

Спектральные, временные и температурные особенности нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников в методах нестационарной нелинейной спектроскопии

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

Показано, что основные особенности поведения нелинейного отклика высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), наблюдавшиеся в экспериментах с фемто- и пикосекундным возбуждением-зондированием при высоком и низком уровнях оптической накачки в разных вариантах спектроскопии пробного импульса, включая ситуации с однофотонным и двухфотонным зондированием возбужденного состояния, могут быть интерпретированы в рамках двух предположений. Для объяснения спектральных и температурных особенностей отклика ВТСП при низком уровне накачки достаточно учесть вклады межзонных электронных переходов в диэлектрическую проницаемость. В то же время кардинальные изменения кинетики (временные особенности) отклика ВТСП, наблюдавшиеся при высоком уровне возбуждения (при типичной для большинства экспериментов энергии импульсов накачки $\sim 10^{-7}$ Дж в пятне фокусировки диаметром 150 мкм), могут быть объяснены в рамках предположения о «замороженной» (метастабильной) энергетической щели в спектре состояний ВТСП. При этом все необходимые для интерпретации резкого снижения скорости релаксации нелинейного отклика условия (вырождение) реализуются за счет специфики распределения плотности электронных состояний сразу же после формирования в спектре состояний ВТСП энергетической щели.

Ключевые слова: нелинейная спектроскопия ВТСП, спектрально-временные и температурные особенности нелинейного отклика, метастабильная энергетическая щель, межзонные электронные переходы, вырождение электронных состояний.

1. Введение

Развитие техники генерации сверхкоротких лазерных импульсов стимулировало изучение процессов сверхбыстрой релаксации фотовозбуждения в металлах [1–11], а также в низкотемпературных [12–16] и высокотемпературных [17–34] сверхпроводниках (НТСП и ВТСП). Далеко не в последнюю очередь интерес к экспериментам подобного рода обусловлен перспективой создания сверхбыстрых и сверхчувствительных ВТСП-болометров [17, 23]. Однако еще важнее то, что такие исследования могут дать новую информацию, проливающую свет на физику самого явления высокотемпературной сверхпроводимости.

Почти во всех экспериментах такого рода используется классическая версия метода пробного импульса (так называемая pump-probe спектроскопия (рис.1)), изучающая зависимость изменения коэффициента отражения ΔR (и/или пропускания ΔT) образца от времени задержки τ короткого пробного импульса относительно момента прихода столь же короткого импульса накачки – ударного возбуждения [18–22]. Для обработки полученных данных обычно применяется стандартное выражение [34]

$$\Delta R(\tau) \propto A(T) \left\{ H(\tau) \left[1 - \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_{th}}\right) \right] \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_r}\right) \right\}, \quad (1)$$

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

Поступил в редакцию 10 апреля 2006 г.

где $A(T)$ – амплитуда нестационарного отклика, зависящая от температуры T ; $H(\tau)$ – ступенчатая функция Хэвисайда; τ_{th} и τ_r – времена термализации и релаксации фотовозбужденных носителей (см. ниже). Значительно реже используются другие подходы нелинейной спектроскопии, такие как стационарные либо нестационарные модификации методов бигармонической накачки (БН) [9, 25, 26] и вырожденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС) [10, 11] (рис.1), а также терагерцовой спектроскопии [27–29], или гибридные методы (оптическое возбуждение и регистрация электрического отклика) [16, 17, 23, 24]. Причем основной интерес во всех подобных случаях обычно уделяется другим (чаще всего спектраль-

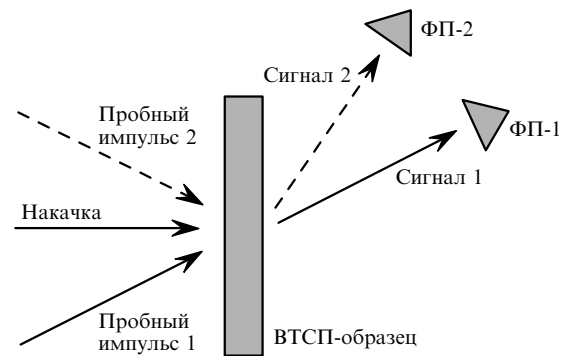


Рис.1. Схема эксперимента с однофотонным (спектрохронография) и двухфотонным (методы БН и ВЧФС) зондированием кинетики изменений, наведенных в ВТСП импульсом накачки. Используется либо один (пропускание пробного импульса 1 измеряется фотоприемником ФП-1), либо два совмещенных во времени пробных импульса (сигнал самодифракции пробных импульсов 1 и 2 детектируется фотоприемником ФП-2).

ным) особенностям нелинейного отклика [35–37]. Однако результаты и этих экспериментов чрезвычайно важны, т. к. все полученные данные должны интерпретироваться в рамках некой единой модели.

До недавнего времени считалось, что основные закономерности процессов, протекающих в нестационарных условиях, хорошо известны. После ударного возбуждения свободные носители сначала быстро ($\tau_{th} < 10$ фс при энергии «горячего» электрона $E_e \sim 1$ эВ [38, 39]) термализуются в процессах электрон-электронного (e–e) рассеяния. При этом функция их распределения по энергии $f(E_e)$ возвращается к функции распределения Ферми–Дирака $f_F(E_e; T_e)$ с электронной температурой T_e , отличающейся как от исходной температуры образца T_0 , так и от температуры T_p его фононной подсистемы – решетки [40]. Однако оказалось, что даже в простых металлах (Cu, Ag, Au и др.) время термализации $\tau_{th} \sim 0.5$ пс [5, 6, 40], что было интерпретировано как результат ограничений, налагаемых статистикой Ферми–Дирака на пространство электронных состояний в актах e–e-рассеяния. Более того, эксперимент не обнаружил предсказываемой теорией зависимости $\tau_{th} \propto T^{-2}$. Это было объяснено недостаточно низкой температурой образца в условиях проведенных экспериментов [1–7, 41].

На втором этапе термализованные носители остывают (T_e снижается) за счет процессов электрон-фононного (e–p) рассеяния, протекающих на временах τ_r . Вначале этот процесс ($T_e \rightarrow T_p$) описывался в рамках так называемой двухтемпературной модели [42], которая предсказывает для простых металлов зависимости $\tau_r \propto T$ при $T \geq T_D/5$ и $\tau_r \propto T^{-3}$ при $T \ll T_D/5$, где T_D – температура Дебая [7, 41, 43–45]. Однако проведенные эксперименты

не обнаружили существенного роста τ_r в области $T \ll T_D/5$, что опять было объяснено ограничениями, налагаемыми на пространство электронных состояний в процессах рассеяния при низких температурах [1–7]. Эту интерпретацию подтвердили, на первый взгляд, эксперименты с НТСП и ВТСП [13–15, 17, 19, 30], в которых в окрестности точки фазового перехода в сверхпроводящее состояние ($T_0 \simeq T_c$) значения τ_{th} и τ_r резко росли. Именно такое поведение τ_{th} и τ_r предсказывала и теория [12, 46–48], поскольку одновременно с формированием энергетической (сверхпроводящей) щели в спектре состояний электронной подсистемы существенно более жесткими становятся и соответствующие ограничения.

Эксперимент показал, что в НТСП значения τ_r изменяются примерно в 5 раз при изменении T_0 в диапазоне $0.980 - 0.995 T_c$ [15, 49–51]. В принципе это согласуется с предсказаниями теории [15, 51], согласно которым при низких температурах и малом уровне возбуждения $\tau_r \propto \exp(\Delta/k_B T_c)$, где Δ – ширина энергетической щели в спектре состояний; k_B – постоянная Больцмана. В ВТСП значения τ_r при прохождении точки $T_0 \simeq T_c$ изменялись несколько меньше (рис.2,а) – примерно в 2–3 раза [52]. Было установлено, что при существенном удалении от пика значений τ_r (точка $T_0 \simeq T_c$) время релаксации по мере уменьшения T_0 снова растет [31, 33], причем по закону $\tau_r \propto T^{-3}$ [33, 53]. Аргументированного объяснения этому факту предложено не было. Сходный результат был получен и в экспериментах с тяжелыми фермионными металлами $YbXCu_4$ (где $X = Ag, Cd, In$), для которых, в отличие от немагнитных соединений $LuXCu_4$, значения τ_r увеличивались более чем на два порядка при T_0 ниже температуры Кондо [41].

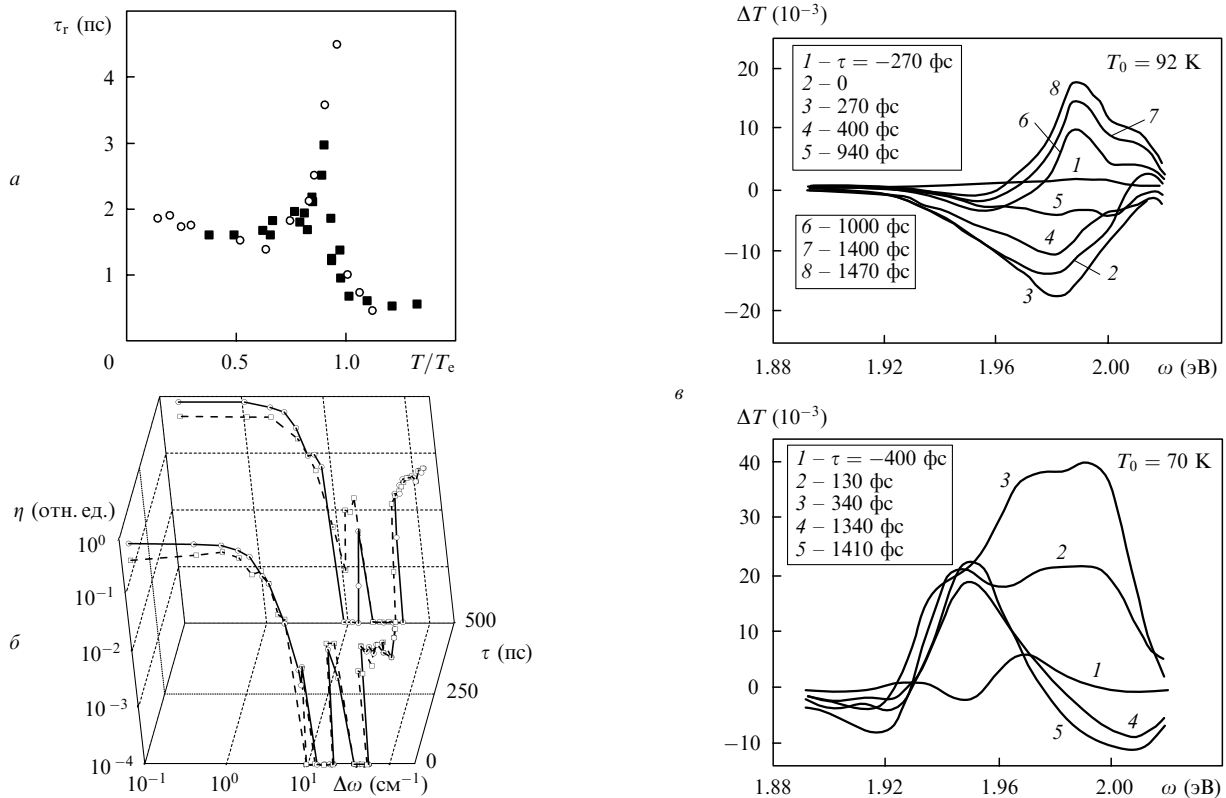


Рис.2. Данные экспериментов с $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$: зависимости $\tau_r(T/T_c)$ из [19] (квадраты) и [52] (кружки) (а), зависимости эффективности самодифракции η от расстройки частот компонент БН $\Delta\omega$ при $\tau = 0$ и 500 пс в отсутствие (сплошная кривая) и при наличии (штриховая кривая) импульса накачки [25] (б), а также зависимости ΔT от частоты пробного импульса ω при разных τ и $T_0 = 92$ и 70 К [22, 47] (в).

Тем более неожиданной стала публикация [34], авторы которой после резкого снижения энергии импульса накачки получили кардинально иной результат для целого ряда купратов ($\text{La}_{2-\delta}\text{Sr}_\delta\text{CuO}_4$, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$, легированный La, и $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCuO}_{8+\delta}$). Было показано, что для всех них при малых уровнях возбуждения в области низких температур $\tau_r \propto T^{-3\pm 0.5}$ и рост τ_r начинается еще в «нормальной» металлической фазе (при $T_0 > T_c$), а все описанные выше особенности поведения τ_r в окрестности точки фазового перехода $T_0 \simeq T_c$ действительно имеют место, однако лишь при высоких уровнях возбуждения, когда образец практически мгновенно должен «забыть» информацию о своем исходном состоянии (о начальной температуре T_0). Более того, указанные особенности оказались тем более заметными, чем выше была энергия импульса накачки. Авторы [34] утверждают, что с учетом приведенных в [31–33, 53–55] данных τ_r аналогично ведет себя в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$, $\text{La}_{2-\delta}\text{Sr}_\delta\text{CuO}_4$, $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ и $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$. Причем в контрольных экспериментах с пленками металлов (Au) никаких существенных изменений τ_r в диапазоне температур 10–280 К в [34] обнаружено не было.

Совершенно неожиданный результат дали и эксперименты по пикосекундному (длительность импульсов $\tau_{\text{pulse}} \simeq 20$ пс) двухфотонному (нестационарная модификация метода БН) зондированию кинетики спектра электронных состояний сверхпроводящих образцов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, предварительно возбужденных столь же коротким импульсом накачки [25]. Было установлено, что, несмотря на весьма существенное изменение температуры ($\sim 20 - 40$ К) исходно сверхпроводящего ($T_0 \simeq 80$ К) образца за счет импульса накачки, при задержках момента зондирования τ вплоть до ~ 1 нс все признаки наличия энергетической щели в его электронном спектре сохраняются [56, 57] (рис.2,б). Поскольку хорошо известно, что сверхпроводимость в таких условиях должна исчезать за времена ~ 1 пс [23], аргументированного объяснения этот факт в [25] не получил. С учетом того, что в оптическом диапазоне нелинейный отклик ВТСП традиционно считается обусловленным поглощением на свободных носителях [34], к известным его аномалиям можно отнести и весьма резкие спектральные изменения амплитуды $\Delta R(\lambda)$ и $\Delta T(\lambda)$, наблюдавшиеся в тех экспериментах, когда длина волны пробного импульса λ отличалась от длины волны импульса накачки λ_p (рис.2,в) [22, 47].

Настоящая работа носит в основном обзорный характер, а ее целью является непротиворечивое объяснение спектральных, временных и температурных особенностей нелинейного отклика ВТСП, включая все перечисленные выше аномалии, наблюдавшиеся методами нестационарной (фемто- и пикосекундной) нелинейной спектроскопии. Ниже для этого будут использованы два допущения. Во-первых, мы будем считать, что энергетическая щель в спектре состояний ВТСП является «замороженной» [58–61]. Это означает, что она не может быть быстро разрушена даже при весьма существенном отрыве электронной температуры T_e от температуры решетки T_p и что образец после возбуждения оказывается в метастабильном состоянии [58]. Как будет ясно из дальнейшего, в результате при высоких уровнях возбуждения электронные состояния в ВТСП вырождаются, т. е. положения уровней Ферми $E_{e,h}^F$ для свободных «электронов» (квазичастицы состояния над щелью в электрон-

ном спектре) и «дырок» (аналогичные состояния, но под щелью) не совпадают [59–61]. С учетом распределения плотности электронных состояний по энергии в ВТСП это приводит к резкому снижению скорости процессов рекомбинации свободных электронов и дырок и к соответствующей перестройке кинетики релаксации возбуждения. Во-вторых, мы будем предполагать, что электронная часть нелинейного отклика ВТСП в методах нелинейной спектроскопии обусловлена межзонными электронными переходами. Отметим, что последнее допущение является гораздо менее неожиданным, чем первое, поскольку вопрос о роли межзонных переходов в процессе формирования нелинейного отклика металлов и ВТСП уже обсуждался в литературе [8–11, 36, 47, 62–65].

Дальнейшее изложение материала построено следующим образом. Вначале (разд.2) в соответствии с подходом [58] рассмотрена физическая мотивация первого из двух перечисленных выше предположений. При этом после краткого обзора ряда важных для нас свойств ВТСП с использованием модели, описывающей магнитно-дипольное формирование так называемых страйп-структур (и энергетической щели в спектре состояний), показано, что кинетика фазового перехода, связанного с разрушением последних после быстрого разогрева, зависит от начального скачка температуры. При не слишком большом перегреве ВТСП-образца с оптимальным уровнем легирования (см. ниже), несмотря на практически мгновенное исчезновение сверхпроводимости, фазовый переход должен происходить сравнительно медленно (времена до 10^{-9} с и более).

В разд.3 приведена замкнутая система кинетических уравнений [59], описывающих эволюцию термодинамических параметров $E_{e,h}^F$, $T_{e,h}$ и T_p электронной, дырочной и фононной подсистем во время и после быстрого возбуждения ВТСП-образца коротким импульсом накачки. Именно на этом этапе нами использовано первое из двух перечисленных выше допущений. Здесь же приведены результаты, полученные в ходе численного решения построенной системы кинетических уравнений [59, 61]. Показано, что при высоком уровне возбуждения в окрестности точки $T_0 \simeq T_c$ кинетика $E_{e,h}^F$, $T_{e,h}$ и T_p кардинально меняется за счет открытия в спектре электронных состояний ВТСП энергетической щели.

Далее (разд.4) построена модель нелинейной восприимчивости ВТСП, описывающая нелинейный отклик образца в разных модификациях метода пробного импульса, включая режимы сильного фемто- и пикосекундного возбуждения, случаи одно- и двухфотонного зондирования возбужденного состояния. Модель основана на последовательном учете вкладов всех возможных межзонных электронных переходов в «реальном» (см. ниже) электронном спектре [9–11, 64, 66, 67], что кардинально снижает число использованных в ней подгоночных параметров. В разд.5 приведены результаты, полученные в ходе численного моделирования спектральных, временных и температурных особенностей нелинейного отклика ВТСП во всех перечисленных выше модификациях метода пробного импульса [59–61]. Именно на этом этапе нами используются результаты расчета кинетики термодинамических параметров $E_{e,h}^F$, $T_{e,h}$ и T_p , приведенные в разд.3. Отметим, что часть представленных в этом разделе результатов имеет оригинальный характер. И, наконец, в заключительной части работы (разд.6) подведены некоторые итоги проведенного анализа.

2. Самоорганизация носителей заряда в ВТСП и кинетика фазового перехода

2.1. Страйп-структуры и энергетическая псевдощель

Анализ результатов исследований медно-оксидных ВТСП-соединений показал, что их металлическая проводимость связана с нарушениями стехиометрического состава (с определенным уровнем дефектности – «легированием») [68–70], а электронная структура определяется сложным взаимодействием хорошо и плохо локализованных состояний, чувствительных к ближнему порядку. При этом весьма сильная анизотропия приводит к квазидвумерному характеру поверхности Ферми. Известным общим свойством медно-оксидных ВТСП является упорядочение спинов ионов Cu в так называемых купратных (CuO_2) плоскостях. При стехиометрическом составе эти ионы (Cu^{2+}) имеют «дырки» со спином $s = 1/2$ в 3d-оболочке, а косвенное (через ионы кислорода) обменное взаимодействие устанавливает дальний антиферромагнитный порядок при сравнительно высоких температурах Нееля $T_N = 300 - 500$ К [71].

Детальное изучение магнитной структуры и спиновых корреляций в металлической фазе монокристаллов La_2CuO_4 и $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ было проведено методом нейтронного рассеяния [72]. При этом установлено, что магнитные моменты ионов Cu^{2+} в бислоях $\text{CuO}_2 - \text{Y} - \text{CuO}_2$ упорядочены антиферромагнитным образом, а момент на ионах Cu^{1+} в линейных цепочках $\text{Cu} - \text{O}$ отсутствует. Методом диффузного нейтронного рассеяния была найдена зависимость магнитной корреляционной длины ξ_m в купратной плоскости от средней концентрации дырок $\langle n \rangle$ [73]. Эксперименты по неупругому нейтронному рассеянию позволили определить значения констант обменного взаимодействия ионов Cu^{2+} ($2J \simeq 0.170$ эВ) в бислоях ($2J_b \simeq 10^{-2}2J$) и в цепочках $\text{Cu}^{2+} - \text{O}^{1-}$ ($2J' \simeq 10^{-5}2J$), что доказало квазидвумерность динамики спинов в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [74]. Аналогичные данные были получены для $\text{La}_{2-\delta}\text{Sr}_\delta\text{CuO}_4$ [75].

