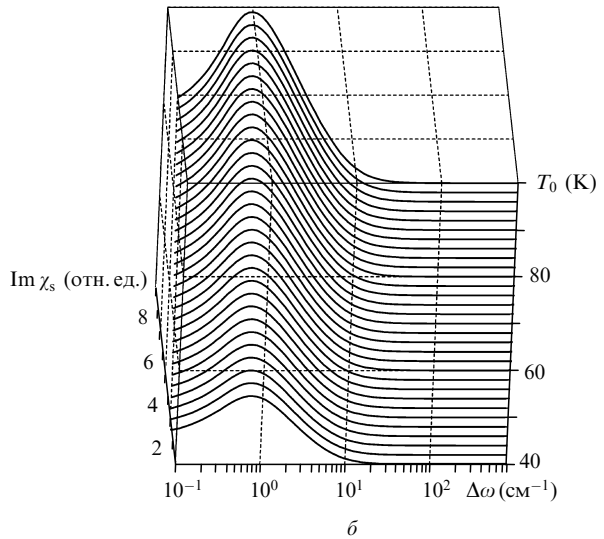
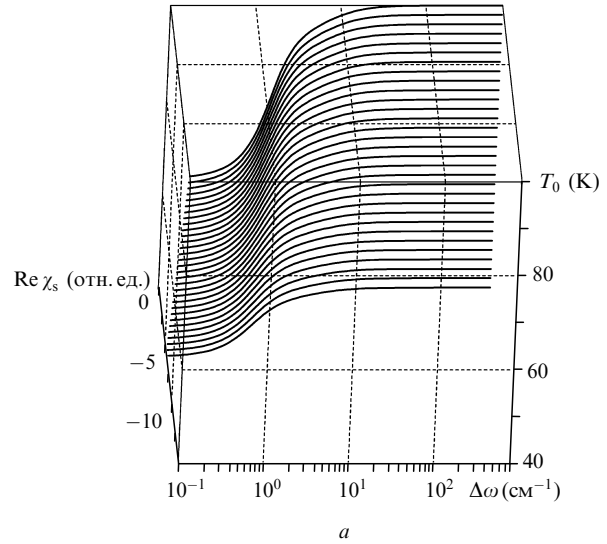


Рис.3. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей составляющей  $\chi_s$  полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  на плоскости  $(\Delta\omega, T_0)$  (метод БН). Точка  $\Delta\omega = 0$  соответствует  $\lambda = 650$  нм.

лены шириной спектра импульсов накачки  $\delta\omega$ , в то время как температурные – самой моделью (см. выше).

На рис.4 показаны зависимости действительной (рис.4,а) и мнимой (рис.4,б) частей полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  ВТСП образца от  $T_0$  и  $\Delta\omega$ . Легко убедиться, что расчетная зависимость  $\chi(\Delta\omega, T_0)$  сохраняет все перечисленные нами ранее особенности ее составляющих. Еще более наглядно это следует из рис.5, на котором представлены как данные реального эксперимента (рис.5,а), заимствованные из [8], так и расчетная зависимость  $\eta(\Delta\omega, T_0) \propto |\chi(\Delta\omega, T_0)|^2$  (рис.5,б) в примерно одинаковом диапазоне изменения частотных расстройок  $\Delta$  компонент БН и начальных температур ВТСП образца  $T_0$ , построенные в двойном логарифмическом масштабе. С учетом использования в столь сложной расчетной модели всего двух подгоночных параметров, разных точек совмещения частот компонент БН по  $\lambda$  и экспериментальных погрешностей, полученное соответствие для целого семейства экспериментальных и теоретических зависимостей представляется вполне удовлетворительным.

Рис.6 иллюстрирует результат расчета характера трансформации зависимостей действительной (рис.6,а) и мнимой (рис.6,б) частей нерезонансной составляющей  $\chi_{nr}$

