

Московский государственный университет  
имени М.В. Ломоносова  
физический факультет

На правах рукописи

ВОРОНОВ Александр Викторович

**Индукцированные лазерным излучением фазовые  
переходы в сильно коррелированных системах: кинетика,  
метастабильные состояния и нелинейная спектроскопия**

Специальность 01.04.21 - лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Москва, 2004

Работа выполнена на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета

Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова

Научный руководитель доктор физико - математических наук,  
профессор Шувалов Владимир Владимирович

Официальные оппоненты: доктор физико - математических наук,  
профессор Акципетров Олег Андреевич

доктор физико - математических наук,  
профессор Лозовик Юрий Ефремович

Ведущая организация РНЦ «Курчатовский институт»

Защита состоится “ \_\_\_ ” \_\_\_\_\_ 2004 года в \_\_\_\_\_ часов на заседании диссертационного совета Д 501.001.31 в Московском государственном университете им. М.В. Ломоносова по адресу: 119992 ГСП-2, г.Москва, ул. Академика Хохлова, д. 1, Корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Ахманова

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке физического факультета МГУ

Автореферат разослан “ \_\_\_ ” \_\_\_\_\_ 2004 года

Ученый секретарь диссертационного

Совета Д 501.001.31, доцент

Т.М. Ильинова

### **Актуальность**

Развитие нелинейной спектроскопии начиналось с изучения разреженных газов, нелинейный отклик которых описывался как отклик одиночных атомов и молекул. Перенос разработанных при этом подходов на случай конденсированных сред оказался не столь тривиален. Процессы обмена энергией и релаксации идут в них чрезвычайно быстро, и внешнее воздействие затрагивает огромное число сильно взаимодействующих атомов и ионов. Существуют здесь и коллективные возбуждения, которые не наблюдаются в разреженных газах: экситоны, плазмоны и т.п. Все это приводит к принципиальному отличию нелинейного отклика таких систем на лазерное воздействие и проявлению целого ряда качественно новых эффектов, которые невозможно объяснить в рамках простейших теоретических моделей. Высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП), структуры с пониженной размерностью, композитные материалы, полимеры, фуллерены, углеродные нанотрубки – вот далеко не полный перечень новых материалов, которые весьма активно исследуются современными спектроскопическими методами. Несмотря на огромное число экспериментальных работ в этой области, физика процессов, протекающих в подобных объектах, до конца не ясна. Дело в том, что рассматриваемые системы настолько сложны, что даже на современном этапе развития компьютерной техники их практически невозможно смоделировать исходя из «первых принципов». Силы взаимодействия между частицами в таких материалах настолько велики, что нелинейный характер системы доминирует и последовательный расчет в рамках теории возмущений невозможен. Корреляция каждой частицы со всем коллективом приводит к тому, что даже при плавном изменении параметров (например, уровня возбуждения определенного энергетического состояния при лазерном возбуждении) происходит скачкообразное изменение свойств системы, т.е. фазовый переход. Однако чаще всего теоретические модели, используемые для интерпретации данных нелинейной спектроскопии, основаны на предположении, что фазовое состояние изучаемого объекта остается тем же, которым оно было перед началом измерений, а возможность быстрых качественных изменений игнорируется. Именно поэтому изучение кинетики подобных изменений - фазовых переходов, которые в системах сильно взаимодействующих частиц могут наблюдаться даже при сравнительно низком уровне возбуждения, а также их проявлений в нелинейной спектроскопии представляет, на наш взгляд, большой интерес и является предметом описанных в диссертации исследований.

### **Цель работы**

Основной целью настоящей диссертационной работы являлось исследование специфики индуцированных лазерным излучением фазовых переходов (и неравновесных состояний) в сильно коррелированных системах, а также изучение возможных проявлений

таких переходов и состояний в нелинейной спектроскопии. Для описания протекающих процессов должен был быть разработан и апробирован ряд оригинальных методик и приемов совместного решения задач статистической физики, теории фазовых переходов и взаимодействия света с веществом. Эффективность разработанного подхода нужно было продемонстрировать на нескольких конкретных физических примерах, отвечающих фазовым переходам типа:

- «порядок → метастабильный порядок» и «порядок → беспорядок» (эволюция т.н. страйп-структур и энергетической псевдощели в купратных ВТСП, глава 1);
- «порядок → модифицированный порядок» и «порядок → беспорядок» (эволюция доменной структуры в тонких ферромагнитных пленках, глава 2);
- «беспорядок → порядок» и «беспорядок → частичный порядок» (полная либо частичная конденсация колебательного возбуждения в цепочках сопряженных полимеров (СП), глава 3);
- «беспорядок → порядок» и «беспорядок → динамический порядок», обусловленный конкуренцией нескольких упорядоченных фаз (спонтанное формирование и временная эволюция динамических голограмм в т.н. самонакачивающихся двойных ОВФ зеркалах (ОВФЗ) на базе фоторефрактивных кристаллов (ФРК), глава 4).

Предполагалось, что проведенные в ходе работы над диссертацией теоретические исследования обеспечат возможность последовательной интерпретации целого ряда «аномальных» результатов, полученных в последнее время в экспериментах по стационарной и нестационарной нелинейной спектроскопии купратных ВТСП, тонких ферромагнитных пленок и СП, а также по обращению волнового фронта лазерного излучения в ФРК. Все это должно было позволить:

- выявить существенную роль процессов сильного нелинейного взаимодействия в системе при спонтанном формировании в ней под действием лазерного излучения нового топологического порядка (новых фазовых состояний), включая возможное спонтанное нарушение симметрии, возбуждение динамических режимов и т.д.;
- описать кинетику ряда подобных фазовых переходов, которые могут наблюдаться в сильно коррелированных системах при их импульсном возбуждении (например, в нестационарной лазерной спектроскопии);
- выявить значение таких необычных фазовых состояний, возникающих в системе под действием лазерного излучения, на процессы ее взаимодействия со светом, определив тем самым специфику проявлений нового топологического порядка в методах нелинейной спектроскопии.