Было показано, что если в НТСП энергетическая («сверхпроводящая») щель имеет s-симметрию и формируется при температуре ниже T_c за счет электрон-фононного взаимодействия [75], то для ВТСП экспериментальные данные свидетельствуют о d-симметрии (оптимальное легирование, $\delta = \delta_{\text{opt}}$, для которого T_c максимальна) либо о «смешанной» (s-d) симметрии [76, 77]. Более того, методом фотоэмиссионной спектроскопии высокого углового разрешения в ВТСП ($\text{Ba}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{9-\delta}$) была обнаружена так называемая псевдощель [78] и показано, что при $\delta = \delta_{\text{opt}}$ и $\delta > \delta_{\text{opt}}$ (overdoped-соединения) энергетическая щель, как и в НТСП, исчезает («закрывается») при $T = T_c$ во всех точках поверхности Ферми. При $\delta < \delta_{\text{opt}}$ (underdoped-соединения) сверхпроводящая щель при нагреве эволюционирует в псевдощель, имеющую d-симметрию и закрывающуюся при $T = T^* \geq T_c$. Закрывание щели в точке $(\pi/4, \pi/4)$ зоны Бриллюэна происходит при $T = T_c$, в то время как в точке $(\pi, 0)$ – при $T \simeq 180$ К $\gg T_c$. Природа псевдощели и ее связь со сверхпроводящей щелью до сих пор остаются предметом бурных дискуссий. Хотя наиболее убедительные эксперименты были выполнены только на $\text{Ba}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{9-\delta}$ (использовался метод фотоэмиссионной спектроскопии), считается, что такое поведение щели характерно для всех ВТСП-соединений. Отметим, что в работах по нестационарной нелинейной спектроскопии overdoped-соедине-

ний $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ с $\delta > \delta_{\text{opt}}$ при $T < T_c$ наблюдались две щели с разной кинетикой [79]. Одна из них интерпретировалась авторами как сверхпроводящая щель, вторая – как псевдощель.

Не менее интересные данные были получены при электронном, нейтронном и рентгеновском рассеянии в соединениях La [80–82]. Было показано, что в купратных плоскостях при $T = T^*$ формируется периодическая последовательность чередующихся сильно вытянутых областей – так называемых страйпов (stripes), т. е. областей, обогащенных дырками и практически лишенных последних. Корреляционная длина (далее – длина страйпов, ориентированных вдоль направлений $(\pm 1, \pm 1, 0)$), уменьшается с ростом $\langle n \rangle$. В аналогичных экспериментах с соединениями Bi, Ва и Hg подобных особенностей обнаружено не было. В то же время косвенные данные о наличии страйп-структур в соединениях Bi дают измерения теплопроводности и проводимости, в температурных зависимостях которых наблюдались изломы [80]. По мнению ряда авторов, это свидетельствует о динамическом характере соответствующих страйп-структур и о малости их корреляционной длины.

Для описания страйп-структур чаще всего используются два подхода. В основе так называемой $t - J$ -модели лежит гамильтониан, учитывающий кинетическую энергию и корреляции на соседних узлах [83]. В модель вводятся два основных параметра: энергия перескока дырки на ближайшие узлы t и энергия обменного взаимодействия с последними J . Иногда учитываются члены, описывающие перескоки дырок на узлы и более далекого окружения. В рамках $t - J$ -модели резкое сужение зоны и соответствующий рост эффективной массы происходят за счет антиферромагнитных спиновых корреляций, подавляющих перескоки дырок между ближайшими узлами. При $J \gg t$ энергетически выгодным оказывается расслоение фаз, т. е. формирование чередующихся областей, заполненных дырками и практически лишенных последних. Численные расчеты на малых двумерных кластерах с размерами $\sim 8 \times 8$ показывают, что расслоение фаз должно наблюдаться для малых $\langle n \rangle$ при $J/t \geq 1$ [84, 85], в то время как для реальных соединений $J/t \simeq 0.35$ [86].

Другой подход – модель Пайерлса – Хаббарда – основан на учете ян-теллеровских искажений решетки [87]. Расчеты в рамках этой модели с учетом перескоков дырок по узлам меди, одноузельных кулоновских корреляций, спиновой динамики, кинетической и потенциальной энергий решетки тоже доказывают возможность расслоения фаз. При этом искажения решетки играют стабилизирующую роль, и условие $J/t \geq 1$ смягчается. Однако моделирование здесь проводится на еще меньших кластерах (с размерами $\sim 4 \times 4$), что резко снижает точность расчетов [88] и не позволяет описать кинетику переходов, связанных с формированием и разрушением страйп-структур.

В рассматриваемой далее феноменологической модели будет учитываться нелокальная часть потенциала взаимодействия спин-волновой теории [89–91], имеющая дипольный характер и обусловленная деформациями антиферромагнитного окружения, которые и приводят к притяжению в спин-симметричном и отталкиванию в спин-антисимметричном каналах [89, 90]. При $J/t \gg 1$ энергия взаимодействия составляет $\sim 8t^2/J$ [90], в то время как при $J/t \ll 1$ расчет дает значение $\sim J$ [89]. Именно этот случай и будет нами рассмотрен ниже.

2.2. Магнитно-дипольное взаимодействие

Предположим, что в решетке ВТСП-соединений вплоть до максимальных (для сверхпроводимости) значений δ существует локальное антиферромагнитное упорядочение [72]. Считая тогда, что кулоновское взаимодействие экранируется, рассмотрим магнитно-дипольное взаимодействие дырок, возникающее за счет деформаций окружения, которое опишем в двухчастичном приближении потенциальной энергией [89, 90]

$$V(\mathbf{r}, \alpha_1, \alpha_2) = \frac{B \cos(2\theta - \alpha_1 - \alpha_2)}{r^2}. \quad (2)$$

Здесь \mathbf{r} – радиус-вектор, соединяющий две дырки; B – константа, связанная с модулем их эффективных дипольных моментов $|\mathbf{d}_{1,2}^{(m)}| = d^{(m)}$; $\theta, \alpha_{1,2}$ – углы между направлениями $\mathbf{r}, \mathbf{d}_{1,2}^{(m)}$ и осью Y . В дальнейшем будем считать, что $d^{(m)} \equiv 1$. При такой нормировке в предельном случае $J/t \ll 1$ константа B/a^2 должна быть порядка энергии обменного взаимодействия при a , равном среднему расстоянию между дырками [89].

Учитывая симметрию задачи, направим ось Y вдоль одного из двух возможных кристаллографических направлений – оси страйпа. Предположим, что дипольный момент $\mathbf{d}^{(m)}$ всех дырок ориентирован параллельно оси Y , и рассмотрим смещение одной из дырок вдоль оси X , ортогональной оси Y (рис.3,а). Спроецировав на ось X силы, действующие на эту дырку со стороны ближайших соседей, найдем ее потенциальную энергию

$$V(x, a) = \frac{B}{a^2} \frac{1 - (x/a)^2}{[1 + (x/a)^2]^2}, \quad (3)$$

где x и a – проекции радиус-вектора \mathbf{r} на оси X и Y соответственно. Считая, что $\mathbf{d}^{(m)}$ может быть ориентиро-

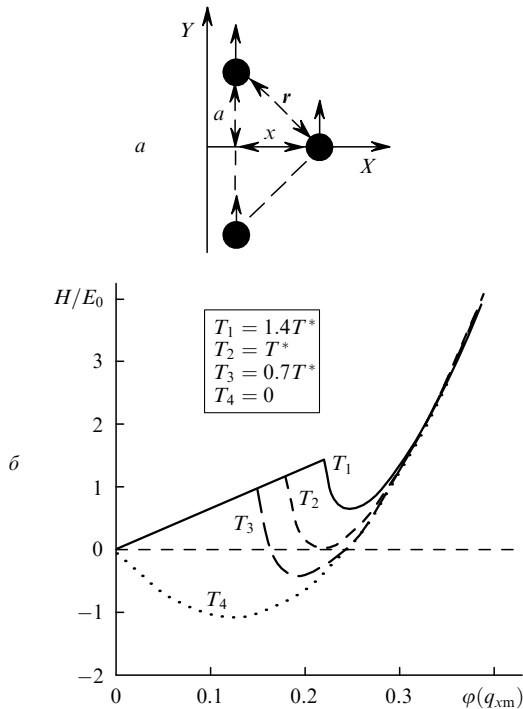


Рис.3. Схема, иллюстрирующая расчет энергии взаимодействия $V(x, a)$ дырки с ее ближайшими соседями (a) и зависимости нормированной энергии локализации дырок H от $\phi(q_{xm})$ для T_{1-4} ; $L = 3$, $G_0 = 4.5$ (б).

ван либо в направления Y , либо против него и $d^{(m)}(y) = d^{(m)}(-y)$, учтем это сомножителями $d^{(m)}(y) = \pm 1$ и запишем выражение для полной энергии дырки V_t (т.е. энергии с учетом сил, действующих на нее со стороны и более далеких соседей) в виде

$$V_t(x, a) = \sum_{j=1}^{\infty} d^{(m)}(0)d^{(m)}(ja)V(x, ja). \quad (4)$$

Здесь аргумент $d^{(m)}$ (т.е. j) фактически нумерует дырки в страйпе.

Когда число дырок с «неправильной» вследствие тепловых флуктуаций ориентацией $\mathbf{d}^{(m)}$ в страйпе мало, можно воспользоваться стандартным приближением среднего поля. Для этого введем средний локальный (по y) момент $\langle d^{(m)} \rangle(y)$ и будем считать, что $\langle d^{(m)} \rangle$ является медленной (на масштабе a) функцией y . Полагая теперь, что величина $V(x, a)$ спадает с увеличением расстояния существенно быстрее, чем меняется $\langle d^{(m)} \rangle$, и считая, что $d^{(m)}(y) - \langle d^{(m)} \rangle(y) \ll \langle d^{(m)} \rangle(y)$, после замены суммирования по j на интегрирование по y и разложения $\langle d^{(m)} \rangle(y)$ в ряд в окрестности произвольного y получим

$$V_t(x, y) \simeq \frac{\pi^2}{6} \frac{B}{a_0^2} d^{(m)}(y) \times \left[\langle d^{(m)} \rangle(y) + a_e^2 \frac{d^2 \langle d^{(m)} \rangle(y)}{dy^2} + \dots \right] \left[1 + \left(\frac{x}{a_0} \right)^2 \right]^{-1}. \quad (5)$$

Здесь $a_0 = (6/\pi^2)a$; a_e – константа порядка магнитной корреляционной длины, связанная с конечностью радиуса взаимодействия. Из (5) следует, что взаимодействие внутри страйпа хорошо локализовано.

В дальнейшем мы будем считать, что распределение страйпов по оси X периодически, а период L этого распределения и пространственную частоту его низшей гармоники $q_{xm} = 2\pi/L$ будем рассматривать как внешние параметры задачи, жестко связанные с δ (т.е. с $\langle n \rangle$). Для расчета пространственного распределения потенциальной энергии $V_0(x, y)$ при произвольном распределении страйпов по оси X мы, воспользовавшись аппроксимацией (5), сначала найдем фурье-образ функции $V_t(x, y)$

$$V_t(q_x, y) = L^{-1} \int_{-L/2}^{L/2} V_t(x, y) \exp(iq_x x) dx \approx \tilde{G}(y) \exp(-q_x a_0), \quad (6)$$

где

$$\tilde{G}(y) = G_0 d^{(m)}(y) \left[\langle d^{(m)} \rangle(y) + a_e^2 \frac{d^2 \langle d^{(m)} \rangle(y)}{dy^2} + \dots \right];$$

$$G_0 = \frac{3}{\pi} \frac{B}{a_0 L};$$

q_x – пространственная частота. Причем при малых δ с учетом экранирования на расстояниях порядка нескольких периодов ячейки пределы интегрирования в (6) могут быть расширены до бесконечности.

При произвольном одномерном (по x) распределении страйпов с одинаковыми $\langle d^{(m)} \rangle(y)$ и $n(q_x)$ плотность распределения энергии

$$V_0(q_x, y) = V_t(q_x, y)n(q_x) = \tilde{G}(y) \exp(-q_x a_0)n(q_x). \quad (7)$$

Отсюда после обратного преобразования Фурье (7) и перенормировки

$$\tilde{G} \rightarrow \frac{\tilde{G}}{E_0}, \quad x \rightarrow \frac{x}{a}, \quad L \rightarrow \frac{L}{a}, \quad a_{0,e} \rightarrow \frac{a_{0,e}}{a},$$

где $E_0 = (2\pi\hbar)^2/(2m_0a^2)$, \hbar – постоянная Планка, m_0 – эффективная масса, стационарное уравнение Шредингера можно записать в виде

$$\left[\frac{d^2}{dx^2} + \tilde{G}(y) \exp\left(-ia_0 \frac{d}{dx}\right) |\varphi(x, y)|^2 + \varepsilon_H \right] \varphi(x, y) = 0. \quad (8)$$

Здесь $\varphi(x, y)$ – волновая функция дырки; ε_H – собственное значение оператора энергии. Оператор дифференцирования в показателе экспоненты в (8) учитывает нелокальность взаимодействия и действует на $|\varphi(x, y)|^2$. Для двух систем страйпов (нижние индексы 1 и 2), у которых $\langle d_1^{(m)} \rangle(y) = -\langle d_2^{(m)} \rangle(y)$, выражение (8) трансформируется в систему

$$\left\{ \frac{d^2}{dx^2} + \tilde{G}(y) \exp\left(-ia_0 \frac{d}{dx}\right) [|\varphi_k(x, y)|^2 - |\varphi_l(x, y)|^2] + \varepsilon_H \right\} \varphi_k(x, y) = 0, \quad (9)$$

где $k, l = 1, 2; k \neq 1$.

Отметим, что для интересующих нас решений (9) значения ε_H и $\langle d_{1,2}^{(m)} \rangle(y)$, входящие в выражения для $\tilde{G}(y)$, должны быть согласованы с волновой функцией $\varphi_{1,2}(x, y)$. При этом, усреднив $d^{(m)}$ в каждом страйпе по двум допустимым направлениям с учетом тепловых флуктуаций в локальном (по y) термодинамическом равновесии, мы должны потребовать [92], чтобы

$$\langle d_{1,2}^{(m)} \rangle(y) = \pm \tanh \left[\frac{A_d(y)}{k_B T} \right]. \quad (10)$$

Здесь $2A_d(y)$ – различие в энергиях взаимодействия для дырок с дипольным моментом $d^{(m)}$, ориентированным по направлению вектора $\langle d^{(m)} \rangle(y)$ в страйпе (параметр порядка) и против него. Одновременно должно быть выполнено соотношение

$$A_d(y) = - \sum_{p=-\infty}^{\infty} \sum_{i,j=1,2} (-1)^{i-j} \tilde{G}(y) \times \exp(-|p|q_{xm}a_0)n_i(pq_{xm}, y)n_j(-pq_{xm}, y). \quad (11)$$

В расчетах нормировка $\varphi_{1,2}(x, y)$ отвечала размещению двух дырок с противоположной ориентацией $d^{(m)}$ на периоде L (в «элементарной ячейке») страйп-структуры [93]:

$$\int_{-L/2}^{L/2} \int_{-L/2}^{L/2} dx dy |\varphi_k(x, y)|^2 = 1, \quad (12)$$

где $k = 1, 2$. Таким образом, вероятность нахождения любой дырки в любом страйпе была одинакова.

При описании динамики считалось, что $\langle d^{(m)} \rangle$ явно зависит не только от y , но и от времени t , и использовалось так называемое релаксационное приближение [93]

$$\frac{\partial \langle d^{(m)} \rangle(y, t)}{\partial t} = -\tau_d^{-1} [\langle d^{(m)} \rangle(y, t) - \langle d^{(m)} \rangle_0]. \quad (13)$$

Здесь τ_d – время переворота $d^{(m)}$; $\langle d^{(m)} \rangle_0$ – равновесное значение $\langle d^{(m)} \rangle$. В явном виде динамические члены в систему (9) не включались, и эволюция $\varphi_{1,2}(t)$ описывалась через зависимость $\langle d^{(m)} \rangle(y, t)$ в адиабатическом приближении (временной масштаб задан параметром $\tau_F = L/v_F$, где v_F – фермиевская скорость) с помощью уравнения (13).

2.3. Стационарные страйп-структуры

С учетом (9) запишем гамильтониан системы в виде

$$H = \sum_{q_x; i \neq j=1,2} q_x^2 \varphi_i(q_x, y) \varphi_j(-q_x, y) - \tilde{G}(y) \exp(-q_x a_0) \times n_i(q_x, y)n_j(-q_x, y) + \tilde{G}(y) \exp(-q_x a_0)n_i(q_x, y)n_j(-q_x, y). \quad (14)$$

Тогда из неравенства Коши–Шварца [94] следует, что минимизация H происходит при

$$\varphi_i(q_x, y) = -\varphi_j(q_x, y), \quad \text{если } q_x = \pm q_{xm}, \pm 3q_{xm}, \dots, \quad (15)$$

$$\varphi_i(q_x, y) = \varphi_j(q_x, y), \quad \text{если } q_x = 0, \pm 2q_{xm}, \dots,$$

что эквивалентно требованию

$$\varphi_1(x, y) = \varphi_2\left(x \pm \frac{L}{2}, y\right). \quad (16)$$

Поскольку при существовании страйп-структур хотя бы одна пространственная гармоника должна иметь амплитуду $\varphi_{1,2}(q_{xm}) \neq 0$, учитывая две низшие гармоники в $\varphi_{1,2}$, запишем

$$\varphi_{1,2}(x, y) = \varphi_0(y) \pm \varphi(q_{xm}, y) \cos(q_{xm}x). \quad (17)$$

Выражения для энергии локализации дырок H и A_d в этом случае примут следующий вид:

$$H(y) = 2\varphi^2(q_{xm}, y)L^{-1} \left\{ \pi^2 - 8L^2\varphi_0^2(y) \times \left[\langle d^{(m)} \rangle(y) + a_e^2 \frac{d^2 \langle d^{(m)} \rangle(y)}{dy^2} + \dots \right] G_0 \exp(-q_{xm}a_0) \right\}, \quad (18)$$

$$A_d(y) = 8L^2\varphi_0^2(y)\varphi^2(q_{xm}, y)$$

$$\times \left[\langle d^{(m)} \rangle(y) + a_e^2 \frac{d^2 \langle d^{(m)} \rangle(y)}{dy^2} + \dots \right] G_0 \exp(-q_{xm}a_0). \quad (19)$$

Используя соотношения (10), (12), (18) и (19), можно рассчитать зависимость H (т. е. и ширины псевдощели) от $\varphi(q_{xm})$ в состоянии термодинамического равновесия, когда $\varphi_0(y) = \varphi_0$ и $\varphi(q_{xm}, y) = \varphi(q_{xm})$ (рис.3.б). Видно, что в этом случае имеется область значений параметров, в которой при $T < T^* = \text{const}$ минимизация H происходит при $\varphi(q_{xm}) \neq 0$. Критическая температура T^* и определяет точку фазового перехода, связанного с формированием страйп-структур. Однако еще более важным для нас является то, что зависимость $\varphi(q_{xm})$ от H является неод-

нозначной и при «быстром» возбуждении страйп-структуры могут не разрушаться, а оказываться в метастабильных состояниях.

Более строгий расчет проводился численно с учетом шести первых гармоник фурье-разложения $\varphi_{1,2}(x)$ [58]. При этом строился вспомогательный гамильтониан

$$H' = \sum_{p=-\infty}^{\infty} \sum_{i,j=1,2} [(pq_{xm})^2 \varphi_i(pq_{xm}) \varphi_j(-pq_{xm}) - \langle d^{(m)} \rangle_i (-1)^{i-j} G_0 \exp(-|p|q_{xm}a_0) n_i(pq_{xm}) n_j(-pq_{xm})] + M \exp\{R[Ln_i(0) - 1]^2\}, \quad (20)$$

$$\langle d^{(m)} \rangle_i = \tanh\left[(k_B T)^{-1} \langle d^{(m)} \rangle_i\right]$$

$$\times \sum_{p=-\infty}^{\infty} \sum_{i,j=1,2} (-1)^{i-j} G_0 \exp(-|p|q_{xm}a_0) n_i(pq_{xm}) n_j(-pq_{xm}),$$

минимизация которого осуществлялась с помощью неограниченного симплекс-метода [95] и обеспечивала правильную нормировку $\varphi_{1,2}(x)$ при $R \rightarrow \infty$. Параметры M и R выбирались такими, чтобы погрешность нормировки была менее 1%. Энергия связи определялась подстановкой найденных $\varphi_{1,2}(x)$ в (14). Нормированную расчетную зависимость $T^*(L^{-2})$ иллюстрирует рис.4,а. Легко видеть, что область существования страйп-структур ограничена предельным значением δ_{\max} , для которого $T^* = 0$. На зависимости $T^*(L^{-2})$ имеется участок почти линейного роста T^* с уменьшением L (т.е. δ). Функции $\varphi_{1,2}(x)$ сильно ангармоничны (рис.4,б). Ширина энергетической щели с ростом T монотонно падает, обращаясь в нуль при $T = T^*$ (рис.4,в). Последнее косвенно подтверждает то, что точка $T = T^*$ является точкой фазового перехода второго рода.