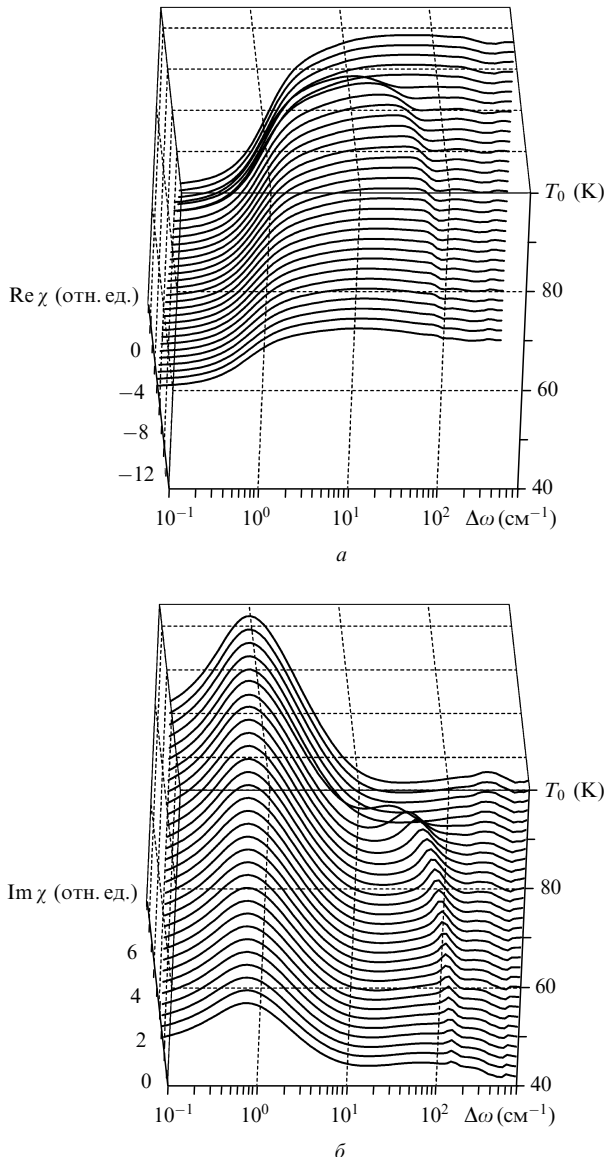


Рис.4. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  на плоскости  $(\Delta\omega, T_0)$  (метод БН). Точка  $\Delta\omega = 0$  соответствует  $\lambda = 650$  нм.

полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  ВТСП образца от длины волны накачки  $\lambda$  при изменении начальной температуры  $T_0$  в вырожденном по частоте случае ( $\Delta\omega = 0$ , метод ВЧФС). Легко убедиться, что учет реальной зонной структуры образца приводит к тому, что на зависимости  $\chi_{nr}(\lambda)$  имеются выраженные спектральные особенности, характер которых слабо зависит от начальной температуры  $T_0$  и в целом согласуется с данными как эксперимента [5, 24], так и расчета [31, 32, 34] для метода пробного импульса. Хорошо виден и характерный скачок величины составляющей  $\chi_{nr}$  в окрестности точки фазового перехода  $T_0 \sim T_c$ .

На рис.7 на той же плоскости  $(\lambda, T_0)$  показан характер изменения величины действительной части резонансной составляющей  $Re \chi_r$  (рис.7,а) полного нелинейного отклика  $\chi$  и модуля последнего  $|\chi|$  (рис.7,б). Зависимость мнимой части  $Im \chi_r(\lambda, T_0)$  из экономии места здесь не приводится, т. к. ее величина оказывается почти на 2 порядка меньше, чем действительной. Составляющие  $\chi_s$  и  $\chi_0$  также не показаны, поскольку в рамках построенной модели при  $\Delta\omega = 0$  их величина не зависит от длины вол-