**Научная новизна работы** заключается в том, что в ней впервые:

1. Показана принципиальная возможность частичной конденсации избыточного (индуцированного лазерным излучением) колебательного возбуждения в цепях СП, с локализацией (вследствие спонтанного нарушения симметрии) колебательного конденсата на одном (С-С либо С=C) из типов связей;
2. Предложена новая теоретическая модель, в рамках которой показано, что под действием короткого лазерного импульса энергетическая щель («псевдощель») в спектре состояний купратных ВТСП разрушается через долгоживущие (время жизни вплоть до 1-3 нс) метастабильные упорядоченные фазы. Построенная модель объясняет противоречия, возникавшие при интерпретации данных целого ряда экспериментов по нестационарной нелинейной спектроскопии ВТСП;
3. Обнаружена возможность «записи» регулярных доменных структур в тонких (толщина сравнима с толщиной скин-слоя) ферромагнитных пленках регулярным пространственно неоднородным распределением интенсивности излучения в цугах коротких (пикосекундных) лазерных импульсов. Объяснено различие кинетики фазового перехода (размагничивания) таких пленок в методах бигармонической накачки (БН) и вырожденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС);
4. Показано, что в однокристалльных самонакачивающихся двойных ОВФ зеркалах, реализованных на ФРК, помимо динамической голограммы, формирующейся в области самопересечения входных пучков (первый «канал» ОВФ), спонтанно рождаются дополнительные решетки показателя преломления с геометрией взаимодействия, типичной для схем двухкристалльных ОВФ зеркал (второй «канал» ОВФ). Конкуренция этих каналов приводит к сложной пространственно-временной динамике генерируемых в ФРК нелинейных волн.

**Защищаемые положения:**

1. Пространственно неоднородное оптическое возбуждение тонких ферромагнитных пленок цугом сверхкоротких лазерных импульсов позволяет «записывать» (формировать) в них регулярные (заданные пространственным распределением интенсивности излучения) доменные структуры, стенки которых локализованы в «темных» (неосвещаемых) областях пленок;
2. Аномальные результаты, полученные методами нестационарной нелинейной спектроскопии в ВТСП Y-Ba-Cu-O (температура сверхпроводящего перехода  $T_c \approx 92$  К) в условиях сравнительно небольшого (до  $0,4 \div 0,5 T_c$ ) «перегрева» электронной подсистемы, могут быть интерпретированы в рамках модели «магнито-дипольного» (спин-волновой обмен) взаимодействия носителей заряда формированием долгоживущих (время жизни до 1-3 нс) несверхпроводящих метастабильных упорядоченных фаз;

3. Аномальное соотношение амплитуд стоксовой и антистоксовой компонент в спектре КР сопряженных полимеров, а также появление низкочастотного крыла у антистоксовой компоненты спектра КР при температурах вплоть до комнатных могут быть объяснены фазовым переходом, связанным с конденсацией (коллективизацией) колебательных возбуждений, созданных птической накачкой, в рамках модели сильного нелинейного взаимодействия колебаний в цепочке чередующихся связей;
4. В однокристалльном самонакачивающемся двойном ОВФ зеркале на ФРК помимо динамической голограммы, формирующейся в области самопересечения взаимно некогерентных входных пучков, спонтанно развиваются дополнительные решетки показателя преломления, образующие дополнительный «канал» ОВФ с геометрией взаимодействия, типичной для схем двухкристалльных самонакачивающихся ОВФ зеркал. Конкуренция этих двух «каналов» приводит к сложной пространственно-временной динамике генерируемых нелинейных волн.

**Практическая значимость** работы определяется возможностью:

1. Применения разработанных оригинальных методик решения самосогласованных задач, а также общего подхода к проблеме интерпретации спектроскопических данных в нелинейной спектроскопии сильно коррелированных систем, к задачам, отличных от рассмотренных в диссертации типов;
2. Использования нового метода быстрого (серия из 5-10 последовательных лазерных импульсов длительностью  $\sim 10$  пс) формирования регулярных доменных структур в тонких ферромагнитных пленках для оптической записи информации;
3. Оптимизации геометрии взаимодействия и других параметров однокристалльных самонакачивающихся двойных ОВФ зеркал, реализованных на фоторефрактивных кристаллах, с целью получения максимальной энергетической эффективности, стабильности и качества выходного излучения.

**Апробация** работы:

Основные результаты диссертационной работы доложены на восьми Международных конференциях: 3<sup>rd</sup> Italian-Russian Symposium on Problems of Laser Physics and Technology (ITARUS'2000, Palermo, Italy, September 16-20, 2000); Russian-German Laser Symposium (RGLS'2000, Vladimir/Suzdal, Russia, September 21-26, 2000); VII International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO'2001, Minsk, Belarus, June 26 - July 01, 2001); 10<sup>th</sup> - 12<sup>th</sup> Annual International Laser Physics Workshops (LPHYS'2001, Moscow, Russia, July 3-7, 2001; LPHYS'2002, Bratislava, Slovakia, July 1-5, 2002; LPHYS'2003, Hamburg, Germany, August 25-29, 2003); International Quantum Electronics Conference (IQEC'2002, Moscow, Russia, June 22 – 27, 2002); XI Conference on Laser Optics (LO'2003, St. Petersburg, Russia, June 30 – July 4,

2003); а также на Секции физики Ломоносовских чтений 2003 (Москва, физический факультет МГУ, 18-25 апреля 2003 г.). Опубликовано 6 статей в отечественных и зарубежных журналах («Журнал экспериментальной и теоретической физики», «Квантовая электроника», «Laser Physics», «Physics Letters A»).