2.4. Сосуществование фаз

Считая $\langle d^{(m)} \rangle(y) \neq \text{const}$ и учитывая член, пропорциональный $d^2 \langle d^{(m)} \rangle(y) / dy^2$, осуществим вариацию $\varphi(q_x, y)$ (17), непрерывно отслеживая положение точки локального экстремума. Легко показать, что минимизация H происходит при

$$\varphi(q_{xm}, y) = (2L)^{-1} \left(1 - \frac{\gamma}{P}\right), \quad (21)$$

где

$$\gamma = (4g)^{-1} = \frac{\pi^2}{4LG_0 \exp(-q_{xm}a_0)};$$

$$P = \langle d^{(m)} \rangle(y) + a_c^2 \frac{d^2 \langle d^{(m)} \rangle(y)}{dy^2} + \dots$$

При этом

$$A_d(y, P) = \frac{G_0 P}{L} \left[1 - \left(\frac{\gamma}{P}\right)^2\right] \exp(-q_{xm}a_0). \quad (22)$$

Подставив теперь (22) в (10) и линеаризовав полученное уравнение по P , с учетом самосогласованности задачи получим замкнутое уравнение

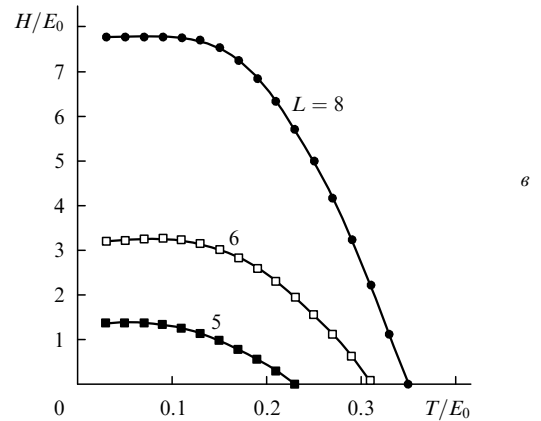
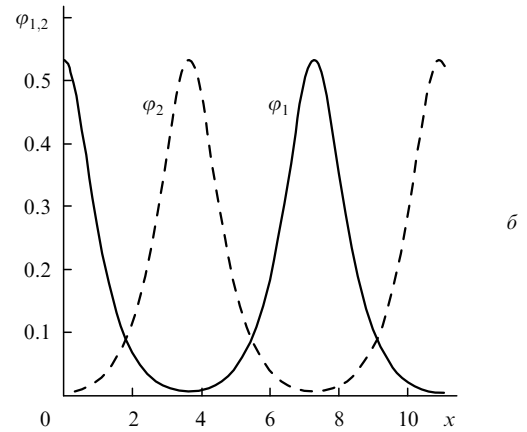
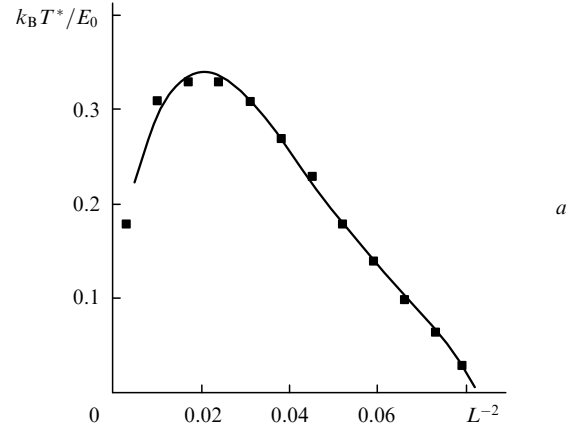


Рис.4. Нормированная зависимость T^* от L^{-2} (точки) и ее аппроксимация полиномом 4-й степени (сплошная кривая) (а), волновые функции $\varphi_{1,2}(x)$ (сплошная и штриховая кривые) при $L = 7.5$ (б) и температурная зависимость ширины псевдощели при $L = 5, 6$ и 8 ; $G_0 = 4.5$ (в).

$$a_c^2 \frac{d^2 \langle d^{(m)} \rangle(y)}{dy^2} = E_b(T) \operatorname{arctanh}[\langle d^{(m)} \rangle(y)] + \gamma - \langle d^{(m)} \rangle(y), \quad (23)$$

где

$$E_b(T) = \frac{k_B T L}{2G_0 \exp(-q_{xm}a_0)},$$

которое в рамках механической аналогии можно интерпретировать как уравнение движения в потенциале

$$U(\langle d^{(m)} \rangle) = -E_b(T) \left\{ \operatorname{arctanh} [\langle d^{(m)} \rangle(y)] + \frac{1}{2} \ln (1 - \langle d^{(m)} \rangle^2) \right\} - \gamma \langle d^{(m)} \rangle + \frac{1}{2} \langle d^{(m)} \rangle^2. \quad (24)$$

Его характер иллюстрирует рис.5,а. При $T = T^*$ оба максимума потенциальной кривой $U(\langle d^{(m)} \rangle)$ имеют одинаковые значения. Отметим, что в рассмотренном случае система консервативна и все процессы в ней протекают с сохранением энергии.

Остановимся теперь на простейшем примере неоднородного (по y) решения типа переключения фаз. Будем считать, что на двух бесконечно удаленных (по y) сторонах купратной плоскости $\langle d^{(m)} \rangle(y)|_{y \rightarrow -\infty} = \langle d^{(m)} \rangle_1$ и $\langle d^{(m)} \rangle(y)|_{y \rightarrow +\infty} = \langle d^{(m)} \rangle_2 \neq \langle d^{(m)} \rangle_1$. Нас будет интересовать граница раздела между этими двумя областями, которые мы будем называть фазами. Из рис.5,а следует, что при $T < T_m = \text{const} > T^*$ на кривых $U[\langle d^{(m)} \rangle(y)]$ имеются два локальных экстремума. Первый из них, U_1 , локализован в точке $\langle d^{(m)} \rangle = 0$ при любом T , а положение $\langle d^{(m)} \rangle = \langle d^{(m)} \rangle_r$ второго экстремума, U_2 , меняется при изменении T . Причем $U_1 < U_2$ при $T^* < T < T_m$ и $U_1 > U_2$ при $T < T^*$. При $T = T^*$ энергии фаз одинаковы, $U_1 = U_2$, и могут быть реализованы решения с асимптотическим,

$$\frac{d\langle d^{(m)} \rangle(y)}{dy} \Big|_{y \rightarrow \pm\infty} = 0, \quad (25)$$

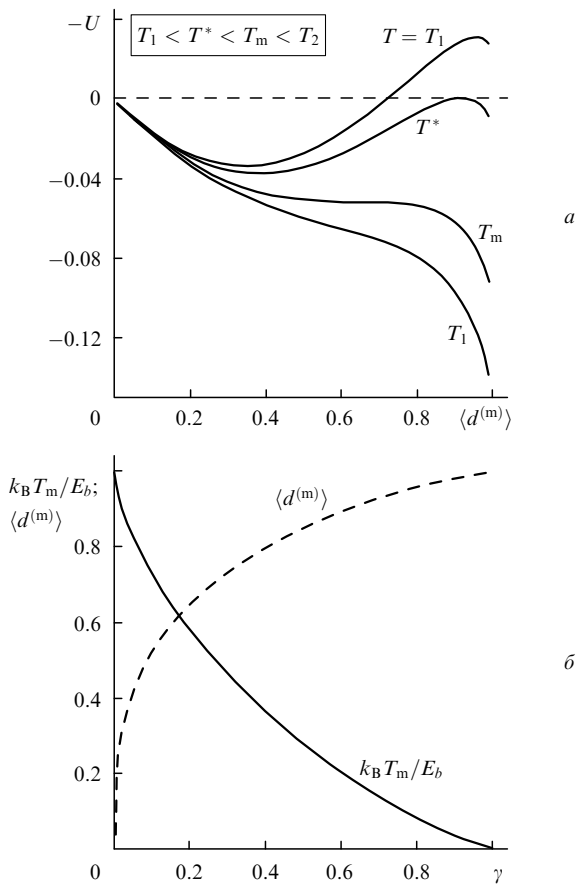


Рис.5. Расчетные зависимости $U(\langle d^{(m)} \rangle)$ для нескольких значений T (а) и нормированные зависимости $T_m(\gamma)$ (сплошная кривая) и $\langle d^{(m)} \rangle_r(\gamma)$ (штриховая кривая) в точке $T = T_m$ (б).

переходом от фазы $\langle d^{(m)} \rangle_1 = 0$ к фазе $\langle d^{(m)} \rangle_2 = \langle d^{(m)} \rangle_r$ в соответствии с правилом Максвелла [96].

Приближенную оценку ширины области перехода можно получить аналитически, т. к. решение (23) при условии (25) может быть записано в квадратурах

$$\zeta - \zeta_0 = \int_0^{\langle d^{(m)} \rangle_r} d\langle d^{(m)} \rangle \left\{ E_b(T^*) \left[\operatorname{arctanh} \langle d^{(m)} \rangle + \frac{1}{2} \ln (1 - \langle d^{(m)} \rangle^2) \right] + \gamma \langle d^{(m)} \rangle - \frac{1}{2} \langle d^{(m)} \rangle^2 \right\}^{-1/2}, \quad (26)$$

где $\zeta = y/a_c$; $\zeta_0 = \text{const}$. Разложив подинтегральную функцию в ряд и ограничившись квадратичными членами при $E_b(T^*) \ll 1$, получим

$$\langle d^{(m)} \rangle(\zeta) = \frac{1}{2} \frac{E_b(T^*) + \gamma}{1 - E_b(T^*)} \times \left\{ \sin \left\{ \left[\frac{1}{2} [1 - E_b(T^*)] \right]^{1/2} (\zeta - \zeta_0) \right\} + 1 \right\}. \quad (27)$$

Отсюда имеем следующую оценку ширины области перехода:

$$\Delta y = \pi a_c \left[\frac{2}{1 - E_b(T^*)} \right]^{1/2}. \quad (28)$$

Очевидно, что полученное решение инвариантно относительно произвольного сдвига $y \rightarrow y + \delta y$ ($\delta y = \text{const}$) координат вдоль оси Y .

2.5. Метастабильные состояния и кинетика фазового перехода

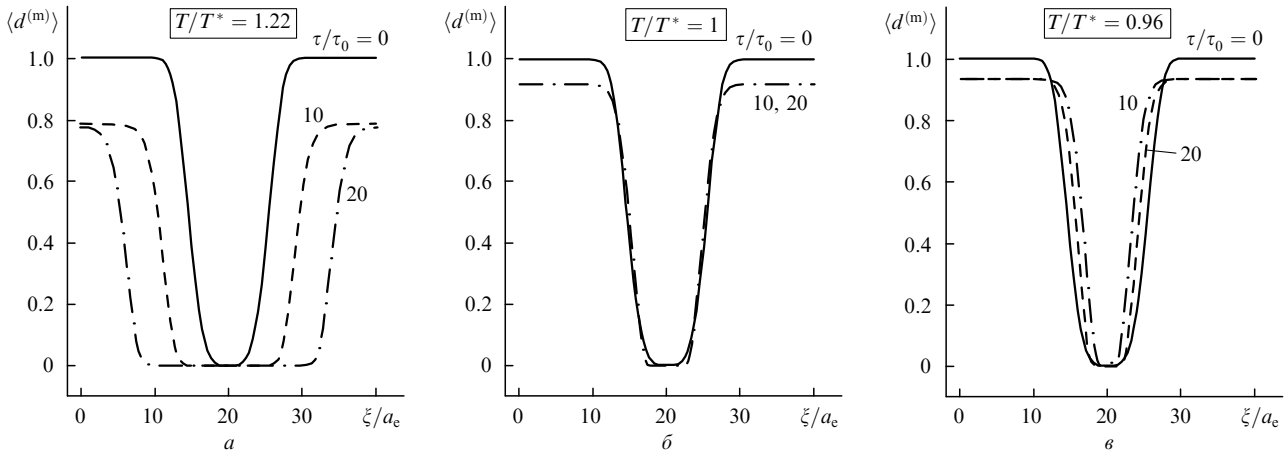
Второй максимум на потенциальной кривой рис.5,а исчезает при температуре $T = T_m$, соответствующей одновременному выполнению условий

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \langle d^{(m)} \rangle} U(\langle d^{(m)} \rangle, T_m) &= 0, \\ \frac{\partial^2}{\partial \langle d^{(m)} \rangle^2} U(\langle d^{(m)} \rangle, T_m) &= 0. \end{aligned} \quad (29)$$

Нормированную расчетную зависимость $T_m(\gamma)$ иллюстрирует рис.5,б. Легко убедиться, что $T_m > T^*$. Остановимся теперь на ситуации, когда $T^* \neq T < T_m$ и граница раздела фаз подвижна. По-прежнему будем считать, что $\langle d^{(m)} \rangle(y)|_{y \rightarrow -\infty} = 0$ и $\langle d^{(m)} \rangle(y)|_{y \rightarrow +\infty} = \langle d^{(m)} \rangle_r$, а границу раздела будем описывать профилем волны переключения фаз $\langle d^{(m)} \rangle(y, t) = \langle d^{(m)} \rangle(\xi)$, движущейся вдоль оси Y с постоянной скоростью v . Здесь $\xi = (y - vt)$ – бегущая координата. Проведя аналогичные преобразования и воспользовавшись (13), получим соотношение

$$\begin{aligned} a_c^2 \frac{d^2 \langle d^{(m)} \rangle}{d\xi^2} &= E_b(T) \\ &\times \operatorname{arctanh} \left(\langle d^{(m)} \rangle - \tau_d v \frac{d\langle d^{(m)} \rangle}{d\xi} \right) + \gamma - \langle d^{(m)} \rangle, \end{aligned} \quad (30)$$

которое при $v = 0$ переходит в (23). Это значит, что при $T = T^*$ волна переключения фаз неподвижна. Поскольку в рамках механической аналогии член, пропорциональный v , отвечает за нелинейное трение, при $T \neq T^*$ сосу-


 Рис.6. Временная эволюция начальной флуктуации $\langle d^{(m)} \rangle$ при $T/T^* = 1.22$ (а), 1.00 (б) и 0.96 (в); $g = 1.25$.

существование фаз невозможно. Этот вывод согласуется с тем, что для развития волны переключения в распределенных системах необходима начальная затравка – флуктуация с характерными размерами порядка ширины области перехода [97, 98]. Скорость v зависит от величины управляющего параметра (в нашем случае это T). В критической точке $v = 0$ и меняет знак.

Уравнение (30) решалось с использованием метода Рунге–Кутты 6-го порядка с переменным шагом по времени t . Рассматривалась эволюция начального состояния $\langle d^{(m)} \rangle = 0$ с гипергауссовым возмущением. Рис.6,а иллюстрирует эволюцию широкой (по сравнению с Δy) начальной флуктуации при $T > T^*$. Система быстро переходит в метастабильное состояние $\langle d^{(m)} \rangle = \langle d^{(m)} \rangle_r$, и лишь затем формируется волна переключения к фазе $\langle d^{(m)} \rangle = 0$, причем с ростом T величина $\langle d^{(m)} \rangle_r$ падает. При $T = T^*$ (рис.6,б) и $T < T^*$ (рис.6,в) сначала также происходит переход в метастабильное состояние $\langle d^{(m)} \rangle = \langle d^{(m)} \rangle_r$, после чего флуктуация либо «замораживается» ($v = 0$, стационарная граница раздела фаз), либо «рассасывается» ($v < 0$). Узкая флуктуация рассасывается даже при $T > T^*$ (рис.7,а). При $T > T_m$ система из состояния $\langle d^{(m)} \rangle \neq 0$ сразу переходит в состояние $\langle d^{(m)} \rangle = 0$ (рис.7,б). Скорость v линейно зависит от T/T^* , меняя знак в точке $T = T^*$ (рис.7,в).

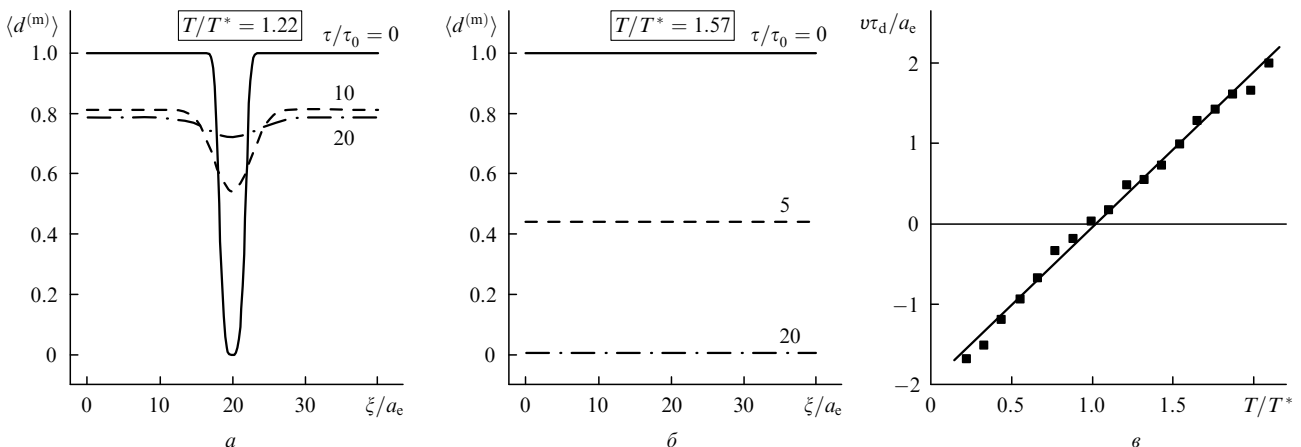
Таким образом, если при $T = T^*$ две фазы могут сосуществовать (рис.7,б), то при $T < T^*$ ($v < 0$) затравка страйп-структуры может расширяться за счет вовлечения дырок из областей с еще не установившимся поряд-

ком (рис.6,а). Считая, что магнитные дипольные моменты $d^{(m)}$ в страйпе упорядочены для $\sim 10^2$ дырок и $\tau_d \sim 10^{-12} - 10^{-13}$ с, получим оценку для времени распространения волны переключения фаз $\tau_v \sim 0.1 - 1.0$ нс. Однако для того, чтобы такая волна начала распространяться, затравка страйпа должна иметь размеры, превышающие Δy (см. рис.6,а и 7,а). Рис.8,а иллюстрирует расчетную зависимость $\Delta y(T/T^*)$ (по уровню 0.9 от высоты фронта) при $g = 1.25$ (сплошная кривая) и 0.56 (штриховая кривая). Определив поэтому с учетом расчетных значений Δy минимальный размер затравки (фактически – число дырок с упорядоченными $d^{(m)}$) как $\Delta y \sim 4 - 6$, получим вероятностную оценку времени τ_f формирования соответствующей $\tau_f \sim 1.0$ нс $\gg \tau_d$ начальной флуктуации:

$$\tau_f = \frac{\tau_d}{(1 - \langle d^{(m)} \rangle_r)^{N-1}}. \quad (31)$$

Отсюда следует, что при $T/T^* \sim 1.25$, когда $(1 - \langle d^{(m)} \rangle_r) \sim 0.25$ (см. рис.8,б), $\tau_f \sim 1.0$ нс $\gg \tau_d$.

Итак, в настоящем разделе мы описали процесс самоорганизации носителей заряда в ВТСП за счет магнитно-дипольного взаимодействия. Было показано, что при разумном значении энергии $G_0 \sim 100$ мэВ экспериментальным данным соответствуют: предельный уровень легирования ВТСП $\langle n \rangle_{\max} \sim 1.125$, температура формирования страйп-структур $T^* \sim 150$ К, их пространственный период, наличие выраженного линейного участка $T^*(\langle n \rangle)$ при $\langle n \rangle < \langle n \rangle_{\max}$, ширина энергетической щели и темпе-


 Рис.7. «Рассасывание» узкой флуктуации $\langle d^{(m)} \rangle$ при $T/T^* = 1.22$ (а), сценарий фазового перехода при $T > T_m$ (б) и нормированная зависимость скорости v от T/T^* (в); $g = 1.25$.