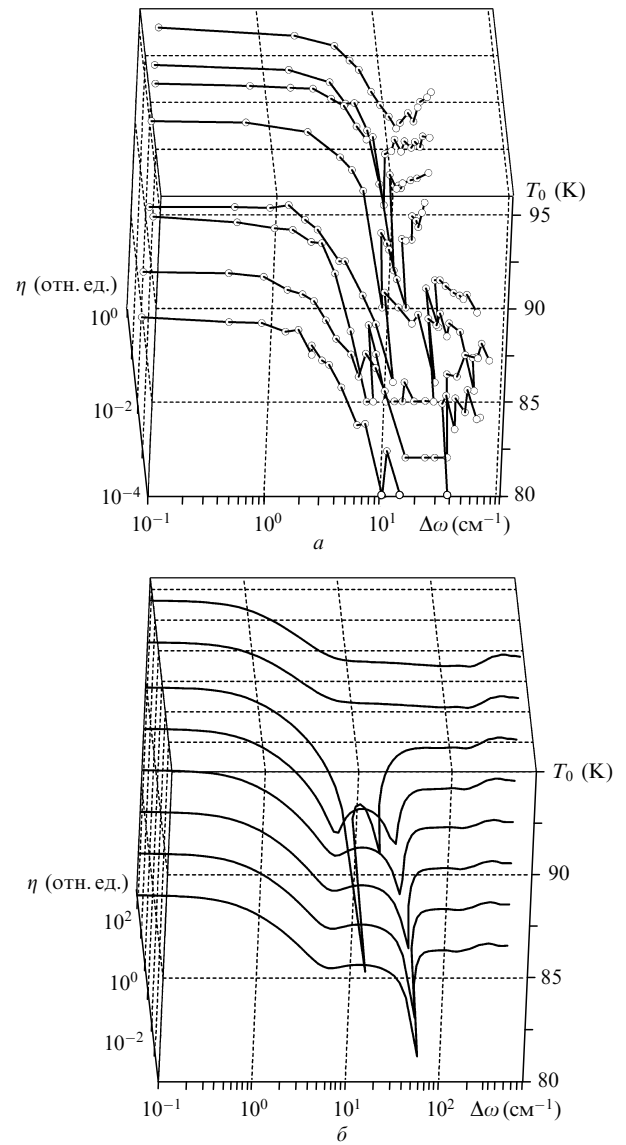


Рис.5. Зависимость  $\eta(\Delta\omega, T_0)$  (метод БН) по данным эксперимента [8] (а) и результатам расчета (б). Точка  $\Delta\omega = 0$  соответствует длинам волн  $\lambda = 620$  (а) и 650 нм (б).

ны  $\lambda$  возбуждения – зондирования. Из рис.7,б следует, что зависимость эффективности самодифракции  $\eta(\lambda, T_0) \propto |\chi(\lambda, T_0)|^2$ , которая измеряется методом ВЧФС, также сохраняет перечисленные выше особенности составляющих  $\chi$ . Во-первых, на этой зависимости имеются хорошо выраженные максимумы и минимумы, спектральное положение которых относительно слабо меняется при изменении начальной температуры  $T_0$ . А во-вторых, наблюдается резкий скачок эффективности процесса самодифракции в окрестности точки фазового перехода  $T_0 \sim T_c$ . Таким образом, спектрально-временные особенности  $\eta(\lambda, T_0)$ , наблюдаемые этим методом, оказываются сходными с особенностями нелинейного отклика в методе пробного импульса, описанными в [31, 32, 34, 36].

#### 4. Заключение

Итак, в рамках предположений о том, что энергетическая щель в спектре состояний ВТСП метастабильна [9, 31 – 34, 36] и его нелинейный отклик обусловлен межзонными электронными переходами [5, 24, 31, 32, 34, 36],