#### **Структура и объем работы:**

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка использованной литературы. Полный объем диссертационной работы 130 страниц, включая 23 рисунков. Библиография содержит 162 наименований, включая 18 публикаций автора.

#### **Личный вклад**

Все использованные в диссертации результаты получены автором лично, либо при его определяющем участии в постановке задач, разработке методик измерений и проведении экспериментов.

#### **Содержание работы:**

**Во введении** аргументирована актуальность, цель, научная новизна и практическая значимость проведенных исследований. Сформулированы положения, выносимые автором на защиту. Кратко изложено содержание диссертации по главам.

**Первая глава** диссертации, как и все последующие, является оригинальной и посвящена описанию результатов исследований кинетики индуцированных лазерным излучением фазовых переходов типа «порядок → метастабильный порядок» и «порядок → беспорядок» на примере изучения специфики нелинейно-оптической диагностики кинетики перехода купратных ВТСП из сверхпроводящего состояния («порядок») в «нормальное» («метастабильный порядок» и «беспорядок») после воздействия короткого лазерного импульса и объяснения результатов экспериментов по бигармоническому пикосекундному зондированию спектра состояний тонких (200-300 нм) сверхпроводящих пленок Y-Ba-Cu-O, предварительно возбужденных коротким ( $20 \div 40$  пс) импульсом накачки. В этих экспериментах было показано, что в отсутствие накачки при температуре  $T < T_c$  эффективность самодифракции пробных импульсов с частотной расстройкой в пределах ширины энергетической щели падает практически до нуля. Причем эта особенность сохраняется еще, по крайней мере, в течение  $\sim 1$  нс после быстрого разогрева исходно сверхпроводящего образца до  $T \approx T_c + (20 \div 30)$  К. В то же время известно, что сверхпроводимость (и связанная с ней энергетическая щель) в таких условиях должна исчезать за времена  $\sim 1$  пс.

Для объяснения этого парадокса в диссертация использована модель, описывающая процессы самоорганизации дырок в одномерные периодически упорядоченные цепочки

(страйпы) в купратных плоскостях за счет их «магнито-дипольного» взаимодействия, обусловленного процессами спин-волнового обмена, с потенциалом вида

$$V(\mathbf{r}, \alpha_1, \alpha_2) = B \cos(2\theta - \alpha_1 - \alpha_2) / r^2. \quad (1)$$

Здесь  $\mathbf{r} = (x, y)$  - радиус-вектор, соединяющий две дырки в плоскости  $\text{CuO}_2$ ;  $B$  - константа их эффективного дипольного взаимодействия, описываемого моментом  $|\mathbf{d}_{1,2}| = d$ ;  $\theta$  и  $\alpha_{1,2}$  - углы между направлениями  $\mathbf{r}$  и  $\mathbf{d}_{1,2}$  с осью  $y$ , направленной вдоль страйпа. В приближении самосогласованного среднего поля получена система связанных нелинейных уравнений Шредингера для одночастичных волновых функций дырок  $\phi_{1,2}(x, y)$  в соседних страйпах. Среднее поле выражено через «средний» (по стационарному распределению Гиббса) локальный (по  $y$ ) магнитодипольный момент  $\langle \mathbf{d} \rangle(y)$  в страйпе. Показано, что при энергии связи  $B \sim 100$  мэВ и средней концентрации дырок (уровне легирования)  $\langle n \rangle \sim 0,1$  дырки на ячейку, снижение температуры  $T$  ниже критического значения  $T^* \sim 150$  К приводит к формированию пространственно-неоднородных распределений дырок («страйп-структур») и к появлению соответствующей энергетической щели («псевдощели») в спектре состояний. Получены зависимости  $T^*$  от  $\langle n \rangle$  и ширины щели от  $T$ , согласующиеся с известными экспериментальными данными.

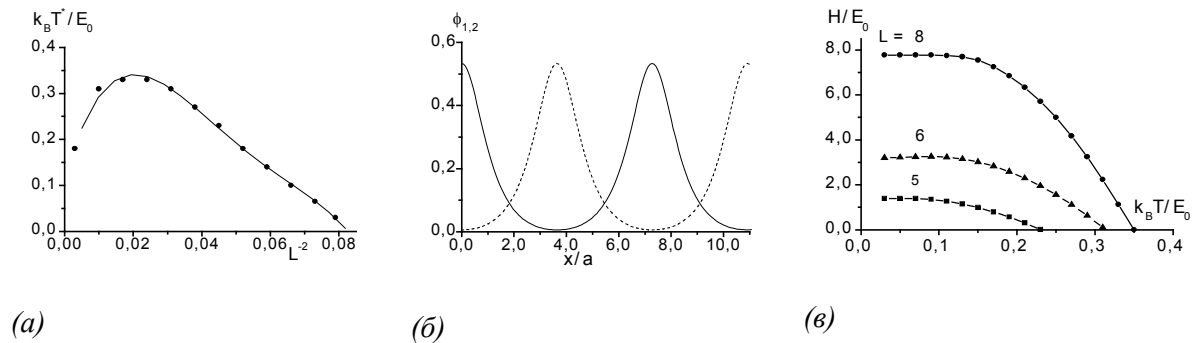


Рис.1. Расчетная зависимость  $T^* (L^{-2})$  (а); волновые функции  $\phi_{1,2}(x/a)$  (сплошная линия и пунктир) при  $L = 7,5$  (б) и зависимость ширины псевдощели (нормированной энергии связи  $H$  дырок в страйпе) от  $k_B T / E_0$  при  $L = 5; 6; 8$  (в). Здесь  $L$  - период страйп структуры, нормированный на размер  $a$  элементарной ячейки в  $\text{CuO}_2$  плоскости;  $E_0 = 2(\pi \hbar)^2 / (m_0 a^2)$ ;  $m_0$  - эффективная масса дырки;  $G_0 = 3B m_0 a^2 / 2\pi^3 \hbar^2 L = 4,5$