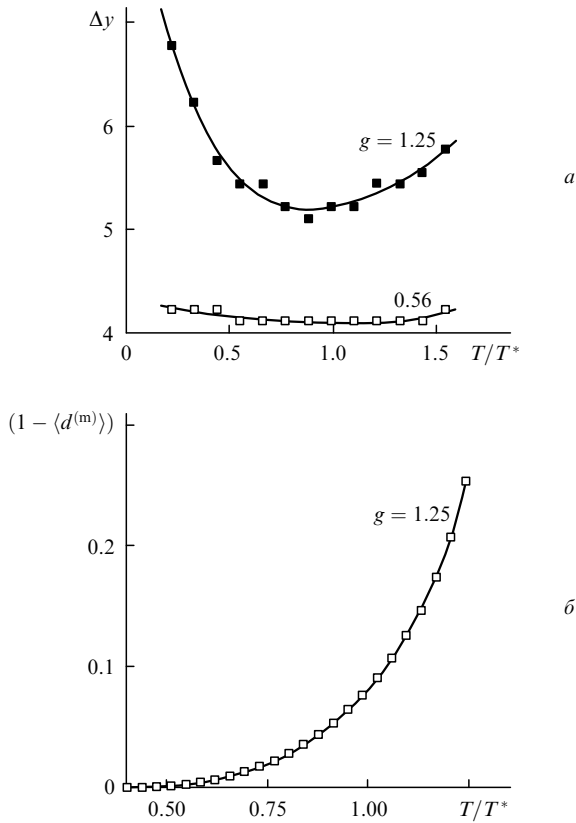


Рис.8. Температурные зависимости ширины области перехода Δy при $g = 1.25$ и 0.56 (а), а также зависимость $(1 - \langle d \rangle)$ от T/T^* при $g = 1.25$ (б).

ратурная зависимость последней. Однако еще более важным выводом является то, что, несмотря на быстрое разрушение сверхпроводимости при ударном возбуждении исходно сверхпроводящих ВТСП-образцов до $T > T_c$, в их купратных плоскостях еще очень долго (~ 1 нс и более, см. выше) могут существовать метастабильные страйп-структуры. И именно поэтому в течение всего этого времени исследуемый образец вполне может «помнить» о своем начальном состоянии.

3. Неравновесная термодинамика ВТСП при высоком уровне возбуждения

3.1. Кинетические уравнения

Обосновав метастабильный характер существующих в ВТСП страйп-структур, перейдем к построению упрощенной системы кинетических уравнений, описывающих эволюцию термодинамических параметров системы при оптическом возбуждении.

При «замороженной» энергетической щели спектр одноэлектронных состояний ВТСП похож на спектр состояний собственного узкозонного полупроводника. Поэтому, следуя [59–61], удобно ввести две зоны (аналоги валентной зоны и зоны проводимости в полупроводнике), разделенные энергетической щелью шириной Δ , и уже в них рассмотреть эволюцию концентраций $N_{e,h}$ свободных «электронов» (квазичастичные состояния над щелью) и «дырок» (аналогичные состояния, но под щелью) соответственно. Если предположить теперь, что процессы внутризонной термализации (внутризонной e–e-релаксации) протекают с бесконечно большой

скоростью, распределения электронов и дырок по энергии $E_{e,h}$ в любой момент времени t можно считать квазиравновесными. При этом описание эволюции системы становится параметрическим и сводится к введению зависимостей мгновенных значений $E_{e,h}^F$ и $T_{e,h}$ от времени t . Поэтому во всех последующих расчетах мгновенные значения $E_{e,h}^F$ и $T_{e,h}$ мы и будем в каждый момент времени t подставлять в стандартную функцию распределения Ферми–Дирака $f_F(E_{e,h}; E_{e,h}^F, T_{e,h})$. Концентрации свободных электронов и дырок $N_{e,h}$ и плотность запасенной в двух подсистемах энергии (запас «тепла») $Q_{e,h}$ определяются при этом как

$$N_{e,h} = N_c \int_0^\infty f_F(E_{e,h}; E_{e,h}^F, T_{e,h}) g_{e,h}(E_{e,h}; \Delta) dE_{e,h}, \quad (32)$$

$$Q_{e,h} = N_e \langle E_{e,h} \rangle = N_e \int_0^\infty E_{e,h} f_F(E_{e,h}; E_{e,h}^F, T_{e,h}) g_{e,h}(E_{e,h}; \Delta) dE_{e,h}. \quad (33)$$

Здесь N_c – плотность ячеек; $g_{e,h}(E_{e,h}; \Delta)$ – функции, описывающие плотности электронных состояний при фиксированной ширине щели Δ ; $\langle E_{e,h} \rangle$ – средние энергии свободного электрона и дырки. С учетом симметрии задачи и парности интересующих нас процессов (фотогенерация свободных электронов и дырок и их рекомбинация) мы будем считать, что в каждый момент времени t состояния обеих подсистем идентичны и

$$g(E; \Delta) \equiv g_e(E; \Delta) = g_h(E; \Delta), \quad (34)$$

$$E^F \equiv E_e^F = E_h^F, \quad T_e = T_h, \quad \langle E_e \rangle = \langle E_h \rangle, \quad N_e = N_h, \quad Q_e = Q_h.$$

С учетом этого нам будет достаточно выписать кинетические уравнения для N_e и Q_e .

Первое из этих уравнений можно записать, полагая процессы фотогенерации и рекомбинации свободных носителей строго парными. Принимая это во внимание, имеем

$$\frac{dN_e}{dt} = [1 - f_F(\langle E_e \rangle; E^F, T_e)] P_p(t) \frac{N_c \hbar \omega}{Q_e} - \gamma_{eh}^{(r)} (N_e^2 - N_s^2). \quad (35)$$

Здесь $P_p(t)$ – мгновенная плотность потока поглощенных квантов накачки с энергией $\hbar \omega$; $\gamma_{eh}^{(r)} = \gamma_{ehp}^{(r)} + \gamma_{ehc}^{(r)}$ – константа безызлучательной парной рекомбинации, определенная через сумму констант, описывающих трехчастичные процессы с участием фонона $\gamma_{ehp}^{(r)}$ и еще одного электрона (дырки) $\gamma_{ehc}^{(r)}$ и зависящих от Δ , E^F , $T_{e,p}$, N_e и других параметров [99]; $N_s = N_c \int_0^\infty f_F(E_e; E_0^F, T_p) g(E_e; \Delta) dE_e$ – квазиравновесная концентрация электронов и дырок при $E^F = E_0^F$ и $T_e = T_p \neq T_0$. Форма записи члена, описывающего генерацию свободных носителей в правой части (35), в явном виде учитывает то, что при поглощении кванта света в зоне проводимости появляется горячий электрон, мгновенное межзонное e–e-рассеяние которого рождает $\frac{1}{2} \hbar \omega / \langle E_e \rangle$ термализованных электронов и дырок с $\langle E_e \rangle = Q_e / N_e$. С учетом конкуренции межзонного и внутризонного e–e-рассеяния значение множителя $[1 - f_F(\langle E_e \rangle; E^F, T_e)]$ меняется от $1/2$ (при $E^F \gg \Delta/2$) до 1 (при $E^F \ll \Delta/2$).

Начальное (E') и конечное ($E'' \simeq E' + 2\langle E_c \rangle$) энергетические состояния третьей квазичастицы, участвующей в процессе парной рекомбинации, не могут быть полностью пустым и занятым соответственно. При вырождении (когда $E^F \geq \Delta/2$ и уровень Ферми «входит» в зону проводимости) за счет наличия пика в распределении плотности состояний $g(E_c)$ в ВТСП в окрестности точки $E_c = \Delta/2$ это условие снижает концентрацию квазичастиц, которые могут быть задействованы в рекомбинации. Причем чем больше ширина щели Δ , чем выше степень вырождения и чем ниже T_c , тем резче этот эффект должен быть выражен. В дальнейшем его роль учитывалась в рамках выражения

$$\gamma_{\text{ehc}}^{(r)} \simeq \tilde{\gamma}_{\text{ehc}}^{(r)} N'_e \quad (36)$$

где $\tilde{\gamma}_{\text{ehc}}^{(r)}$ – константа рекомбинации, не зависящая от концентрации третьих квазичастиц, и

$$N'_e \simeq N_c \int_0^\infty dE' f_F(E'; E^F, T_e) [1 - f_F(E' + 2\langle E_c \rangle; E^F, T_e)] \times g(E') g(E' + 2\langle E_c \rangle) \leq N_c. \quad (37)$$

Если же роль третьей частицы, участвующей в рекомбинации, играет акустический фонон, то скорость соответствующего процесса (константа $\gamma_{\text{ehp}}^{(r)}$) с ростом общей энергии рекомбинирующих частиц $2\langle E_c \rangle$ также должна падать, поскольку фононы с максимальной энергией E_{max} уже не смогут забирать эту энергию. В изотропном приближении для модельной дисперсионной зависимости [99]

$$E_{\text{ph}} \simeq E_{\text{max}} \sin \frac{\pi K}{2 K_{\text{Br}}} \quad (38)$$

это приводит к появлению в константе рекомбинации $\gamma_{\text{ehp}}^{(r)}$ корректирующего множителя, что можно учесть заменной

$$\gamma_{\text{ehp}}^{(r)} \rightarrow \gamma_{\text{ehp}}^{(r)} (\langle E_c \rangle) = \tilde{\gamma}_{\text{ehp}}^{(r)} \int_0^{E_{\text{max}}} dE_{\text{ph}} F(E_{\text{ph}}; T_p) G(E_{\text{ph}}) G(E_{\text{ph}} + 2\langle E_c \rangle), \quad (39)$$

где $\tilde{\gamma}_{\text{ehp}}^{(r)}$ – константа, не зависящая от T_p и $\langle E_c \rangle$; E_{ph} и K – энергия и импульс фонона; E_{max} – энергия фонона на краю зоны Бриллюэна ($K = K_{\text{Br}}$);

$$F(E_{\text{ph}}; T_p) = \left[\exp \left(\frac{E_{\text{ph}}}{k_B T_p} \right) - 1 \right]^{-1} \quad (40)$$

– функция распределения;

$$G(E_{\text{ph}}) = \begin{cases} (E_{\text{max}}^2 - E_{\text{ph}}^2)^{-1} \arcsin \left(\frac{E_{\text{ph}}}{E_{\text{max}}} \right) & \text{при } E_{\text{ph}} \leq E_{\text{max}}, \\ 0 & \text{при } E_{\text{ph}} > E_{\text{max}} \end{cases} \quad (41)$$

– плотность фононных состояний.

Кинетическое уравнение для Q_e можно построить, записав выражение для него в следующем виде:

$$Q_e = Q_e(N_e, \langle E_c \rangle) = N_e \langle E_c \rangle =$$

$$= N_e \int_0^\infty E_c f_F(E_c; E^F, T_e) g(E_c; \Delta) dE_c. \quad (42)$$

Варьируя теперь (42) по N_e и $\langle E_c \rangle$ (т.е. считая эти переменные независимыми), получаем

$$\begin{aligned} \frac{dQ_e}{dt} &= \langle E_c \rangle \frac{dN_e}{dt} \Big|_{\langle E_c \rangle = \text{const}} + N_e \frac{d\langle E_c \rangle}{dt} \Big|_{N_e = \text{const}} \\ &= \frac{Q_e}{N_e} \frac{dN_e}{dt} - N_e \gamma_{\text{ep}}^{(Q)} [\langle E_c(E^F, T_e) \rangle - \langle E_c(E^F, T_p) \rangle] \\ &= P_p(t) \frac{\hbar\omega}{2} - \frac{Q_e}{N_e} \gamma_{\text{ehp}}^{(r)} (N_e^2 - N_s^2) - \gamma_{\text{ep}}^{(Q)} \left(Q_e - \frac{N_e}{N_{\text{es}}} Q_{\text{es}} \right). \end{aligned} \quad (43)$$

Здесь в серии преобразований использовано релаксационное приближение

$$\begin{aligned} \frac{d\langle E_c \rangle}{dt} \Big|_{N_e = \text{const}} &= -\gamma_{\text{ep}}^{(Q)} [\langle E_c(E^F, T_e) \rangle - \langle E_c(E^F, T_p) \rangle] \\ &= -\gamma_{\text{ep}}^{(Q)} \left(\frac{Q_e}{N_e} - \frac{Q_{\text{es}}}{N_{\text{es}}} \right), \end{aligned} \quad (44)$$

где $\gamma_{\text{ep}}^{(Q)}$ – скорость релаксации $\langle E_c \rangle$ (по сути, T_e), которая в рамках двухтемпературной модели [38] выражается через удельные теплоемкости $c_{e,p}$ электронной и фононной подсистем ВТСП образца, зависящих от $T_{e,p}$;

$$Q_{\text{es}} = N_{\text{es}} \int_0^\infty E_c f_F(E_c; E^F, T_p) g(E_c; \Delta) dE_c,$$

$$N_{\text{es}} = N_e \int_0^\infty f_F(E_c; E^F, T_p) g(E_c; \Delta) dE_c$$

– плотность энергии и концентрация свободных электронов при равновесной температуре $T_e = T_p$, но неравновесном положении $E^F \neq E_0^F$ уровня Ферми. Первый член в правой части (44) учитывает приход энергии в электронную подсистему за счет поглощения накачки, второй – уход энергии вследствие рекомбинации с участием фононов и, наконец, третий – остывание электронной подсистемы за счет передачи кинетической энергии свободных носителей в фононную подсистему. Уравнение (44) записано в предположении, что вероятность процесса рекомбинации не зависит от энергии квазичастиц.

Обмен энергией с термостатом, роль которого играет подложка с температурой T_s , описывается кинетическим уравнением для плотности энергии (запаса тепла) Q_p в фононной подсистеме. С учетом баланса прихода и ухода, а также принципа детального равновесия в релаксационном приближении это уравнение приобретает вид

$$\begin{aligned} \frac{dQ_p}{dt} &= 2 \frac{Q_e}{N_e} \gamma_{\text{ehp}}^{(r)} (N_e^2 - N_s^2) \\ &+ 2\gamma_{\text{ep}}^{(Q)} (Q_e - Q_{\text{es}}) - \gamma_{\text{ps}}^{(Q)} (Q_p - Q_{\text{ps}}). \end{aligned} \quad (45)$$

Здесь использовано обозначение $Q_{p,ps} = c_p T_{p,ps}$, где T_p и $T_{ps} = T_s$ – текущая и равновесная температуры фононной подсистемы. При расчете можно считать, что за счет огромной теплоемкости термостата (подложки) $T_s \equiv T_0$. Отметим, что константа (скорость) релаксации избытка

тепла $\gamma_{ps}^{(Q)}$ в (45) может зависеть от T_p и T_s , поскольку от температуры зависит удельная теплоемкость c_p фоновой подсистемы.

3.2. Кинетика термодинамических параметров при фемтосекундной накачке

В численных расчетах [59–61] считалось, что начальные условия определяются значениями $E^F(t=0) = E_0^F = 0$ и $T_e(t=0) = T_0$ через соотношения

$$N_e(t=0) = N_c \int_0^\infty f_F(E_e; E^F = 0, T_e = T_0) g(E_e; \Delta) dE_e, \quad (46)$$

$$Q_c(t=0) = N_c \int_0^\infty E_e f_F(E_e; E^F = 0, T_e = T_0) \times g(E_e; \Delta) dE_e, \quad (47)$$

$$Q_p(t=0) = c_p T_0. \quad (48)$$

Ширина щели Δ в спектре состояний ВТСП полагалась константой, зависящей только от начальной температуры T_0 и температуры перехода в сверхпроводящее состояние T_c (см. разд.2):

$$\Delta = \Delta(T_0) \equiv \begin{cases} 3.12k_B T_c \left(1 - \frac{T_0}{T_c}\right)^{1/2} & \text{при } T_0 \leq T_c, \\ 0 & \text{при } T_0 > T_c. \end{cases} \quad (49)$$

Выражение (49) отвечает пределу так называемой слабой связи в теории БКШ. Мгновенные значения $E^F(t)$ и $T_e(t)$ определялись решением системы интегральных уравнений

$$N_e(t \neq 0) = N_c \int_0^\infty f_F(E_e; E^F, T_e) g(E_e; \Delta) dE_e, \quad (50)$$

$$Q_c(t \neq 0) = N_c \int_0^\infty E_e f_F(E_e; E^F, T_e) g(E_e; \Delta) dE_e. \quad (51)$$

В диапазоне $T_0 > T_c$ распределение плотности электронных состояний $g(E_e; \Delta \equiv 0)$ рассчитывалось с использованием стандартного выражения [93]

$$g(E_e; \Delta \equiv 0) = \frac{1}{4\pi^3} \iint_{E_e = \text{const}} \frac{dS}{|\nabla_k E_e(\mathbf{k})|} \quad (52)$$

с учетом известных из литературы данных о $E_e(\mathbf{k}_e)$, т.е. о «реальной» (рассчитанной методом псевдопотенциала) зонной структуре La_2CuO_4 [100] (рис.9,а). Здесь $E_e(\mathbf{k}_e)$ описывает форму зоны проводимости La_2CuO_4 , т.е. зависимость электронной энергии E_e от квазиимпульса \mathbf{k}_e , а интеграл (52) берется по поверхности постоянной энергии $E_e = \text{const}$. При интегрировании данные работы [100] по описанной в [66] методике с учетом симметрии интерполировались на первую зону Бриллюэна. Как и ожидалось, расчетная зависимость $g(E_e; \Delta \equiv 0)$ имела выраженный пик плотности состояний в окрестности точки $E_e = 0$. Далее в диапазоне $|E_e - E_0^F| \leq 1$ эВ эта зависимость с точностью 0.5% аппроксимировалась гладкой аналитической функцией. При $T_0 \leq T_c$ в полученное

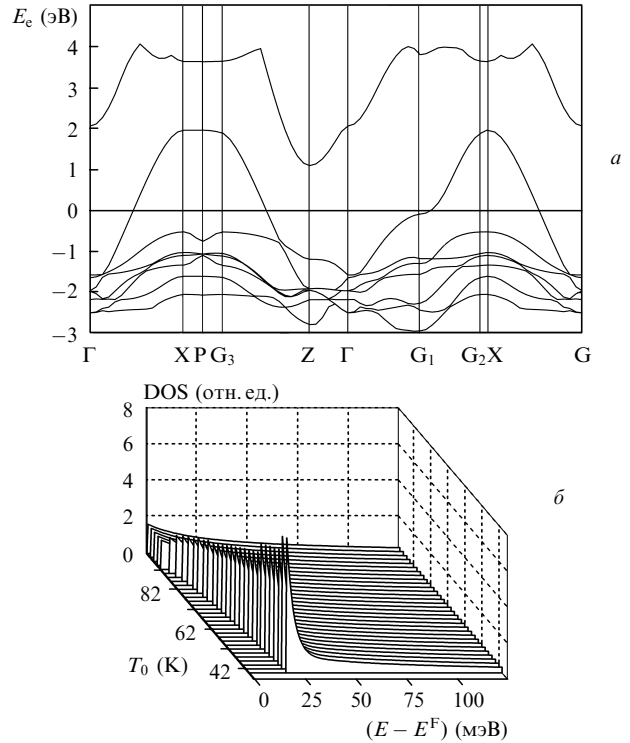


Рис.9. Зонная структура La_2CuO_4 при комнатной температуре [100] (а) и распределение плотности электронных состояний $\text{DOS} = g(E_e; \Delta)$ в спектре ВТСП при изменении начальной температуры T_0 (б).

распределение $g(E_e; \Delta \equiv 0)$ принудительно вводилась щель s-симметрии, т.е. состояния с энергией E_e в слое шириной $2\Delta(T_0)$ в окрестности E_0^F перераспределялись по зоне Бриллюэна в соответствии с выражением

$$g(E_e; \Delta) = \quad (53)$$

$$\begin{cases} 0 & \text{при } E_e < \Delta, \\ g(E_e; \Delta \equiv 0) + \frac{1}{k_B T_0} \exp\left(-\frac{E_e}{k_B T_0}\right) \int_0^{\Delta(T_0)} g(E_e; \Delta \equiv 0) dE_e & \text{при } E_e \geq \Delta. \end{cases}$$

Эволюцию расчетного распределения плотности электронных состояний $\text{DOS} = g(E_e; \Delta)$ при изменении T_0 иллюстрирует рис.9,б, на котором хорошо виден момент появления энергетической щели в точке $T_0 = T_c$.