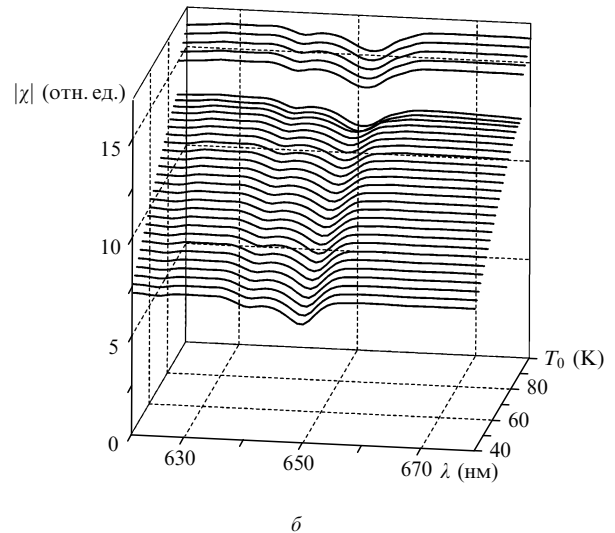
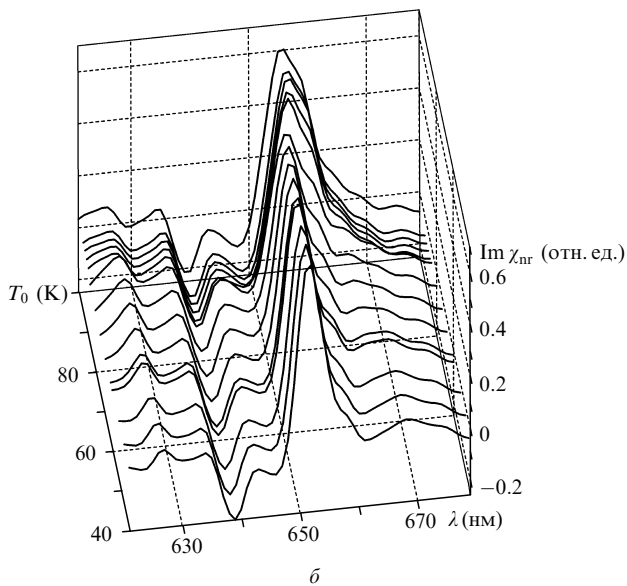
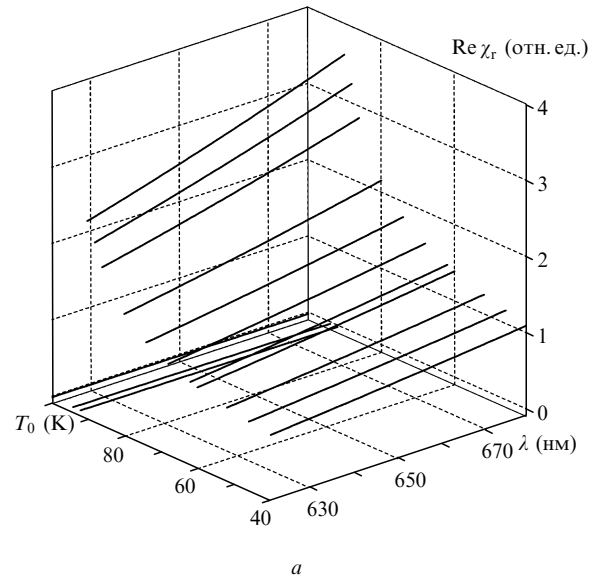
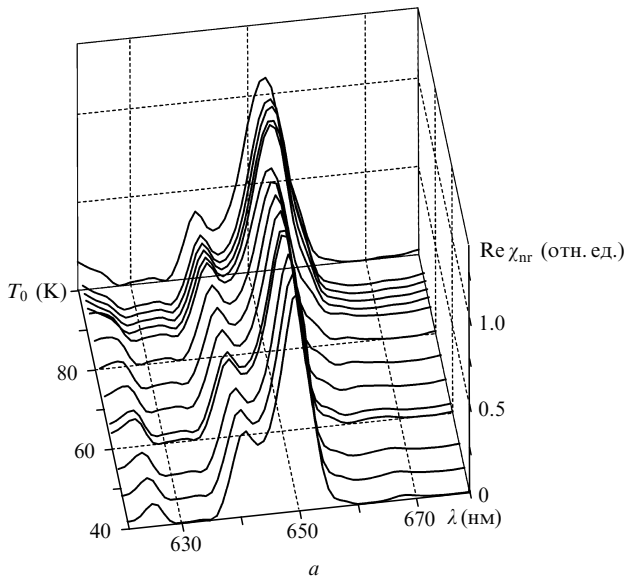


Рис.6. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей нерезонансной составляющей  $\chi_{nr}$  полной нелинейной восприимчивости  $\chi$  на плоскости  $(\lambda, T_0)$  с использованием метода ВЧФС.

Рис.7. Изменение действительной части резонансной составляющей  $Re \chi_r$  (а) полного нелинейного отклика  $\chi$  и модуля последнего  $|\chi|$  (б) на плоскости  $(\lambda, T_0)$  при использовании метода ВЧФС.

нами проведено моделирование результатов экспериментов по пикосекундной когерентной четырехфотонной спектроскопии ВТСП (методы бигармонической накачки [8, 9] и вырожденной четырехфотонной спектроскопии [37]). Показано, что в типичных для подавляющего большинства экспериментов условиях с достаточно высоким уровнем возбуждения (энергия импульсов накачки  $\sim 10^{-7}$  Дж в пятне фокусировки диаметром 150 мкм) на зависимости эффективности процесса самодифракции от начальной температуры образца  $T_0$  в окрестности точки перехода в сверхпроводящее состояние  $T_0 \simeq T_c$  должны наблюдаться резкие скачки. Причем, несмотря на сильный разогрев, методом бигармонической накачки и в этом случае можно обнаружить энергетическую щель в спектре состояний ВТСП образца по наличию характерного двухфотонного резонанса [8, 38], что может объяснить результаты, полученные авторами [9].