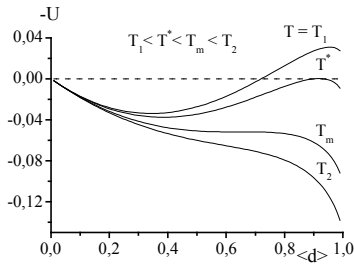
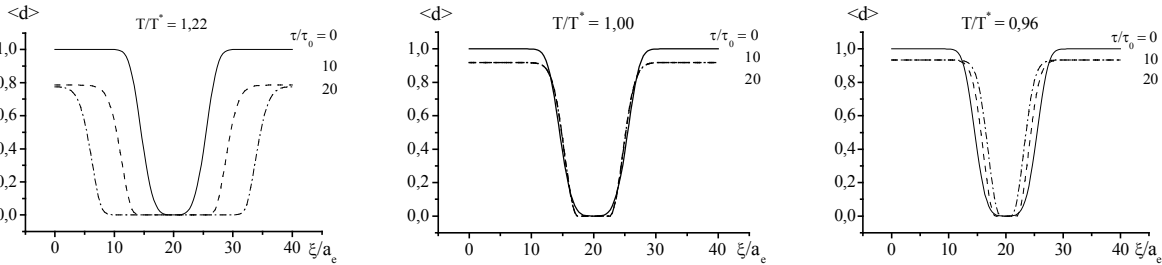


Рис.2. Трансформация зависимости  $U(\langle d \rangle)$  при изменении температуры  $T$

При описании динамических процессов учтено, что в нестационарных условиях  $\langle d \rangle$  зависит не только от  $y$ , но и от времени  $t$ . Полученное уравнение для  $\langle d \rangle$  интерпретировано как уравнение движения в потенциале  $U$ , зависимость которого от  $\langle d \rangle$  представлена на рис.2. Из приведенных графиков следует, что при  $T < T_m = \text{const} > T^*$  на кривых  $U[\langle d \rangle(y)]$  имеется два локальных экстремума. Первый из них  $U_1$  локализован в точке  $\langle d \rangle = 0$  при любом  $T$ , а положение  $\langle d \rangle = \langle d \rangle_r$  второго  $U_2$  меняется при изменении  $T$ . Причем  $U_1 < U_2$  при  $T^* < T < T_m$  и  $U_1 > U_2$  при  $T < T^*$ . При  $T = T^*$  энергия фаз одинакова ( $U_1 = U_2$ ) и реализуются решения с асимптотическим  $d\langle d \rangle(y)/dy|_{y \rightarrow \pm\infty} = 0$  переходом от одного «равновесного» значения  $\langle d \rangle_1 = 0$  ко второму  $\langle d \rangle_2 = \langle d \rangle_r$  (условие сосуществования однородных фаз, известное как правило Максвелла, см. рис.3б).



(а)

(б)

(в)

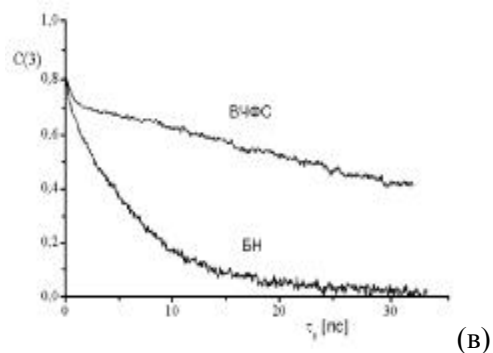
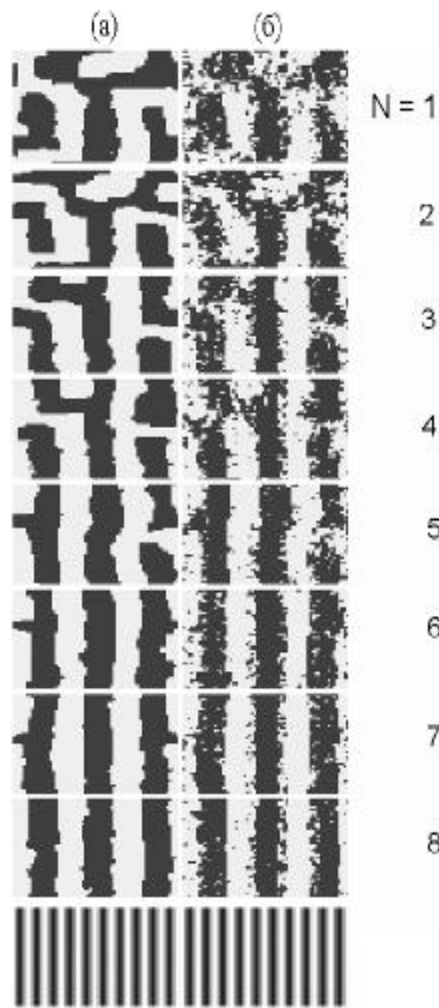
Рис.3. Эволюция начальной флуктуации  $\langle d \rangle$  вдоль (координата  $\xi$ ) страйпа при  $T/T^* = 1,22$  (а); 1,00 (б) и 0,96 (в). Здесь  $\tau$  и  $\tau_D$  - время эволюции и время спиновой релаксации в  $\text{SiO}_2$  плоскости;  $a_e$  - магнитная корреляционная длина;  $g = LG_0 \exp(-2\pi L^{-1})/\pi^2 = 1,25$

При  $T^* \neq T < T_m$  граница раздела фаз «подвижна», а для развития волны переключения фаз необходима начальная «затравка» - начальная флуктуация с характерными размерами порядка ширины области перехода (рис.3а и 3в). Расчетная скорость этой волны  $v$  зависит от величины управляющего параметра (температуры  $T$ ). При подходе к критической точке ( $T = T^*$ )  $v$  обращается в 0 и затем меняет знак (см. рис.3).