Система кинетических уравнений (35), (43), (45) решалась методом Рунге–Кутты 4-го порядка. Значения параметров соответствовали стандартным условиям большинства реальных экспериментов. Считалось, что ВТСП-пленка толщиной ~ 200 нм поглощает 30% полной энергии (4×10^{-7} Дж) импульса накачки лазера на титан-сапфире ($\lambda = 800$ нм) длительностью 30 фс. Диаметр пятна фокусировки полагался равным 150 мкм, а остальные параметры (температура перехода в сверхпроводящее состояние $T_c = 90$ К, теплоемкость $c_p = 0.9$ Дж·см $^{-3}$ ·К $^{-1}$, скорость ухода тепла в подложку $\gamma_{ps}^{(Q)} = 5 \times 10^{-3}$ пс $^{-1}$, $E_{\text{max}} = 15$ мэВ) примерно соответствовали параметрам пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ на подложке из SrTiO_3 . Два оставшихся свободными параметра ($\tilde{\gamma}_{\text{ehc}}^{(r)}$ и $\tilde{\gamma}_{\text{ehp}}^{(r)}$) варьировались так, чтобы расчетное время релаксации τ_r' нелинейного отклика (см. разд.4) при $T_0 = 100$ и 40 К составляло ~ 0.3 и 1.5 пс соответственно, что близко к данным реальных экспериментов.

На рис.10 показана трансформация кинетик сдвига положения уровня Ферми $\Delta E^F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$, электронной температуры $\Delta T_e(t) = T_e(t) - T_0$, полной концентра-

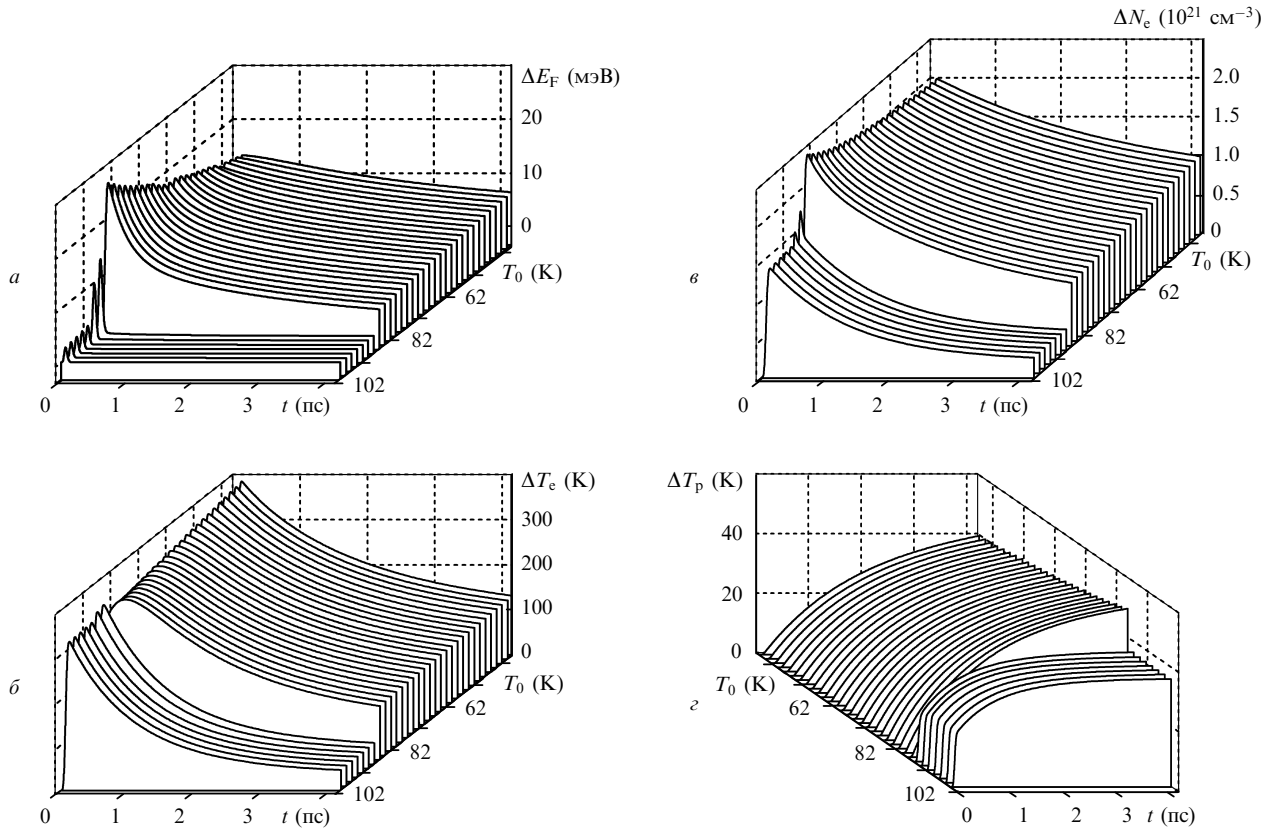


Рис. 10. Трансформация характера кинетик $\Delta E_F^F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$ (а), $\Delta T_c(t) = T_c(t) - T_0$ (б), $\Delta N_c(t) = N_c(t) - N_0$ (в) и $\Delta T_p(t) = T_p(t) - T_0$ (г) при изменении T_0 ВТСП-пленки. Образец возбуждается импульсом длительностью $\tau_{\text{pulse}} = 30$ фс.

ции свободных носителей в отщепленной части зоны проводимости $\Delta N_c(t) = N_c(t) - N_0$ и температуры решетки $\Delta T_p(t) = T_p(t) - T_0$ при изменении начальной температуры T_0 ВТСП-пленки. Видно, что поглощение накачки приводит к кардинальным изменениям кинетик термодинамических параметров при вариациях T_0 в окрестности точки $T_0 \simeq T_c$ (точка «открытия» энергетической щели). Причем характер изменения кинетик констант парной рекомбинации $\gamma_{\text{che}}^{(r)}(t)$ и $\gamma_{\text{ehp}}^{(r)}(t)$ при вариациях T_0 [59] доказывает принципиальную роль именно этих процессов.

3.3. Кинетика термодинамических параметров при пикосекундной накачке

Моделирование кинетик термодинамических параметров ВТСП-пленки при пикосекундном возбуждении [61] проводилось аналогичным образом. При решении системы кинетических уравнений (35), (43), (45) длительность возбуждающего импульса τ_{pulse} той же энергии (4×10^{-7} Дж) считалась равной 20 пс, а все остальные управляющие параметры не менялись. При этом энергетическая щель в спектре состояний по-прежнему считалась замороженной, а значения констант безызлучательной трехчастичной рекомбинации $\tilde{\gamma}_{\text{che}}^{(r)}$ и $\tilde{\gamma}_{\text{ehp}}^{(r)}$ в (36) и (39) заимствовались из результатов описанного выше расчета.

Рис. 11 иллюстрирует трансформацию характера расчетной кинетики мгновенного сдвига уровня Ферми $\Delta E_F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$ относительно его исходного положения, а также скачка электронной температуры $\Delta T_c(t) = T_c(t) - T_0$ ВТСП-пленки при вариациях ее начальной температуры. Легко убедиться, что даже в условиях относительно медленного пикосекундного возбуждения образца амплитуда мгновенных отклонений его термодинами-

ческих параметров от равновесных значений резко растет при открытии в спектре состояний энергетической щели (прохождение точки $T_0 \simeq T_c$).

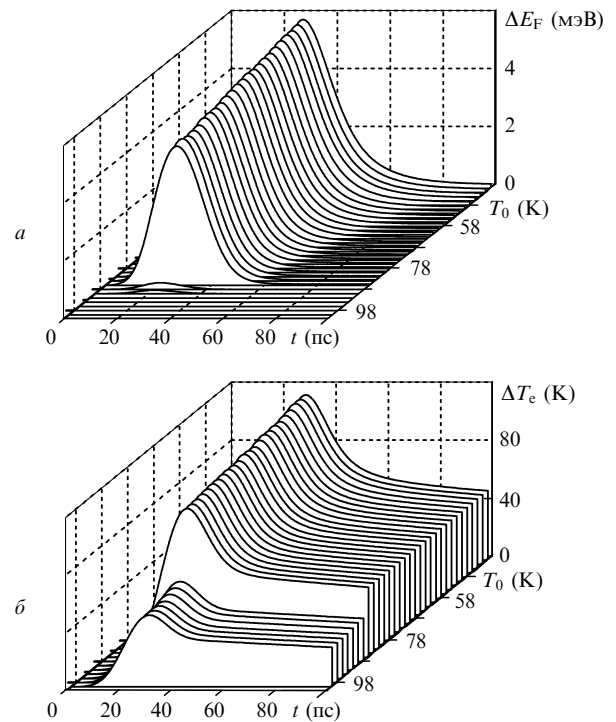


Рис. 11. Трансформация характера кинетик $\Delta E_F^F(t) = E_c^F(t) - E_0^F$ (а), $\Delta T_c(t) = T_c(t) - T_0$ (б) при изменении T_0 ВТСП-пленки. Возбуждение импульсом длительностью $\tau_{\text{pulse}} = 20$ пс.

4. Нелинейный отклик ВТСП

4.1. Электронная часть нелинейного отклика при однофотонном зондировании

Сначала мы остановимся на нелинейном отклике ВТСП-пленки в классической версии метода пробного импульса с однофотонным зондированием возбужденного состояния пробным импульсом на длине волны λ , т. е. рассмотрим ситуацию, в которой изучается кинетика изменений коэффициентов отражения (ΔR) и пропускания (ΔT) образца за счет поглощения им импульса накачки. При этом, следуя [59, 61], мы будем полагать, что нелинейный отклик ВТСП-пленки определяется изменением $\delta\varepsilon(\lambda, T_0)$ ее начальной комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon_0 = \varepsilon(\lambda, T_0)$, обусловленным отклонением термодинамических параметров E_c^F и T_c от своих равновесных значений. Поскольку коэффициент отражения $R(\lambda, T_0)$ на границе раздела воздух–ВТСП-пленка определяется диэлектрической проницаемостью ε последней через выражение

$$R(\lambda, T_0) = \left[\frac{\varepsilon^{1/2}(\lambda, T_0) - 1}{\varepsilon^{1/2}(\lambda, T_0) + 1} \right]^2, \quad (54)$$

варьируя его подстановкой $R(\lambda, T_0) = R_0(\lambda, T_0) + \delta R(\lambda, T_0)$ и $\varepsilon(\lambda, T_0) = \varepsilon_0(\lambda, T_0) + \delta\varepsilon(\lambda, T_0)$ и ограничиваясь первой поправкой к начальному коэффициенту отражения $R_0(\lambda, T_0)$ по $\delta\varepsilon(\lambda, T_0)$, получим

$$\delta R(\lambda, T_0) = 2R_0(\lambda, T_0) \frac{\delta\varepsilon(\lambda, T_0)}{\varepsilon_0^{1/2}(\lambda, T_0)[\varepsilon_0(\lambda, T_0) - 1]}. \quad (55)$$

Собственно, именно такой подход всегда и используется при трактовке данных любого реального эксперимента. Однако, в отличие от работ [18, 19, 21, 27, 30–34, 48, 52, 53], где на этапе зондирования учитывался процесс поглощения на свободных (возбужденных импульсом накачки) носителях, расчет $\delta\varepsilon$ мы проведем с учетом электронной части мгновенного линейного отклика ε ВТСП-пленки, обусловленного только межзонными переходами. В принципе, примерно такую же процедуру пытались реализовать ранее авторы [20, 22, 47], однако, как будет ясно из дальнейшего, используемые нами модели будут намного точнее и реалистичнее.

Дальнейший расчет величины $\delta\varepsilon(\lambda, T_0)$ в двух интересующих нас спектральных диапазонах $\lambda \sim 800$ и $620 - 680$ нм проводился на базе стандартного выражения

$$\varepsilon \sim \sum_{i \neq i'} \iint \frac{|d_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)|^2 n_i(\mathbf{k}_e) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}'_e)]}{\omega - \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e) + i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)} d\mathbf{k}_e d\mathbf{k}'_e. \quad (56)$$

Здесь \mathbf{k}_e – квазиимпульс электрона; индексы i и i' нумеруют зоны электронных состояний, задействованных в переходе $(i, \mathbf{k}_e) \rightarrow (i', \mathbf{k}'_e)$ с дипольным моментом $d_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)$; $n_i(\mathbf{k}_e)$ – число заполнения состояния (i, \mathbf{k}_e) , которое определяется распределением Ферми–Дирака; ω – частота зондирования; $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)$ – резонансная частота перехода $(i, \mathbf{k}_e) \rightarrow (i', \mathbf{k}'_e)$; $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)$ – скорость релаксации межзонной поляризации. Интегрирование по \mathbf{k}_e и \mathbf{k}'_e проводится в пределах первой зоны Бриллюэна, а в суммировании по индексам i и i' задействованы все зоны разрешенных электронных состояний.

В случае однофотонного зондирования с учетом малости фотонного импульса по сравнению с \mathbf{k}_e переходы

$(i, \mathbf{k}_e) \rightarrow (i', \mathbf{k}'_e)$ можно считать прямыми ($\mathbf{k}_e = \mathbf{k}'_e$) и перейти в (56) к однократному интегрированию по \mathbf{k}_e , используя обозначения $d_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e) = d_{i,i'}(\mathbf{k}_e)$, $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e) = \Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e)$ и $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e) = \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e)$. После этого частоты резонансов в (56) будут определяться стандартными выражениями $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e) = E_{i'}(\mathbf{k}_e) - E_i(\mathbf{k}_e)$, где $E_i(\mathbf{k}_e)$ – энергия электрона в состоянии (i, \mathbf{k}_e) , нормированная на постоянную Планка.

Как и в [64, 67], при проведении численных расчетов считалось, что $d_{i,i'}(\mathbf{k}_e) = d$ и $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e) = \Gamma = 5 \times 10^{12} \text{ с}^{-1}$ являются константами, не зависящими от i, i' и \mathbf{k}_e . Частоты $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e)$ находились интерполяцией тех же данных из работы [100] о зонной структуре La_2CuO_4 при комнатной температуре на первую зону Бриллюэна с учетом требований симметрии и периодичности [66]. Охлаждение до температур $T_0 \leq T_c$ моделировалось принудительным введением в полученный спектр состояний замороженной энергетической щели (49), т. е. заменой $E_c(\mathbf{k}_e) \rightarrow E_0^F \pm \{[E_c(\mathbf{k}_e) - E_0^F]^2 + \Delta(T_0)^2\}^{1/2}$ при $E_c(\mathbf{k}_e) > E_0^F$ и $E_c(\mathbf{k}_e) < E_0^F$ соответственно [59–61]. Вследствие этого плотность электронных состояний в окрестности уровня Ферми перераспределялась, что и имитировало фазовый переход. Обе описанные процедуры позволили включить в используемую модель реальный (т. е. известный из литературы) электронный спектр, кардинально уменьшив число подгоночных параметров. Интегрирование в выражении (56) проводилось по зонам состояний, попадающих в диапазон энергий $|E_c \pm E_0^F| \leq 2.5$ эВ, методом особых точек [101].

При расчете $\varepsilon_0(\lambda, T_0)$ (в отсутствие накачки) числа заполнения $n_i(\mathbf{k}_e)$ в (56) считались заданными распределением Ферми–Дирака $f_F(E_c; E_0^F, T_0)$. При фемтосекундном возбуждении ВТСП-пленки числа заполнения $n_i(\mathbf{k}_e)$ в каждый момент времени t определялись из распределения Ферми–Дирака $f_F(E_c; E_c^F, T_c)$ с мгновенными значениями термодинамических параметров $E_c^F(t)$ и $T_c(t)$, рассчитанными по методике, описанной в разд.3 (см. рис.10). При пикосекундном возбуждении $n_i(\mathbf{k}_e)$ полагались заданными распределением Ферми–Дирака со средними по длительности импульса накачки $\tau_{\text{pulse}} = 20$ пс значениями термодинамических параметров $\langle E_c^F \rangle_t$ и $\langle T_c \rangle_t$ (см. рис.11). Это моделировало ситуацию с совмещенными во времени моментами возбуждения-зондирования, что соответствует экспериментам, проведенным в технике спектроскопии насыщения.

4.2. Нелинейный отклик ВТСП при двухфотонном зондировании

В методах БН [9, 25, 26, 56, 64] и ВЧФС [10, 11, 37, 64, 67] состояние ВТСП-образца зондируется двумя фотонами за счет использования двух совмещенных во времени, но распространяющихся под углом (волновые векторы $\mathbf{k}_1 \neq \mathbf{k}_2$) пробных импульсов на длинах волн $\lambda_{1,2}$ (частоты $\omega_{1,2}$). В эксперименте измеряется зависимость эффективности самодифракции η (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 БН либо от длины волны λ пробных импульсов при совпадении их частот ($\omega_1 = \omega_2$, ВЧФС).

Нелинейный отклик в этом случае может быть описан в рамках модели, развитой в [9, 66]. В этой модели считается, что полная кубическая нелинейная восприимчивость образца χ включает в себя несколько составляющих:

$$\chi = \chi_r + \chi_{nr} + \chi_s + \chi_0. \quad (57)$$

Здесь χ_r и χ_{nr} – резонансная и нерезонансная (см. ниже) части электронного отклика, обусловленные межзонными переходами; χ_s – компонента восприимчивости, связанная с рассеянием на акустических фононах; χ_0 – константа, обусловленная погрешностями модели и, в первую очередь, конечностью области интегрирования по начальным и конечным электронным состояниям. Ограничение последней при расчетах неизбежно влечет за собой погрешности при описании нерезонансных процессов, обусловленных переходами в неучтенные зоны, поглощением на свободных носителях и т. д.

При расчете χ_{nr} можно воспользоваться аналогичным подходом [9, 66]. При этом в кубической нелинейной восприимчивости ВТСП-образца достаточно учесть вклады всех одно- и двухфотонных резонансных электронных переходов в реальном (рассчитанном по тем же данным [100]) спектре состояний и их реальные (рассчитанные по тем же данным о кинетике E_c^F и $T_{e,p}$) числа заполнения. При этом структура χ_{nr} приобретает стандартный [102] для нелинейной оптики и спектроскопии вид [9, 66]:

$$\chi_{nr} \propto P_0 \{K_+ P_+ + K_- P_-\}, \quad (58)$$

где

$$P_0 = \sum_{i,i'} \iint \frac{|d_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)|^2 n_i(\mathbf{k}_e) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}'_e)]}{[\omega_1 - \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e) - i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)]^2} d\mathbf{k}_e d\mathbf{k}'_e, \quad (59)$$

$$P_{\pm} =$$

$$\sum_{i,i'} \iint \frac{|d_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)|^2 n_i(\mathbf{k}_e) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}'_e)]}{[\omega_1 \pm \Delta\omega - \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e) \pm i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)]^2} d\mathbf{k}_e d\mathbf{k}'_e, \quad (60)$$

$$K_{\pm} = \sum_{i,i'} \iint \frac{|d_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)|^2 n_i(\mathbf{k}_e) [1 - n_{i'}(\mathbf{k}'_e)]}{\pm \Delta\omega + \Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e) \pm i\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)} d\mathbf{k}_e d\mathbf{k}'_e, \quad (61)$$

а все остальные обозначения полностью повторяют обозначения, использованные нами в предыдущем разделе.

При расчете χ_{nr} использовались те же, что и для однофотонного зондирования, приближения ($\mathbf{k}_e = \mathbf{k}'_e$, $d_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = d$ и $\Gamma_{i,i'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \Gamma = \text{const}$), процедуры определения $\Omega_{i,i'}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}'_e)$ и интегрирования, а также замена $E_c(\mathbf{k}_e) \rightarrow E_0^F \pm \{[E_c(\mathbf{k}_e) - E_0^F]^2 + \Delta(T_0)^2\}^{1/2}$ при $E_c(\mathbf{k}_e) > E_0^F$ и $E_c(\mathbf{k}_e) < E_0^F$, моделирующая охлаждение. В методе ВЧФС частотная расстройка полагалась равной нулю ($\Delta\omega \equiv 0$, $\lambda = \lambda_1 \equiv \lambda_2$), и менялась длина волны зондирования λ (частота $\omega = \omega_1 \equiv \omega_2$). В методе БН фиксировалась точка совмещения частот ($\lambda = \lambda_1 = \lambda_2 = \text{const}$ при $\Delta\omega = 0$), а частота ω_2 одной из компонент БН перестраивалась ($\Delta\omega \neq 0$). При фемтосекундном возбуждении-зондировании числа заполнения $n_i(\mathbf{k}_e)$ в каждый момент времени t считались определенными распределением Ферми–Дирака $f_F(E_c; E_c^F, T_c)$ с мгновенными значениями термодинамических параметров $E_c^F(t)$ и $T_c(t)$, рассчитанными по методике, описанной в разд.3 (см. рис.10,а,б). В случае пикосекундного возбуждения $n_i(\mathbf{k})$ полагались за-

данными распределением Ферми–Дирака со средними по длительности импульса накачки $\tau_{\text{pulse}} = 20$ пс значениями термодинамических параметров $\langle E_c^F \rangle_t$ и $\langle T_c \rangle_t$ (см. рис.11), что снова моделировало ситуацию с совмещенными во времени моментами возбуждения-зондирования.