Однако еще более важным, на наш взгляд, является то, что в рамках построенной в [31, 32, 34] и настоящей

работе модели можно объяснить практически все известные нам на сегодняшний день температурные, спектральные и временные аномалии поведения нелинейного отклика ВТСП, наблюдавшиеся ранее с использованием самых разных методов нелинейной спектроскопии. Подобные аномалии постоянно обнаруживаются в результатах множества экспериментов, проведенных с помощью самых разных вариаций методов пробного импульса, бигармонической накачки, вырожденной четырехфотонной спектроскопии в совершенно разных условиях по уровню возбуждения – зондирования, при использовании как фемто-, так и пикосекундных импульсов. До сих пор применяемые для интерпретации аномалий подобного типа модели, объясняя результаты какого-то одного конкретного эксперимента, немедленно вступали в противоречие с другими известными экспериментальными данными.

Работа выполнена при поддержке грантов Президента Российской Федерации № НШ-1583.2003.2 и № МК-1328.2004.2.

1. Han S.G. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 2708 (1990).
2. Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 2172 (1990).
3. Гершензон М.Е. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **52**, 1189 (1990).
4. Kazeroonian A.S. et al. *Sol. State Commun.*, **78**, 95 (1991).
5. Chekalin S.V. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3860 (1991).
6. Bluzer N. *Phys. Rev. B*, **44**, 10222 (1991).
7. Hegman F.A. et al. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 1158 (1993).
8. Zherikhin A.N. et al. *Phys. Lett. A*, **179**, 145 (1993).
9. Zherikhin A.N. et al. *Physica C*, **221**, 311 (1994).
10. Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. B*, **49**, 6185 (1994).
11. Buhleier R. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 9672 (1994).
12. White J.O. et al. *Physica C*, **235–240**, 2025 (1994).
13. Stevens C.J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2212 (1997).
14. Smith D.C. et al. *J. Low Temp. Phys.*, **117**, 1059 (1999).
15. Demsar J. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 054519 (2001).
16. Segre G.P. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 137001 (2002).
17. Schneider M.L. et al. *Europ. Phys. J. B*, **36**, 327 (2003).
18. Owen C.S., Scalapino D.J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1559 (1972).
19. Parker W.H., Williams W.D. *Phys. Rev. Lett.*, **29**, 924 (1972).
20. Schuller I., Gray K.E. *Phys. Rev. Lett.*, **36**, 429 (1976).
21. Allen P.B. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1460 (1987).
22. Nessler W. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 4480 (1998).
23. Sun C.K. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 15337 (1994).
24. Farztdinov V.M. et al. *Brazilian J. of Physics*, **26**, 482 (1996).
25. Demsar J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 4918 (1999).
26. Kabanov V.V. et al. *Phys. Rev. B*, **61**, 1477 (2000).
27. Lucas G., Stephen M.J. *Phys. Rev.*, **154**, 349 (1967).
28. Woo J.W.F., Abrahams E. *Phys. Rev.*, **169**, 407 (1968).
29. Tinkham M., Clarke J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1366 (1972).
30. Schmid A., Schoen G. *J. Low Temp. Phys.*, **20**, 207 (1975).
31. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 720 (2005).
32. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 729 (2005).
33. Воронов А.В. *ЖЭТФ*, **120**, 1256 (2001).
34. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 102 (2005).
35. Абакумов В.Н. и др. *Безызлучательная рекомбинация в полупроводниках* (С.-Пб.: изд-е Петербургского института ядерной физики им. Б.П.Константинова РАН, 1997).
36. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 1039 (2005).
37. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **32**, 789 (2002).
38. Grishanin V.A. et al. *Laser Phys.*, **3**, 121 (1993).
39. Kornienko A.G. et al. *J. Appl. Phys.*, **80**, 2396 (1996); Петникова В.М. и др. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
40. Schubert M., Willhelmi B. *Nonlinear optics and quantum electronics* (New York: Wiley, 1986).
41. Perry J.K. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 144501 (2001).
42. Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. *Статистическая физика. Ч.2. Теория конденсированного состояния* (М.: Наука, 1978).
43. Chadi D.J., Cohen M.L. *Phys. Rev. B*, **8**, 5747 (1973).
44. Апанасевич П.А. *Основы взаимодействия света с веществом* (Минск: Наука и техника, 1977).
45. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981).