Таким образом, в этой главе показано, что в нестационарных реализациях после быстрого разогрева образца импульсом накачки характер кинетики последующего фазового

перехода зависит от начальной температуры. При сравнительно небольшом «перегреве» [ $T^* < T < T_m \approx (1,4 \div 1,5) T^*$ ] разрушение страйп-структур происходит медленно (времена до  $10^{-9}$  с и более) и в два этапа. На первом - формируется сравнительно крупномасштабная (размер  $\sim 4 \div 6$  ячеек) флуктуация в ориентации дипольных моментов, а на втором - область, захваченная флуктуацией, расширяется как волна переключения фаз.

**Вторая глава** диссертации посвящена описанию особенностей кинетики индуцированных лазерным излучением фазовых переходов типа «порядок  $\rightarrow$  модифицированный порядок» и «порядок  $\rightarrow$  беспорядок». Здесь на примере решения задачи взаимодействия лазерного излучения с тонкими пленками Ni описаны процессы перестройки доменной структуры (модификация «порядка») и разрушения намагниченности (переход к «беспорядку») в ферромагнитной пленке под действием последовательности (цуга) сверхкоротких лазерных импульсов. В предположении, что длительность лазерных импульсов существенно превышает времена электрон-фононной и электрон-электронной релаксации, электронная подсистема рассмотрена как термализованная с распределением свободных носителей, заданным распределением Ферми-Дирака. Дальнейшее решение задачи проведено численно и использованием процедуры квантово-механического метода Монте-Карло с учетом того, что во время действия импульса накачки электронная температура  $T_e$  существенно превышает температуру фононной подсистемы  $T_e > T_{ph}$ , а пространственное распределение  $T_e$  задано распределением интенсивности падающего излучения  $I$ . Поэтому движение s-электронов на расстояниях, превышающих длину свободного пробега  $l_{free} \cong v_F \tau_{free}$  (здесь  $v_F$  - Фермиевская скорость;  $\tau_{free}$  - время свободного пробега), описано как процесс диффузии частиц во внешнем самосогласованном поле, учитывающем как обменное взаимодействие между s- и d-электронами атомов Ni, так и самосогласованное магнитное поле. Эволюция намагниченности пленки рассмотрена для двух разных ситуаций, соответствующих условиям возбуждения в методах пикосекундной бигармонической накачки (БН, пространственно однородная оптическая накачка) и пикосекундной вырожденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС, пространственно неоднородное возбуждение). Показано, что под действием 5-7 импульсов накачки, для которых максимальное изменение электронной температуры  $(\Delta T_e)_{max} \cong 900$  К, происходит практически полная трансформация начальной доменной структуры пленки. При этом в методе ВЧФС формируется весьма характерная и очень устойчивая периодическая (для пленки Ni период составляет около 10 мкм) одномерная (1D) регулярная «полосатая» доменная структура, с ориентацией магнитных доменов (полос), заданной направлением полос интерференционной картины (рис.4а).



4 *Рис.4 Трансформация доменной структуры тонкой*  
5 *пленки Ni в методе ВЧФС при воздействии серии*  
6 *лазерных импульсов длительностью 20 пс: до (а) и*  
7 *после действия (б) N-го лазерного импульса. Светлые и*  
8 *темные ячейки имеют ортогональную ориентацию*  
*магнитного момента. Нижний рисунок иллюстрирует*  
*расположение светлых и темных полос в*  
*интерференционной картине. Эволюция степени*  
*дальних (следующие за следующими ближайшими*  
*соседями) корреляций в ориентации спинов  $C(3)$  от*  
*длительности лазерного воздействия  $\tau_p$  в методах*  
*ВЧФС и БН (в)*

В ходе происходящей трансформации стенки доменов постепенно сдвигаются в темные области интерференционной картины, преодолеть которые в процессе диффузии сравнительно «холодные» (в пределах этих областей  $T_c$  значительно меньше температуры Кюри  $T_K$ ) свободные s-электроны не могут. Период сформировавшейся за счет этого процесса доменной структуры оказывается кратен периоду интерференционной картины. При пространственно однородном возбуждении (метод БН) указанный стабилизирующий фактор отсутствует, и доменная структура пленки разрушается очень быстро (см. рис.4в).

Таким образом, приведенные в этой главе данные показывают, что кинетика процесса разрушения намагниченности тонкой ферромагнитной пленки в методе ВЧФС значительно более медленная, чем в методе БН, что и объясняет противоречия, полученные недавно в ходе интерпретации данных спектроскопических исследований сверхтонких пленок Ni. Более того, из проведенного анализа следует, что пространственно неоднородное возбуждение ферромагнитных пленок цугом из 5-7 пикосекундных лазерных импульсов позволяет быстро «записывать» (формировать) в них регулярные (т.е. заданные пространственным распределением интенсивности оптического возбуждения) доменные структуры, стенки которых локализованы в «темных» (неосвещенных) областях пленок.

**Третья глава** диссертации посвящена описанию специфики проявлений индуцированных лазерным излучением фазовых переходов типа «беспорядок  $\rightarrow$  порядок» и «беспорядок  $\rightarrow$  частичный порядок» на примере анализа особенностей нелинейно-оптического отклика цепочек СП на непрерывное оптическое возбуждение в методе нерезонансной КР спектроскопии.