Единственным подгоночным параметром при расчете χ_{nr} являлась скорость релаксации межзонной поляризации Γ , значение которой (150 см^{-1}) выбиралось исходя из соответствия расчетной ширины спектральных особенностей нелинейного отклика в методе ВЧФС данным реальным экспериментам с однофотонным зондированием [22, 47] и далее не варьировалось.

Использованное при расчете χ_{nr} приближение $\mathbf{k}_e = \mathbf{k}'_e$ приводит к потере вкладов, вносимых двухфотонными резонансными переходами $\mathbf{k}_e \rightarrow \mathbf{k}'_e$ между состояниями одной и той же зоны, разделенными энергетической щелью. С учетом условия $\mathbf{k}'_e = \mathbf{k}_e + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ (закон сохранения импульса) роль таких переходов будет существенна для состояний в узкой окрестности ($|\mathbf{k}_e| \leq |\mathbf{k}_e^F| - |\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2|$) поверхности Ферми при $\Delta\omega \sim 2\Delta(T_0)$. Именно это и отражает введенный нами для χ_{nr} термин нерезонансная часть электронного нелинейного отклика. Однако из-за резкого роста плотности состояний вблизи поверхности Ферми роль переходов такого типа в ВТСП может быть достаточно велика. Поэтому в нелинейный отклик (57) вводилась резонансная компонента χ_r , функция которой и сводилась к учету соответствующих вкладов. Величина χ_r рассчитывалась в рамках модели эффективной двухуровневой системы [103], т. е. анизотропия зонной структуры не учитывалась и интегрирование в (59)–(61) проводилось по энергии E_i с учетом условия $E_{i'} - E_i = 2\Delta(T_0)$ по аналогии с описанным в разд.2 и в [59] подходом. За счет этого вес χ_r по отношению к χ_{nr} не был однозначно определен и рассматривался далее как еще один подгоночный параметр. Его значение находилось из требования соответствия расчетной зависимости $\eta(\Delta\omega) \propto |\chi(\Delta\omega)|^2$ в методе БН результатам реального эксперимента [56] и считалось равным 0.075 при $T_0 = 90 \text{ К}$ и пропорциональным T_0^2 . Последнее учитывало рост амплитуды и крутизны пика плотности состояний с понижением T_0 . Отметим также, что при расчете χ_r скорость релаксации межзонной поляризации задавалась несколько меньшей ($\Gamma = 50 \text{ см}^{-1}$), чем для χ_{nr} (см. выше), поскольку лишь в этом случае спектральные особенности зависимости $\eta(\Delta\omega)$ соответствовали данным эксперимента [56]. В принципе ничего удивительного в этом нет, т. к. с приближением к краям зон разрешенных состояний скорость релаксационных процессов и должна снижаться [32, 38, 47].

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

$$\chi_s = -\frac{\chi_{ac}}{(\Delta\omega)^2 + (4\delta\omega)^2 + i4\delta\omega\Delta\omega}, \quad (62)$$

следующего из обычного соотношения для нелинейности типа Манделъштама–Бриллюэна [104], свернутого со спектрами двух возбуждающих звук импульсов с учетом малости τ_{pulse} по отношению к времени затухания последнего. При использовании фемтосекундных импульсов вкладом члена (62) в полный нелинейный отклик (57) можно было пренебречь. При моделировании данных пикосекундной спектроскопии считалось, что ширина спектра $\delta\omega = 1.5 \text{ см}^{-1}$, что отвечает условиям экспери-

ментов [25, 56]. Вследствие этого составляющая χ_s содержала один свободный параметр – комплексную амплитуду χ_{ac} , значение которой полагалось пропорциональным T_0 , что учитывало рост чисел заполнения акустических фоновых мод с повышением начальной температуры.

При численном моделировании зависимости $\chi(\Delta\omega, T_0)$ для метода БН считалось, что в точке совмещения частот ($\Delta\omega = 0$) обе компоненты накачки имеют длину волны $\lambda = 625$ нм, т. е. локализованы в той спектральной области, где электронная часть нелинейного отклика ВТСП образца мала как по данным эксперимента [22, 47], так и теории [59–61, 67]. Подгонка результата расчета проводилась по двум параметрам. Считалось, что амплитуда χ_{ac} компоненты χ_s , а также χ_0 должны быть выбраны такими, чтобы за счет интерференции всех вкладов в χ зависимость эффективности самодифракции $\eta(\Delta\omega, T_0) \propto |\chi(\Delta\omega, T_0)|^2$ имела «провалы» в двух точках: в точке $\Delta\omega = 10$ см⁻¹ при $T_0 \simeq 90$ К и в точке $\Delta\omega = 63$ см⁻¹ при $T_0 = 80$ К, что соответствует данным [26]. Отметим, правда, что в [26] точка $\Delta\omega = 0$ была немного смещена ($\lambda \simeq 620.4$ 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 (57)–(62) и процедур, а также с учетом найденных по описанному выше критерию значений χ_{ac} и χ_0 .

5. Результаты численного моделирования нелинейного отклика

5.1. Однофотонное фемтосекундное зондирование

Сначала мы остановимся на результатах, полученных при моделировании кинетики нелинейного отклика $\delta\epsilon(\lambda, T_0)$ ВТСП-пленки для двух модификаций метода пробного импульса с однофотонным фемтосекундным зондированием возбужденного состояния [59]. При этом будем полагать, что термодинамические параметры E_c^F и T_c электронной подсистемы образца с теми же (см. разд.3) характеристиками меняются во времени за счет поглощения 30% (толщина пленки ~ 200 нм) полной энергии (4×10^{-7} Дж) импульса накачки длительностью 30 фс на длине волны $\lambda = 800$ нм, сфокусированного в пятно диаметром 150 мкм. Однако в первой из рассмотренных ситуаций (см. рис.12) мы будем считать, что мгновенное состояние пленки зондируется пробным импульсом на той же длине волны ($\lambda = 800$ нм), т. е. будем моделировать данные экспериментов, аналогичных описанным в [18, 19, 21, 30–34, 48, 52, 53]. После чего (см. рис.13) мы предположим, что реализована иная экспериментальная ситуация и состояние образца зондируется столь же коротким пробным импульсом в диапазоне $\lambda = 620–680$ нм (например, широкополосным импульсом суперконтинуума), что соответствует условиям экспериментов, описанных в [20, 22, 47]. Эту модификацию метода пробного импульса часто называют спектрохронографией [105].

Трансформацию характера расчетной кинетики введенных импульсом накачки изменений модуля диэлектрической проницаемости $\Delta\epsilon(t) = |\epsilon(t)| - |\epsilon_0|$ ВТСП-пленки при вариациях T_0 и однофотонном зондировании на длине волны $\lambda = 800$ нм иллюстрирует рис.12,а. Экспоненциальная аппроксимация начального (с малыми за-

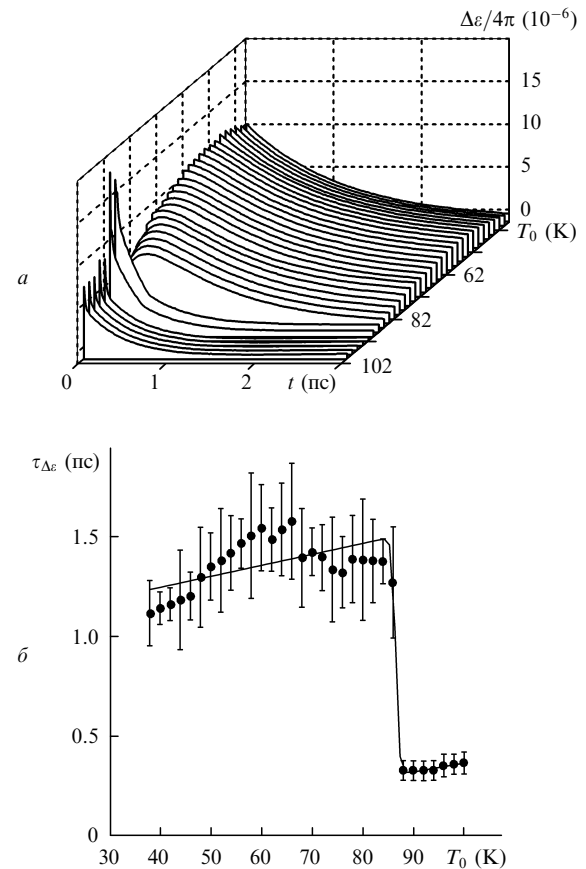


Рис.12. Трансформация характера кинетики $\Delta\epsilon(t) = |\epsilon(t)| - |\epsilon_0|$ при однофотонном фемтосекундном зондировании на длине волны $\lambda = 800$ нм и вариациях начальной температуры T_0 (а) и зависимость времени релаксации $\tau_{\Delta\epsilon}$ от T_0 (б).

держками момента зондирования) участка приведенного здесь семейства кинетических кривых $\Delta\epsilon(t, T_0)$ дает нетривиальную зависимость времени релаксации $\tau_{\Delta\epsilon}$ нелинейного отклика от T_0 (рис.12,б) с выраженной резкой ступенькой (скачок $\tau_{\Delta\epsilon}$ при $T_0 \simeq 86$ К, что чуть ниже температуры фазового перехода $T_c = 90$ К). Легко видеть, что как характер трансформации зависимостей $\Delta\epsilon(t)$ (рис.12,а) при изменении T_0 (наличие участка двухэкспоненциальной релаксации $\Delta\omega$ при T_0 в окрестности точки $T_c = 90$ К), так и сама расчетная зависимость $\tau_{\Delta\epsilon}(T_0)$ (рис.12,б) удовлетворительно отражают наблюдавшуюся в экспериментах (см. разд.1) специфику кинетики нелинейного отклика [32, 34, 41, 48, 52, 53]. Единственной утерянной при моделировании особенностью зависимости $\tau_{\Delta\epsilon}(T_0)$ является отсутствие на ней узкого пика значений $\tau_{\Delta\epsilon}$ на вершине «ступеньки» (рис.12,б). Скорее всего, это обусловлено использованием приближения, в рамках которого скорости релаксационных процессов в (35), (43)–(45) зависят только от средних энергий. Отметим также, что все указанные «аномалии» кинетики нелинейного отклика исчезают при снижении энергии импульса накачки (при совпадении $E_{c,h}^F$ с E_0^F).

При однофотонном зондировании кинетики возбужденного состояния ВТСП фемтосекундным импульсом суперконтинуума ситуация становится сложнее. На рис.13 показаны расчетные спектральные зависимости изменений модуля диэлектрической проницаемости ВТСП-пленки $\Delta\epsilon(\lambda) = |\epsilon(\lambda)| - |\epsilon_0|$, возникающих за счет того же импульса накачки в диапазоне длин волн $\lambda = 620–680$ нм

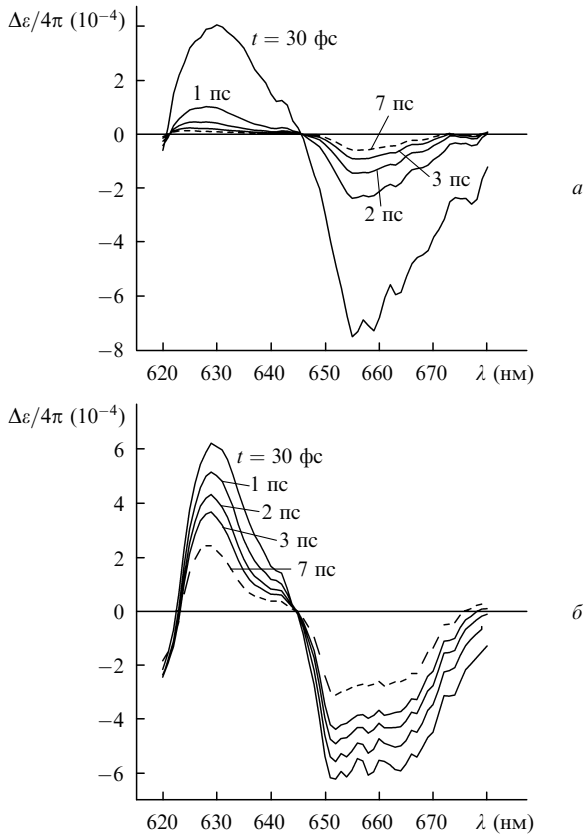


Рис.13. Спектральная зависимость $\Delta\varepsilon(\lambda) = |\varepsilon(\lambda)| - |\varepsilon_0(\lambda)|$ в случае однофотонного фемтосекундного зондирования в диапазоне $\lambda = 620\text{--}680$ нм при $T_0 = 100$ (а) и 40 К (б) и разных временах задержки момента зондирования t .

при $T_0 = 100$ и 40 К и разных временах задержки момента зондирования ($t = 30$ фс, 1, 2, 3 и 7 пс). Хотя $\tau_{\Delta\varepsilon}$ и в этом случае испытывает скачок при снижении T_0 до тех же значений ($T_0 \simeq 86$ К) и на зависимостях $\tau_{\Delta\varepsilon}(T_0)$ при всех λ формируется ступенька, тем не менее за счет плавного смещения положений локальных экстремумов $\Delta\varepsilon(\lambda)$ с ростом t дальнейший ход кривых $\tau_{\Delta\varepsilon}(T_0)$ в области низких температур ($T_0 < 86$ К) зависит от λ (рис.14,б). Как и в экспериментах [20, 22, 47], на оси λ имеются точки, в окрестности которых $\Delta\varepsilon \equiv 0$, разделяющие спектральные области с разными знаками наведенных импульсом накачки изменений $\Delta\varepsilon$ (рис.13,б). Подчеркнем, что этот результат не столь тривиален, как это может показаться, поскольку речь идет об одновременном обнулении действительной и мнимой частей нелинейного отклика. Поэтому, на наш взгляд, наличие таких точек на оси λ может быть обусловлено только изменением фазовых соотношений между двумя интерферирующими компонентами $\delta\varepsilon$ и связано с частотным вырождением процесса зондирования [67].

5.2. Однофотонное пикосекундное возбуждение-зондирование

Напомним (см. разд.4), что в этом случае моделировалась ситуация с совмещенными во времени пикосекундными ($\tau_{\text{pulse}} = 20$ пс) импульсами возбуждения и однофотонного зондирования (т. е. данные моделирования должны соответствовать результатам измерений, проведенных в технике спектроскопии насыщения). Скачок амплитуды наведенных импульсом накачки изменений модуля диэлектрической проницаемости $\Delta\varepsilon$ ВТСП при

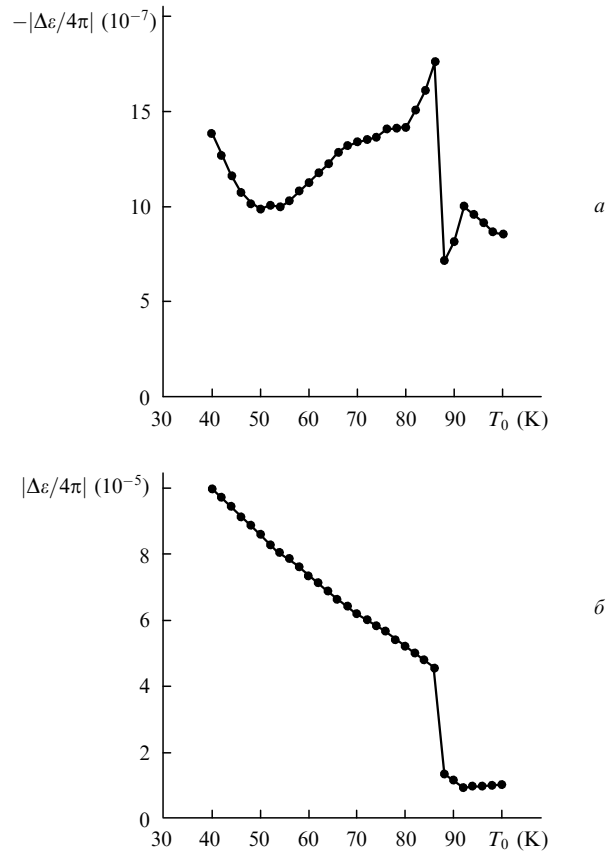


Рис.14. Зависимости $\Delta\varepsilon = |\varepsilon| - |\varepsilon_0|$ от T_0 при однофотонном пикосекундном ($\tau_{\text{pulse}} = 20$ пс) зондировании наведенных импульсом накачки изменений на длинах волн $\lambda = 800$ (а) и 625 нм (б).

вариациях T_0 в окрестности точки фазового перехода $T_0 \simeq T_c$ и зондировании на длинах волн $\lambda = 800$ и 625 нм иллюстрирует рис.14. Легко заметить, что знаки $\Delta\varepsilon$ в этих двух ситуациях различны. Это означает, что и в данном случае на оси λ имеются точки с $\Delta\varepsilon \equiv 0$, разделяющие спектральные области с разными знаками изменений $\Delta\varepsilon$, наведенных накачкой. В то же время провести соответствующие измерения на практике вряд ли реально, поскольку амплитуда изменений ε за счет импульса накачки в этом случае слишком мала.

5.3. Двухфотонное фемтосекундное зондирование

Основным достоинством методов с двухфотонным зондированием возбужденного состояния (методы БН и ВЧФС) является кардинальное снижение уровня начального фона. Обусловлено это тем, что в этом случае измеряются энергетические характеристики световых импульсов, появление которых обусловлено исключительно нелинейными процессами (самодифракцией) [9–11, 25, 26, 56].

Отметим сразу, что приведенные ниже результаты отличаются от данных [67], поскольку в расчете [67] не учитывался сдвиг положения уровня Ферми (вырождение), роль которого, как мы убедились, оказалась весьма существенной.

Трансформация зависимости модуля нелинейного отклика $\chi(\lambda)$ ВТСП при вырожденном по частоте ($\lambda = \lambda_{1,2}, k_1 \neq k_2$) двухфотонном фемтосекундном зондировании возбужденного состояния ВТСП в диапазоне $\lambda = 620\text{--}680$ нм при $T_0 = 100, 90, 76$ и 40 К для моментов зондирования $t = 30$ фс, а также 0.5, 1.5, и 2.0 пс показана

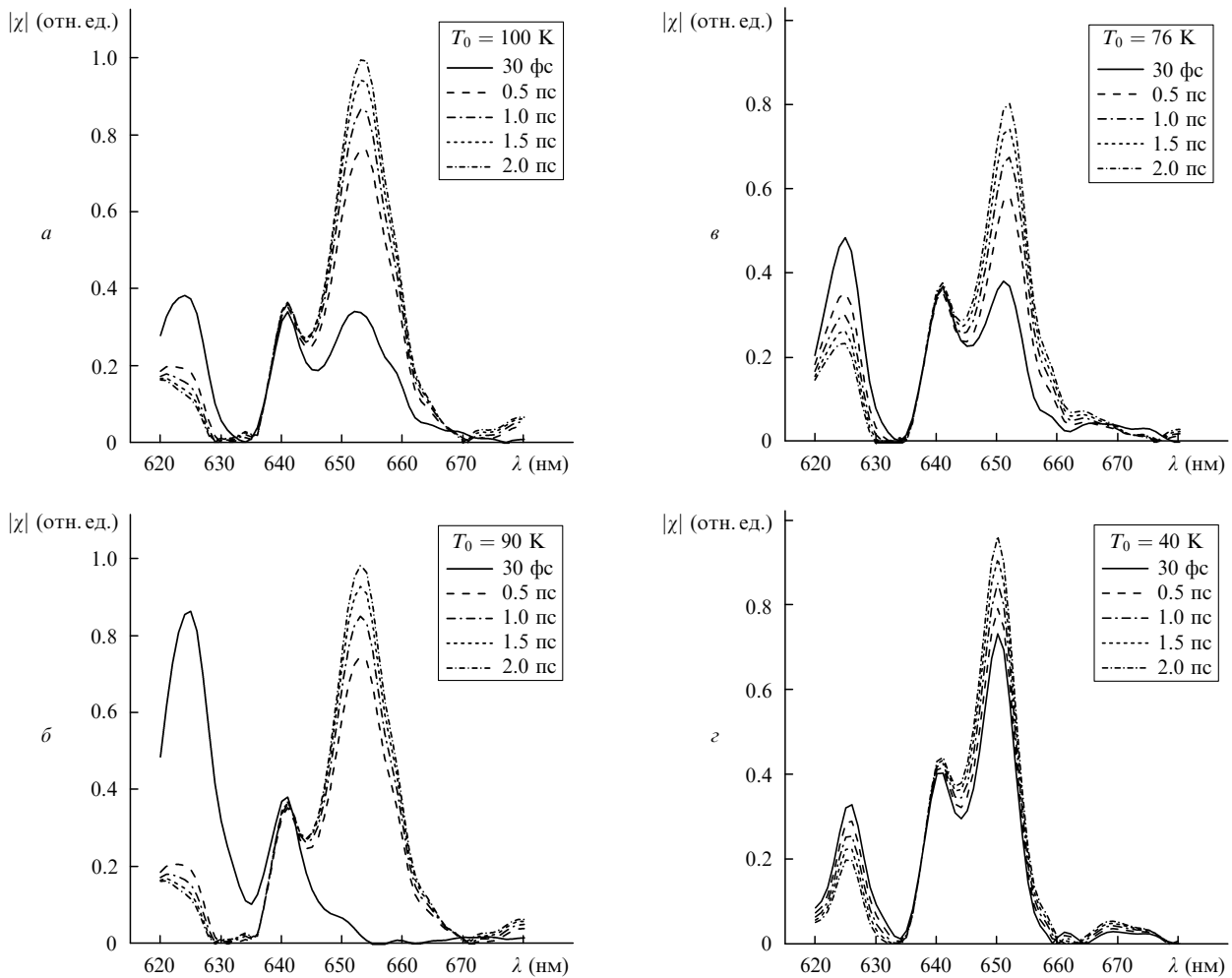


Рис. 15. Зависимости модуля отклика $\chi(\lambda)$ в случае двухфотонного фемтосекундного зондирования возбужденного состояния при $T_0 = 100$ (а), 90 (б), 76 (в) и 40 К (г) и разных временах задержки момента зондирования t .

на рис.15. В экспериментах часто используется дифференциальная схема измерений, т. е. сравниваются две ситуации: при наличии импульса накачки (χ при $E_{c,h}^F \neq E_0^F$, $T_{e,h} \neq T_0$) и в его отсутствие (χ_0 при $E_{c,h}^F \equiv E_0^F$, $T_{e,h} \equiv T_0$). Расчетные зависимости разности $\Delta\chi = |\chi| - |\chi_0|$ от λ при $T_0 = 100, 90, 76$ и 40 К и тех же временах задержки момента зондирования иллюстрирует рис.16,а-г. Легко убедиться, что здесь, как и в случае однофотонного зондирования наведенных импульсом накачки изменений (см. выше), на оси λ также имеются точки ($\Delta\chi \equiv 0$), разделяющие области с разными знаками $\Delta\chi$ (см. рис.16,а-г).

Экспоненциальная аппроксимация кинетики распада $\Delta\chi(t)$ при $\lambda \simeq 653$ нм (длинноволновый пик значений $\Delta\chi$) дает столь же нетривиальную зависимость времени релаксации $\tau_{\Delta\chi}$ от T_0 (рис.16,д) с хорошо выраженной ступенькой (скачок значения $\tau_{\Delta\chi}$ в окрестности той же точки $T_0 = 86$ К) и последующим резким ростом $\tau_{\Delta\chi}$ в области низких температур. Таким образом, кинетика $\Delta\chi(t)$ имеет те же особенности, что и нелинейный отклик при однофотонном зондировании. Причем все эти особенности также полностью исчезают при снижении энергии импульса накачки (при совпадении $E_{c,h}^F$ с E_0^F).

5.4. Двухфотонное пикосекундное возбуждение-зондирование

Расчетную трансформацию зависимости нерезонансной составляющей χ_{nr} полной нелинейной восприимчи-

вости χ ВТСП от частотной расстройки $\Delta\omega$ компонент БН при изменении T_0 иллюстрирует рис.17. Здесь на плоскости ($\Delta\omega$, T_0) в полулогарифмическом (по $\Delta\omega$) масштабе показан характер изменения действительной и мнимой частей χ_{nr} . Легко убедиться, что за счет разумного выбора значения скорости релаксации межзонной поляризации $\Gamma = 150$ см⁻¹ (см. разд.4) зависимости $\chi_{nr}(\Delta\omega)$ имеют ярко выраженные спектральные особенности. Хорошо заметен и скачок χ_{nr} в окрестности точки $T_0 \simeq T_c$, аналогичный скачкам, показанным на рис.14 (однофотонное пикосекундное зондирование).

Резонансная составляющая χ_r на той же плоскости (рис.18) ведет себя существенно проще. Появляясь при снижении начальной температуры T_0 образца в момент начала формирования щели в спектре состояний (в точке $T_0 = T_c$), в дальнейшем зависимость $\chi_r(\Delta\omega)$, по существу, просто отслеживает рост ее ширины Δ . Отметим также, что из-за конечности скорости релаксации $\Gamma = 50$ см⁻¹, использованной при расчете величины χ_r , вклад этой составляющей оказывается существенным и при $\Delta\omega = 0$ (случай частотного вырождения). Поэтому вклад χ_r должен учитываться и при расчете полного нелинейного отклика для метода ВЧФС ($\omega_1 = \omega_2$ при $\mathbf{k}_1 \neq \mathbf{k}_2$, см. далее).

Для краткости характер зависимости составляющей $\chi_s(\Delta\omega, T_0)$ после подгонки ее комплексной амплитуды χ_{ac} по описанному выше критерию не приводится. Напомним лишь, что все спектральные особенности χ_s одно-

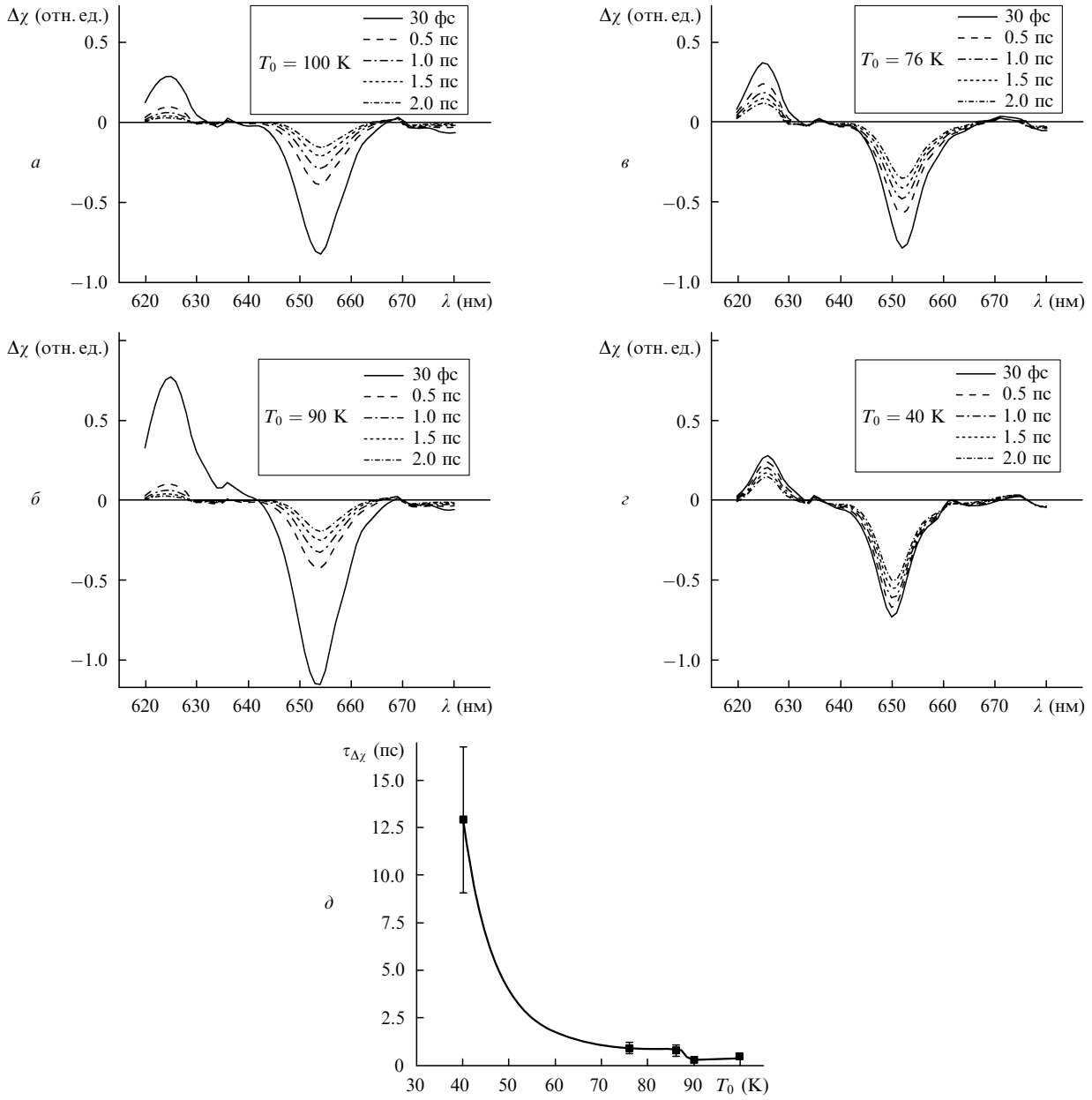


Рис.16. Зависимости $\Delta\chi(\lambda)$ в случае дифференциального двухфотонного фемтосекундного зондирования при $T_0 = 100$ (а), 90 (б), 76 (в) и 40 К (г) и разных временах задержки момента зондирования t , а также зависимость времени релаксации нелинейного отклика $\tau_{\Delta\chi}(T_0)$ для зондирования при $\lambda = 653$ нм (д).

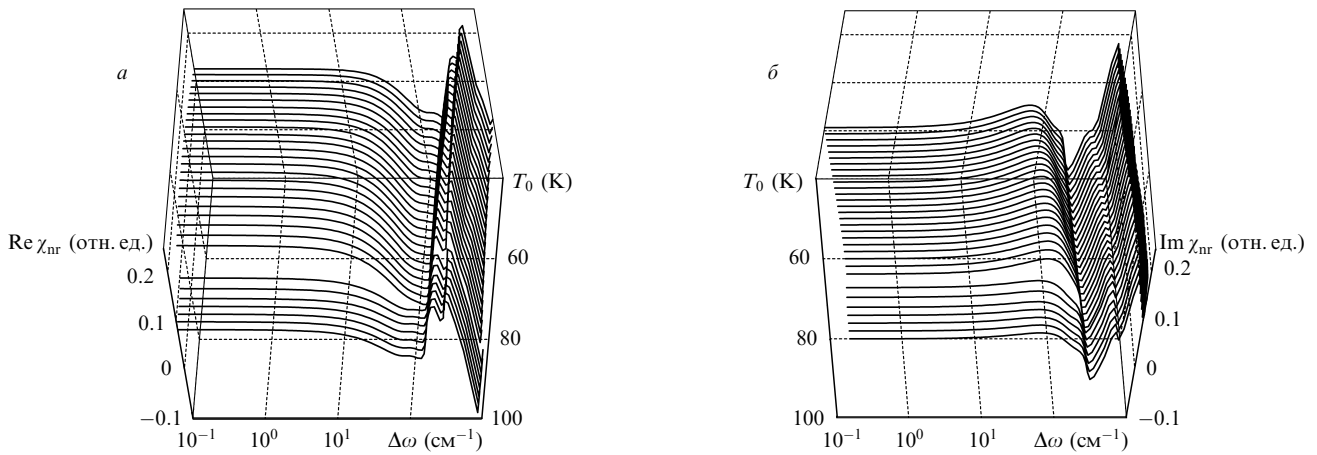


Рис.17. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей χ_{nr} (метод БН) на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Точка совмещения частот $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda = 625$ нм, по оси $\Delta\omega$ использован логарифмический масштаб.

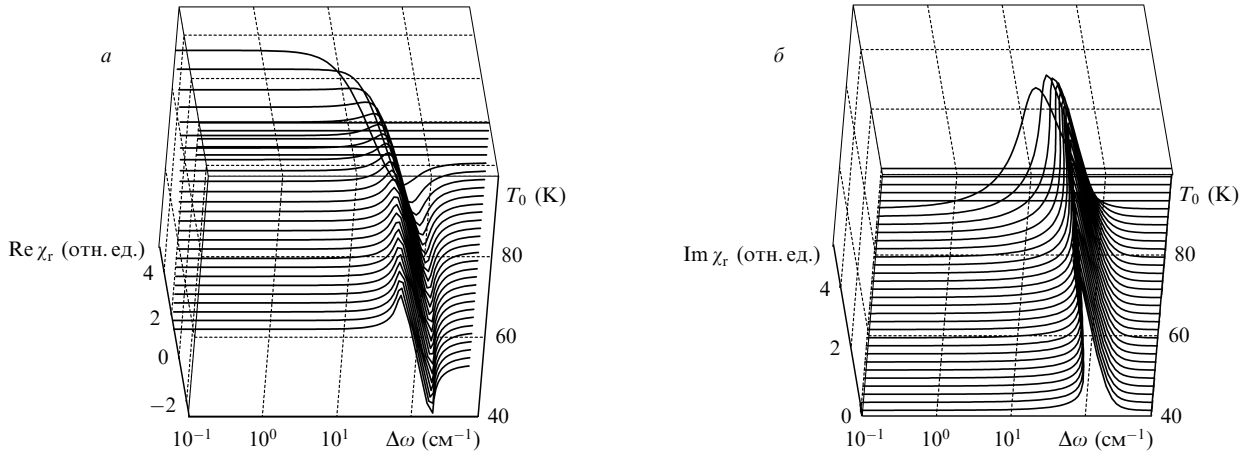


Рис.18. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей χ_r (метод БН) на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Точка совмещения частот $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda = 625$ нм, по оси $\Delta\omega$ использован логарифмический масштаб.

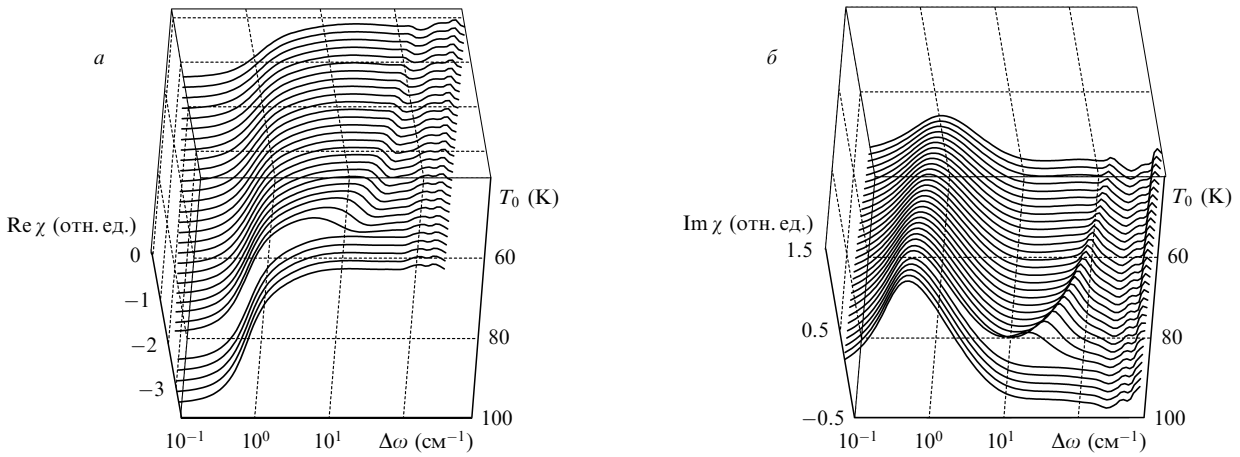


Рис.19. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей χ (метод БН) на плоскости $(\Delta\omega, T_0)$. Точка совмещения частот $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda = 625$ нм, по оси $\Delta\omega$ использован логарифмический масштаб.

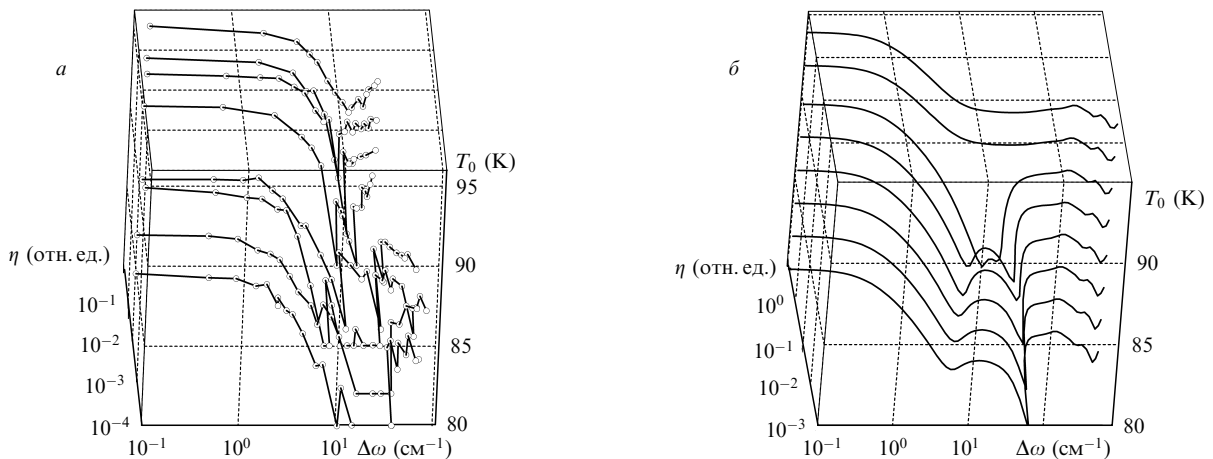


Рис.20. Зависимость $\eta(\Delta\omega, T_0)$ для метода БН по данным эксперимента [56] (а) и расчета (б). Точка совмещения частот $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda = 620.4$ (а) и 625 нм (б), по осям η и $\Delta\omega$ использован логарифмический масштаб.

значно определены шириной спектра компонент БН $\delta\omega$, в то время как температурные – самой моделью (см. разд.4).

На рис.19 показаны зависимости действительной и мнимой частей полной нелинейной восприимчивости χ от T_0 и $\Delta\omega$. Легко убедиться, что расчетная зависимость $\chi(\Delta\omega, T_0)$ сохраняет все перечисленные ранее особенно-

сти ее составляющих. Еще более наглядно это следует из рис.20, на котором приведены как данные эксперимента [56] (рис.20,а), так и расчетная зависимость $\eta(\Delta\omega, T_0) \propto |\chi(\Delta\omega, T_0)|^2$ (рис.20,б) в одинаковом диапазоне изменения начальных температур T_0 , построенные в двойном логарифмическом масштабе (по η и $\Delta\omega$). С учетом использования в расчетной модели по существу всего двух под-

гоночных параметров – немного различающихся точек совмещения частот компонент БН и погрешностей эксперимента, полученное соответствие для целого семейства зависимостей представляется вполне удовлетворительным.