Проведенный в этой главе анализ основан на последовательном учете эффектов сильных корреляций, возникающих в цепи СП (транс-полиацетилен, ПА) благодаря нелинейному взаимодействию двойных (C=C) и одинарных (C-C) связей. В ходе решения этой задачи строится гамильтониан цепи вида

$$\begin{aligned} H = \sum_i \left[ \hbar \omega_a (a_i^+ a_i + a_i a_i^+) + \hbar \omega_b (b_i^+ b_i + b_i b_i^+) + \right. \\ \left. + \hbar \sigma (a_i^+ a_{i+1} + a_i a_{i+1}^+ + b_i^+ b_{i+1} + b_i b_{i+1}^+) + \right. \\ \left. + 2 \hbar \sigma (a_i^+ b_i + a_i b_i^+ + a_i^+ b_{i+1} + a_i b_{i+1}^+ + a_{i+1}^+ b_i + a_{i+1} b_i^+) \right] + \\ + H_N + \mu_a N_a + \mu_b N_b, \end{aligned} \quad (2)$$

$$H_N = \sum_i \left[ \lambda_a (a_i^+)^2 a_i^2 + \lambda_b (b_i^+)^2 b_i^2 \right]. \quad (3)$$

Здесь  $a_i$  и  $b_i$  ( $a_i^+$  и  $b_i^+$ ) - операторы рождения (уничтожения) колебательного возбуждения в двойных и одинарных связях  $i$ -ой C=C-C группы;  $\omega_{a,b}$  - частоты колебаний C-C и C=C связей;  $\hbar \sigma$  - энергия взаимодействия соседних C-C и C=C связей;  $\lambda_{a,b}$  - константы нелинейного взаимодействия;  $\mu_{a,b}$  и  $N_{a,b}$  - «химические потенциалы» и полное количество квазичастиц (колебательных возбуждений) в подсистемах а и b соответственно;  $\hbar$  - постоянная Планка. Бозонное поле подсистем а и b определяется в виде

$$\begin{aligned} \phi_a^+(x) = \frac{1}{\sqrt{N_C}} \sum_{i=1}^{N_C} a_i^+ \psi_a^*(x - \tilde{x}_{a,i}), \quad \phi_a(x) = \frac{1}{\sqrt{N_C}} \sum_{i=1}^{N_C} a_i \psi_a(x - \tilde{x}_{a,i}); \\ \phi_b^+(x) = \frac{1}{\sqrt{N_C}} \sum_{i=1}^{N_C} b_i^+ \psi_b^*(x - \tilde{x}_{b,i}), \quad \phi_b(x) = \frac{1}{\sqrt{N_C}} \sum_{i=1}^{N_C} b_i \psi_b(x - \tilde{x}_{b,i}), \end{aligned} \quad (4)$$

где  $\tilde{x}_{a,i}$  и  $\tilde{x}_{b,i}$  - положение центров C-C и C=C связей;  $\psi_{a,b}$  - одноузельные волновые функции, описывающие колебания отдельных связей;  $\phi_{a,b}(x)$  и  $\phi_{a,b}^+(x)$  - «положительная» и «отрицательная» компоненты бозонного поля в подсистемах а и b соответственно. При этом считается, что полное число осцилляторов в обеих подсистемах  $N_C$  одинаково и равно числу C=C-C групп в цепочке ПА. Путем перехода от дискретной проблемы к континуальной заменой  $i \rightarrow x/u$  ( $u$  - период цепи) с введением эффективной массы  $m$

через соотношение  $\sigma = (2mu^2)^{-1}$  рассчитывается функционал действия. Минимизация последнего проводится с использованием стандартного подхода Н.Н. Боголюбова, в рамках которого первый и последующие члены соответствующего разложения описывают «сконденсированные»  $v(x)$  (синхронные) и «несконденсированные»  $\phi(x, t)$  (некогерентные) колебания в цепи

$$\phi_j(x, t) = v_j(x) + \varphi_j(x, t), \quad \phi_j^+(x, t) = v_j^+(x) + \varphi_j^+(x, t) \quad (5)$$

С помощью этого подхода показывается, что благодаря оптической накачке колебательные возбуждения в цепочке ПА способны коллективизироваться с формированием колебательного «конденсата» («порядок») и «квантового газа» («беспорядок»), которые из-за спонтанного нарушения симметрии локализируются на одном из типов чередующихся С-С и С=С связей (рис.5а). С ростом числа частиц  $N$  в конденсате возбуждение локализуется на все меньшем числе связей, а характер зависимости относительной доли конденсата  $n$  от температуры свидетельствует о фазовом переходе, критическая температура которого растет. Флуктуирующая компонента бозонного поля – «квантовый газ» описывается через разложение по собственным функциям уравнения Шредингера в самосогласованном потенциале, сформированном конденсатом, как суперпозиция непрерывной и дискретной составляющих.

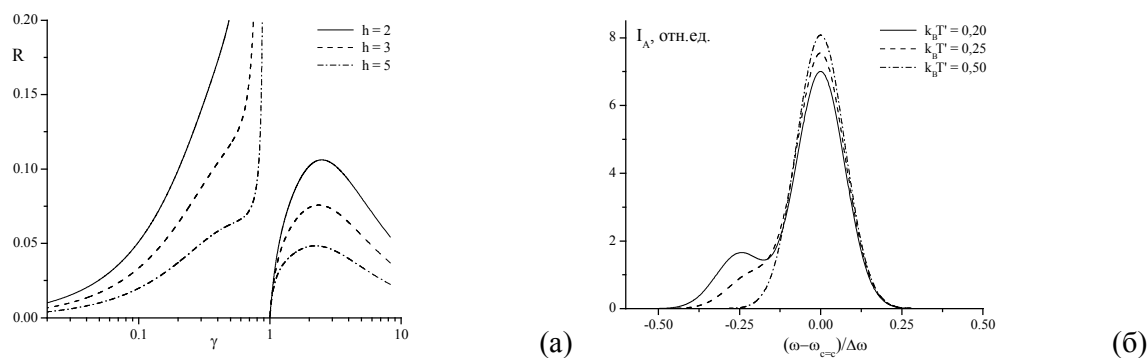


Рис.5.  $R \propto N^{-2}$  в зависимости от коэффициента асимметрии распределения возбуждения по С=С и С-С связям  $\gamma = (v_a/v_b)^2$  (а):  $h = 3\hbar^2 / (4mu^2\Delta\omega)$ ;  $\Delta\omega = \mu_b - \mu_a$ . Эволюция формы антистоксовой компоненты спектра КР  $I_A [(\omega - \omega_{c-c})/\Delta\omega]$  при снижении безразмерной температуры  $k_B T' = 2k_B T / \Delta\omega$  (б):  $\omega_{c-c} = \omega_b$ ;  $\lambda = \lambda_a = \lambda_b$ ;  $h = 0,5$ ; относительный уровень колебательного возбуждения цепочки из  $N_c = 100$  С=С-С групп  $N_0/N_c = 0,05$ ;  $\eta = 8m\lambda^2 N_0^2 / (3\hbar^2\Delta\omega) = 0,5$ ; безразмерная константа демпфирования 0,2

Последующее описание спектров КР проводится с использованием стандартного редуцированного гамильтониана, описывающего дипольное взаимодействие света с описанными выше типами колебательных возбуждений. Показано, что при фиксированной температуре  $T$  после превышения уровнем накачки ( $N_0$ ) «порогового» значения, начиная с которого относительная доля  $n$  конденсата становится велика, спектр КР качественно трансформируется (рис.5б). В нем формируются две отщепленные от «основной линии» (рассеяние с участием нелокализованной составляющей квантового газа) спектральные компоненты. С ростом  $N_0$  относительный вклад одной из них (рассеяние на конденсате) быстро растет, а вторая (рассеяние с участием локализованной составляющей квантового газа) - постепенно отодвигается от основной линии.

Таким образом, в этой главе показано, что рассеяние на колебательном конденсате и «захваченной» им части квантового газа («частичный порядок») и может объяснить появление низкочастотного крыла у антистоксовой линии, а также «аномальное» соотношение интенсивностей стоксовой и антистоксовой компонент спектра КР в СП при температурах вплоть до комнатных.

В **четвертой** главе работы рассмотрена специфика индуцированных лазерным излучением фазовых переходов типа «беспорядок  $\rightarrow$  порядок» и «беспорядок  $\rightarrow$  динамический порядок», обусловленный конкуренцией нескольких упорядоченных фаз, на примере численного расчета динамики процессов самоорганизации в т.н. однокристалльных самонакачивающихся двойных ОВФ зеркалах, реализованных на базе фоторефрактивной нелинейности. Анализ проведен в рамках классической системы микроскопических уравнений Н.В. Кухтарева, записанной для одномерного случая без учета фотовольтаического эффекта, и стандартных укороченных волновых уравнений для комплексных амплитуд световых волн. Считается, что оптическое излучение распространяется в направлении оси  $z$  (рис.6а). Используются укороченные волновые уравнения для комплексных амплитуд световых волн  $A_{f,b}(x,z,t)$ , распространяющихся в прямом и обратном направлении оси  $z$  соответственно. Поскольку численное описание эволюции формирующихся в ФРК динамических голограмм является адекватным лишь при условии использования чрезвычайно мелких сеток по пространству (размер ячеек  $\Delta h$  должен быть менее длины световой волны) и времени (шаг по времени  $\Delta t \sim \Delta h^2$ ), используется оригинальный прием. За счет его использования в предположении мгновенности распространения света («адиабатическое» приближение) в условиях, типичных для большинства экспериментальных реализаций, исходная система уравнений редуцируется, что и позволяет провести необходимые расчеты.

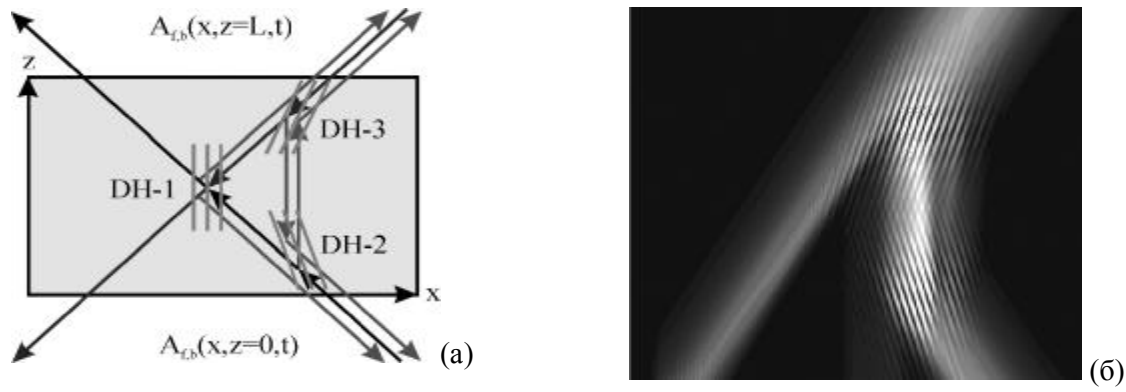


Рис. 6. Геометрия взаимодействия световых волн  $A_{f,b}(x, z, t)$  в однокристалльном двойном ОВФЗ: DH1-DH3 - формирующиеся в ФРК динамические голограммы для первого (DH1, область самопересечения входных пучков) и второго (DH2-DH3, геометрия решеток, типичная для двухкристалльных ОВФЗ) «каналов» генерации (а). Карта распределения интенсивности  $I_b(x, z)$  в ФРК через 100 с после начала возбуждения (б);  $I_{f,b}^{(\max)} = 10^{-2}$  Вт/см<sup>2</sup>;  $\beta = 25^\circ$ ;  $E_0 = 0$  кВ/см