На рис.21 в том же двойном логарифмическом масштабе показан расчетный характер трансформации зависимости $\eta(\Delta\omega, T_0)$ при сдвиге точки совмещения частот компонент БН ($\Delta\omega = 0$), положение которой соответ-

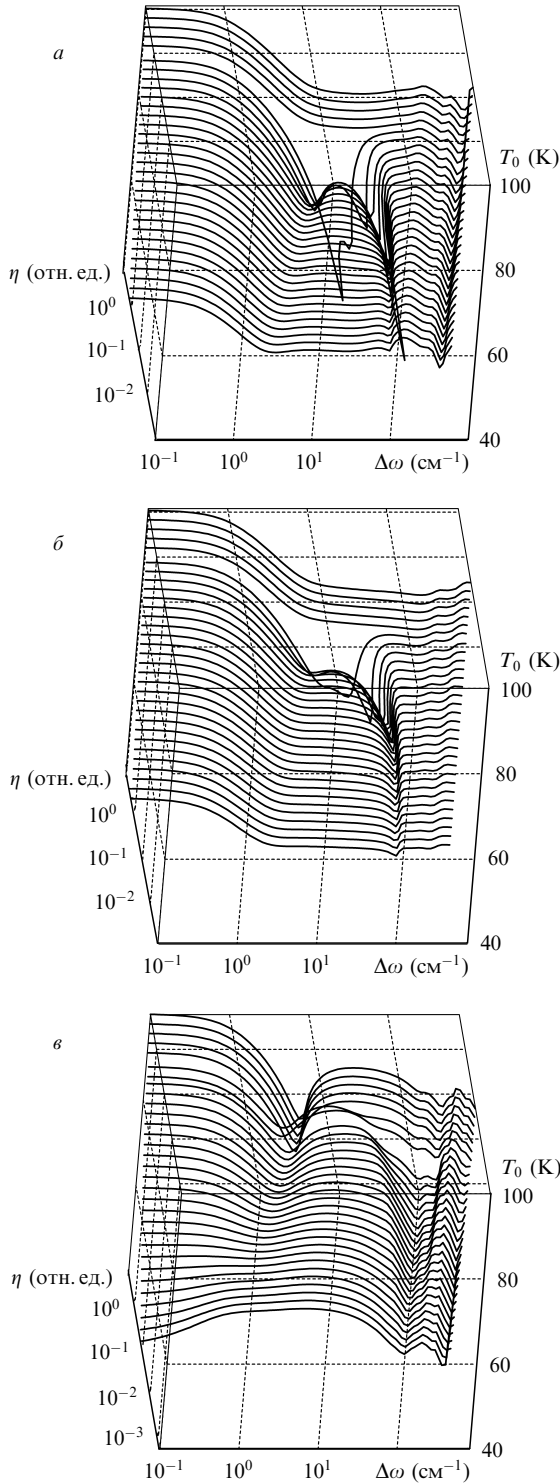


Рис.21. Расчетные зависимости $\eta(\Delta\omega, T_0)$ для метода БН. Точка совмещения частот $\Delta\omega = 0$ соответствует $\lambda = 625$ (а), 630 (б) и 650 нм (в), по осям η и $\Delta\omega$ использован логарифмический масштаб.

ствует $\lambda = 625, 630$ и 650 нм. Хорошо видно, что выбор точки $\Delta\omega = 0$, отвечающий минимуму амплитуды нерезонансной составляющей χ_{nr} полного нелинейного отклика χ , оптимален для выявления спектральных особенностей его резонансной части χ_r и, как следствие, для определения параметров энергетической щели.

Расчетный характер трансформации зависимостей действительной и мнимой частей нерезонансной составляющей χ_{nr} в вырожденном по частоте случае ($\omega_1 = \omega_2$ при $k_1 \neq k_2$, метод ВЧФС) иллюстрирует рис.22. Легко убедиться, что учет реальной зонной структуры образца приводит к тому, что на зависимости $\chi_{nr}(\lambda)$ имеются хорошо выраженные спектральные особенности, поведение которых слабо зависит от начальной температуры образца T_0 и для метода пробного импульса и спектроскопии насыщения (однофотонное зондирование) в целом согласуется с данными как эксперимента [22, 47], так и расчетов [59 – 61]. Наблюдается в этом случае и характерный скачок величины χ_{nr} в окрестности температуры фазового перехода $T_0 \sim T_c$. Зависимости $\chi_r(T_0)$, $\chi_s(T_0)$ и χ_0 здесь не приводятся, поскольку в рамках использованной модели при $\Delta\omega = 0$ величина этих составляющих не меняется при вариациях длины волны λ пикосекундного возбуждения-зондирования.

Поведение же полного нелинейного отклика χ (с учетом его составляющих χ_s и χ_0) в этом случае оказывается кардинально иным. На рис.23 на той же плоскости (λ, T_0)

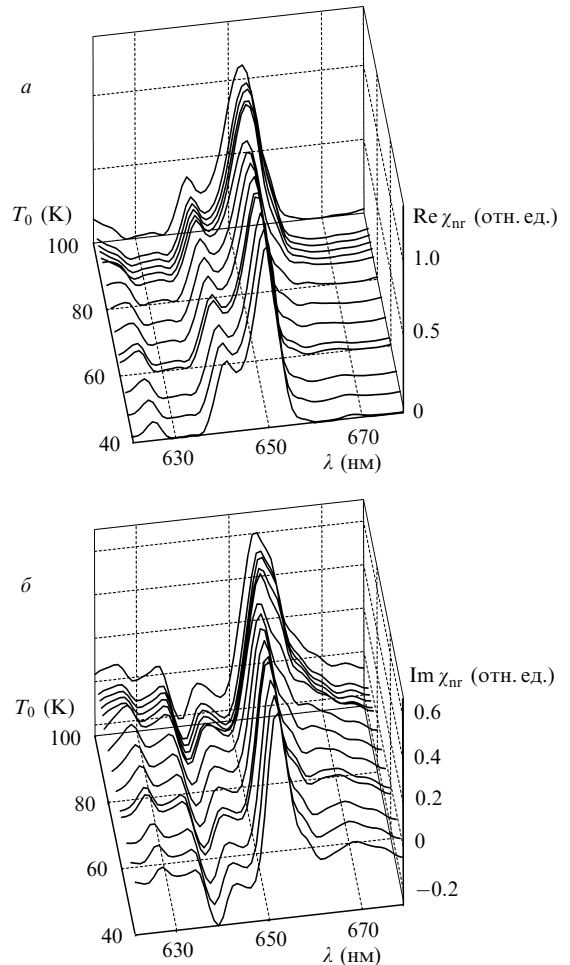


Рис.22. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей нерезонансной составляющей χ_{nr} нелинейного отклика для метода ВЧФС на плоскости (λ, T_0).

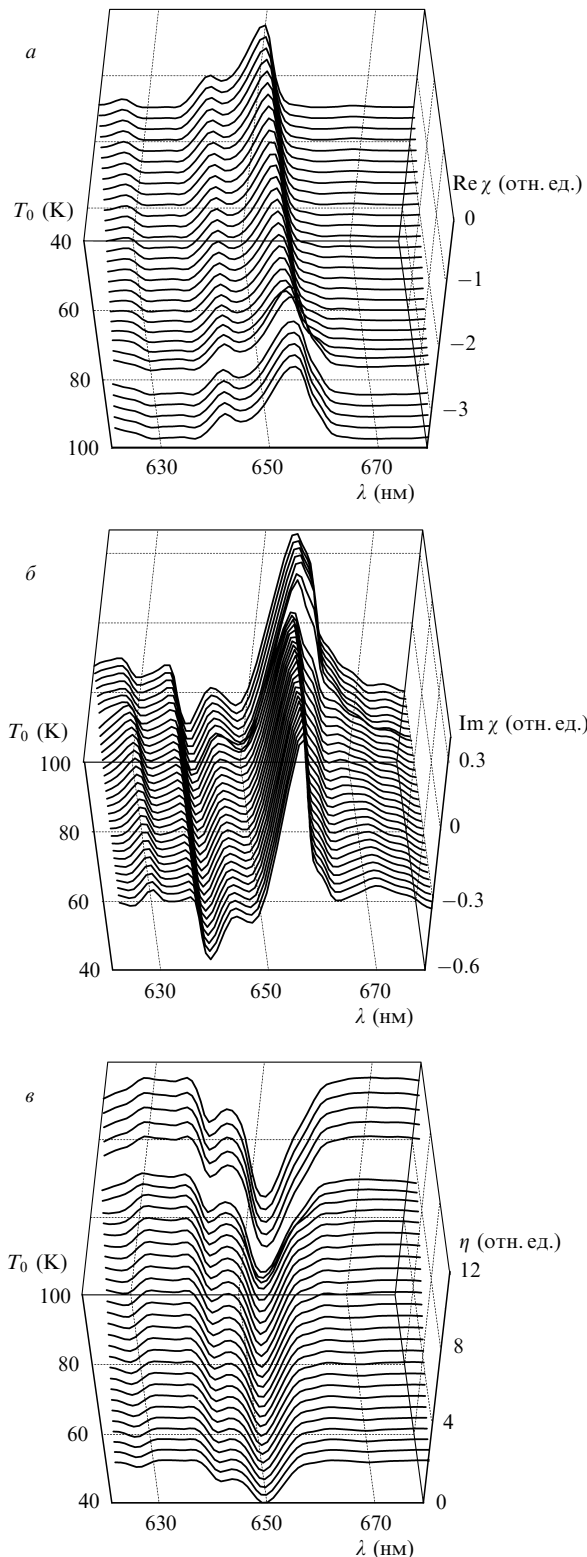


Рис.23. Изменение действительной (а) и мнимой (б) частей полного нелинейного отклика χ , а также эффективности самодифракции η (в) для метода ВЧФС на плоскости (λ, T_0) .

показан характер изменения действительной и мнимой частей χ , а также измеряемой экспериментально зависимости эффективности процесса самодифракции $\eta(\lambda, T_0) \propto |\chi(\lambda, T_0)|^2$. Легко убедиться, что если температурные особенности поведения зависимостей $\chi(\lambda, T_0)$ и $\eta(\lambda, T_0)$ сохраняются, то спектральные – инвертируются, т.е. за счет негативной интерференции χ_s и χ_{nr} положения мак-

симумов и минимумов на оси λ меняются местами. Это значит, что при переходе от экспериментов с фемтосекундным зондированием кинетики отклика ВТСП к ситуации с двухфотонным пикосекундным возбуждением-зондированием (эффективное возбуждение процессов, протекающих с участием акустических фононов) спектральное положение области, в которой проводятся измерения, необходимо смещать.

6. Заключение

Итак, в настоящей работе показано, что практически все известные на сегодня спектральные, временные и температурные особенности нелинейного отклика ВТСП, которые наблюдались ранее разными методами нелинейной спектроскопии, вполне могут быть интерпретированы в рамках единой и сравнительно простой модели с минимальным количеством подгоночных параметров. Подчеркнем, что здесь мы говорим о единой модели для интерпретации данных экспериментов, которые были проведены как при высоком, так и при низком уровне оптической накачки с использованием как фемто- [18–22, 27, 30–34, 47, 48, 52, 53], так и с пикосекундных [25, 26, 56] источников излучения.

Основой такой модели является последовательный учет вкладов всех возможных межзонных электронных переходов в диэлектрическую проницаемость ϵ ВТСП-образца в реальном (т.е. известном из литературных данных [100]) спектре электронных состояний, в который принудительно введена особенность, имитирующая свойства замороженной (т.е. метастабильной [58]) энергетической щели. Предположение о метастабильном характере последней объясняет практически все особенности нелинейного отклика ВТСП, которые наблюдались самыми разными методами нелинейной спектроскопии при низком уровне возбуждения. В то же время учет вырождения (т.е. сдвига уровней Ферми для избыточных свободных носителей) и соответствующего снижения скорости процессов их трехчастичной безызлучательной рекомбинации дает возможность интерпретировать изменения характера нелинейного отклика ВТСП, наблюдавшиеся при типичной для большинства экспериментов энергии импульсов накачки $\sim 10^{-7}$ Дж в пятне фокусировки диаметром 150 мкм (высокий уровень возбуждения). Необходимое для этого уменьшение констант рекомбинации $\gamma_{\text{chp}}^{(r)}$ и $\gamma_{\text{che}}^{(r)}$ реализуется сразу же после открытия в спектре состояний ВТСП энергетической щели (снижение начальной температуры T_0 ВТСП образца чуть ниже температуры фазового перехода T_c) за счет необычного (по сравнению со спектром состояний узкозонных полупроводников) характера функции распределения $g(E_c)$ плотности электронных состояний.

Отметим, что до сих пор предсказания моделей, используемых для интерпретации данных экспериментов, объясняли лишь какой-то один из них, неизменно вступающая в противоречие с результатами других измерений.

1. Rosei R. et al. *Phys. Rev. B*, **10**, 484 (1974).
2. Eesley G.L. *Phys. Rev. Lett.*, **51**, 2140 (1983).
3. Elsayed-Ali H.E. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 1212 (1987).
4. Schoenlein R.W. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 1680 (1987).
5. Fann W.S. et al. *Phys. Rev. B*, **46**, 13592 (1992).
6. Sun C.K. et al. *Phys. Rev. B*, **48**, 12365 (1993).
7. Groeneveld R.H.M. et al. *Phys. Rev. B*, **51**, 11433 (1995).
8. Dobryakov A.L. et al. *Physica Scripta*, **60**, 572 (1999).

9. Петникова В.М. и др. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
10. Кузнецова Л.П. и др. *Квантовая электроника*, **30**, 175 (2000).
11. Бобырев Ю.В. *Квантовая электроника*, **32**, 789 (2002).
12. Rothwarf A., Taylor B.N. *Phys. Rev. Lett.*, **19**, 27 (1967).
13. Owen C.S., Scalapino D.J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1559 (1972).
14. Parker W.H., Williams W.D. *Phys. Rev. Lett.*, **29**, 924 (1972).
15. Schuller I., Gray K.E. *Phys. Rev. Lett.*, **36**, 429 (1976).
16. Bluzer N.J. *Appl. Phys.*, **71**, 1336 (1992).
17. Forrester M.G. *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 1332 (1988).
18. Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 2172 (1990).
19. Han S.G. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 2708 (1990).
20. Гершензон М.Е. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **52**, 1189 (1990).
21. Kazeroonian A.S. et al. *Solid State Commun.*, **78**, 95 (1991).
22. Chekalin S.V. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3860 (1991).
23. Bluzer N. *Phys. Rev. B*, **44**, 10222 (1991).
24. Hegman F.A. et al. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 1158 (1993).
25. Zherikhin A.N. et al. *Physica C*, **221**, 311 (1994).
26. Жерихин А.Н. и др. *Квантовая электроника*, **21**, 574 (1994).
27. Brorson S.D. et al. *Phys. Rev. B*, **49**, 6185 (1994).
28. Buhleier R. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 9672 (1994).
29. White J.O. et al. *Physica C*, **235–240**, 2025 (1994).
30. Stevens C.J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2212 (1997).
31. Smith D.C. et al. *J. Low Temperature Physics*, **117**, 1059 (1999).
32. Demsar J. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 054519 (2001).
33. Segre G.P. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 137001 (2002).
34. Schneider M.L. et al. *Eur. Phys. J. B*, **36**, 327 (2003).
35. Воронов А.В. *Квантовая электроника*, **31**, 1058 (2001).
36. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **31**, 1067 (2001).
37. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **33**, 998 (2003).
38. Allen P.V. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1460 (1987).
39. Nessler W. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 4480 (1998).
40. Sun C.K. et al. *Phys. Rev. B*, **50**, 15337 (1994).
41. Demsar J. xxx.lanl.gov/archive/cond-mat/0305597 (2003).
42. Каганов М.И. и др. *ЖЭТФ*, **31**, 242 (1956).
43. Haberland P.H., Shiffman C.A. *Phys. Rev. Lett.*, **19**, 1337 (1967).
44. Гагтмакер В.Ф., Леонов Ю.С. *Письма в ЖЭТФ*, **8**, 264 (1968).
45. Bradfield J.E., Coon J.B. *Phys. Rev. B*, **7**, 5072 (1973).
46. Tinkham M., Clarke J. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1366 (1972).
47. Farztdinov V.M. et al. *Brazilian J. Phys.*, **26**, 482 (1996).
48. Kabanov V.V. et al. *Phys. Rev. B*, **61**, 1477 (2000).
49. Lucas G., Stephen M.J. *Phys. Rev.*, **154**, 349 (1967).
50. Woo J.W.F., Abrahams E. *Phys. Rev.*, **169**, 407 (1968).
51. Schmid A., Schoen G. *J. Low Temperature Phys.*, **20**, 207 (1975).
52. Kabanov V.V. et al. *Phys. Rev. B*, **59**, 1497 (1999).
53. Schneider M.L. et al. *Europhys. Lett.*, **60**, 460 (2002).
54. Bonn D.A. et al. *Phys. Rev. B*, **47**, 11314 (1993).
55. Quinlan S.M. et al. *Phys. Rev. B*, **49**, 1470 (1994).
56. Zherikhin A.N. et al. *Phys. Lett. A*, **179**, 145 (1993).
57. Grishanin B.A. et al. *Laser Phys.*, **3**, 121 (1993).
58. Воронов А.В. *ЖЭТФ*, **120**, 1256 (2001).
59. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 720 (2005).
60. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 729 (2005).
61. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 1039 (2005).
62. Farztdinov V.M. et al. *Phys. Rev. B*, **56**, 4176 (1997).
63. Lozovik Yu.E. et al. *Laser Phys.*, **9**, 557 (1999).
64. Kuznetsova L.P. et al. *J. Raman Spectroscopy*, **31**, 755 (2000).
65. Devos A., Lerouge C. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 2669 (2001).
66. Kornienko A.G. et al. *J. Appl. Phys.*, **80**, 2396 (1996).
67. Бобырев Ю.В. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 102 (2005).
68. Fujimori A. et al. *Sol. State Commun.*, **63**, 857 (1987).
69. Schlesinger Z. et al. *Physica C*, **185–189**, pt.1, 57 (1991).
70. Fink J. et al. *J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, **66**, 395 (1994).
71. Birgeneau R.J., Shirane G., in *Physical Properties of High Temperature Superconductors I* (Singapore: World Scientific, 1989, p. 151).
72. Rossat-Mignod J. et al. *Physica C*, **185–189**, pt.1, 86 (1991); Tranquada J.M. et al. *Phys. Rev. B*, **46**, 5561 (1992).
73. Shirane G. *Physica C*, **185–189**, pt.1, 80 (1991).
74. Kastner M.A. et al. *Phys. Rev. B*, **38**, 6636 (1988).
75. Гинзбург В.Л., Киржниц Д.А. (Ред.) *Проблема высокотемпературной сверхпроводимости* (М.: Наука, 1977).
76. Annett J.F. et al. *J. Low Temperature Phys.*, **105**, 473 (1996).
77. Moreo A. et al. *J. Phys. Chem. Sol.*, **56**, 1645 (1995).
78. Norman M.R. et al. *Nature*, **392**, 157 (1998).
79. Demsar J. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 4918 (1999).
80. Cohn J.L., Karpinski J. *Phys. Rev. B*, **58**, 14617 (1988).
81. Tranquada J.M. et al. *Nature*, **375**, 561 (1995).
82. Buchner B. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 1841 (1994).
83. Baskaran G. et al. *Sol. State Commun.*, **63**, 973 (1987).
84. Putikka W.O. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 538 (1992).
85. Dagotto E. *Rev. Modern Phys.*, **66**, 763 (1994).
86. Hybertsen M.S. et al. *Phys. Rev. B*, **41**, 11068 (1990).
87. Yonemitsu K. et al. *Phys. Rev. B*, **47**, 12059 (1993).
88. Binder K. (Ed.) *Monte Carlo Methods in Statistical Physics* (Berlin: Springer, 1986).
89. Shraiman B.I., Siggia E.D. *Phys. Rev. B*, **40**, 9162 (1989).
90. Frenkel D.M., Hanke W. *Phys. Rev. B*, **42**, 6711 (1990).
91. Stojkovic B.P. et al. xxx.lanl.gov/archive/cond-mat/9911380 (1999).
92. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Статистическая физика* (М.: Наука, 1995).
93. Анималду А. *Квантовая теория кристаллических твердых тел* (М.: Мир, 1981).
94. Корн Г., Корн Т. *Справочник по математике для научных работников и инженеров: определения, теоремы, формулы* (М.: Наука, 1970).
95. Nelder J.A., Mead R. *Computer J.*, **7**, 308 (1965).
96. Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. *Физическая кинетика* (М.: Наука, 1979).
97. Розанов Н.Н. *Оптическая бистабильность и гистерезис в распределенных нелинейных системах* (М.: Наука, 1997).
98. Васильев В.А. и др. *Автоволновые процессы* (М.: Наука, 1987).
99. Абакумов В.Н. и др. *Безызлучательная рекомбинация в полупроводниках* (С.-Пб.: Изд-е Петербургского института ядерной физики им. Б.П.Константинова РАН, 1997).
100. Perry J.K. et al. *Phys. Rev. B*, **63**, 144501 (2001).
101. Chadi D.J., Cohen M.L. *Phys. Rev. B*, **8**, 5747 (1973).
102. Schubert M., Wilhelmi V. *Nonlinear Optics and Quantum Electronics* (New York: Wiley, 1986).
103. Апанасевич П.А. *Основы взаимодействия света с веществом* (Минск: Наука и техника, 1977).
104. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света* (М.: Наука, 1981).
105. Коротеев Н.И. *Вестник Моск. ун-та. Сер. Физика, Астрономия*, № 6, 6 (1996).