В проведенном численном моделировании большая часть параметров задачи считается однозначно определенной выбором ФРК (титанат бария) и не варьируется. Распределения интенсивности  $|A_f^{(0)}(x, z=0, t)|^2$  и  $|A_b^{(0)}(x, z=L, t)|^2$  входного излучения с длиной волны  $\lambda = 0,514$  мкм на гранях ФРК полагаются гауссовскими (ширины пучков  $2\rho_0 = 200$  мкм) с максимальной интенсивностью  $I_{f,b}^{(\max)} = 10^{-4} \div 10^{-2}$  Вт/см<sup>2</sup>. Период записываемой в ФРК с входной апертурой  $H = 0,75$  мм и длиной  $L = 0,75$  мм динамической голограммы меняется в диапазоне  $\Lambda = 1 \div 10$  мкм (угол схождения пучков  $2\beta = 5 \div 30^\circ$ ). Внешнее электростатическое поле варьируется в пределах  $E_0 = 0 \div 5$  кВ/см. Одновременно с проявлениями двух типичных для ФРК эффектов самовоздействия: fanning и self-bending расчет обнаружил генерацию полей  $A_{f,b}(x, z, t)$  со структурой  $A_f(x, z=L, t)$  и  $A_b(x, z=0, t)$ , близкой к структуре обращенных входных полезных сигналов  $A_b^{(0)}(x, z=L)$  и  $A_f^{(0)}(x, z=0)$ . Хотя ОВФ никогда не было «идеальным», значение интеграла перекрытия

$$R(z, t) = \frac{\left| \int_0^\infty A_f(x, z, t) A_b^*(x, z, t) dx \right|^2}{\int_0^\infty |A_f(x, z, t)|^2 dx \int_0^\infty |A_b(x, z, t)|^2 dx} \quad (6)$$

на входных гранях ФРК (плоскости  $z=0$  и  $z=L$ ) достигало максимальных значений  $R_{\max}=0,7 \div 0,8$ . При малых  $\beta$  (рис.6б) стабильно генерировались две обращенные волны. При этом в ФРК формировались три динамических голограммы, две из которых (правая часть рис.6б) возникали еще до области самопересечения пучков и были аналогичны решеткам показателя преломления в схеме двухкристального двойного ОВФЗ. Третья слабовыраженная голограмма формировалась в области самопересечения и соответствовала решетке показателя преломления в «стандартной» схеме двойного ОВФЗ. С увеличением угла схождения пучков  $\beta$  и напряженности внешнего электростатического поля  $E_0$  эффективность ОВФ существенно падала. За счет самовоздействия (fanning и self-bending) все три динамические голограммы постепенно смещались в область самопересечения и пространственно «перекрывались». При этом эффективность и стабильность процессов ОВФ «вперед» и «назад» резко снижалась.

Основным результатом главы является вывод о том, что в однокристалльном двойном ОВФЗ помимо динамической голограммы («порядок»), формирующейся в области самопересечения входных пучков (первый «канал» ОВФ), спонтанно возникает и другой тип решеток показателя преломления (другой «порядок»), формирующих второй «канал» ОВФ с другой геометрией взаимодействия. Конкуренция этих двух каналов («порядков») и приводит к сложной пространственно-временной динамике генерируемых нелинейных волн. В зависимости от условий эксперимента возможно как ОВФ с эффективностью до  $70 \div 80\%$  («порядок»), так и формирование динамических структур из солитоноподобных «нитей» («динамический порядок»).

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

1. Для интерпретации данных экспериментов по нестационарной нелинейной спектроскопии медно-оксидных ВТСП построена феноменологическая модель, описывающая «магнито-дипольную» самоорганизацию носителей заряда в купратных ( $\text{CuO}_2$ ) плоскостях и кинетику соответствующего фазового перехода.
2. В рамках построенной модели показано, что:
  - а) при энергии связи  $\sim 100$  мэВ и средней концентрации дырок (уровне легирования)  $\langle n \rangle \sim 0,1$  дырки на ячейку снижение температуры  $T$  образца ниже критического значения  $T^* \sim 150$  К приводит к формированию одномерных пространственно-неоднородных распределений дырок («страйп» структур») и к появлению соответствующей энергетической щели («псевдощели») в спектре состояний;



- б) с ростом  $\langle n \rangle$  происходит линейное уменьшение  $T^*$  и ширины псевдощели, что, как и температурная зависимость последней, согласуется с данными известных экспериментов;
- в) кинетика фазового перехода после быстрого разогрева образца зависит от начальной температуры. При  $T^* < T < T_m \approx (1,4 \div 1,5) T^*$  страйп-структуры разрушаются в два этапа и достаточно медленно ( $10^{-9}$  с и более). На первом этапе формируется сравнительно крупномасштабная (размер  $\sim 4 \div 6$  ячеек) флуктуация ориентации дипольных моментов, а на втором - область, захваченная этой флуктуацией, расширяется как волна «переключения фаз».
3. Для интерпретации данных экспериментов по пикосекундной нелинейной спектроскопии (методы БН и ВЧФС) тонких ферромагнитных (Ni) пленок построена модель пространственной миграции «разогретых» коротким импульсом накачки носителей заряда с учетом взаимодействия спинов.
4. В рамках построенной модели показано, что:
- а) кинетика разрушения намагниченности тонкой ферромагнитной пленки в методе БН (режим пространственно однородного возбуждения) оказывается существенно более быстрой, чем в методе ВЧФС (режим пространственно неоднородного возбуждения);
- б) в методе ВЧФС в ферромагнитной пленке быстро (5-7 импульсов накачки) формируется регулярная структура доменов, положение стенок которых жестко связано с локализацией темных полос интерференционной картины светового поля, что «блокирует» процесс дальнейшей пространственной миграции возбужденных носителей.
5. Для интерпретации данных по КР спектроскопии СП построена кинематическая модель, описывающая их взаимодействие с оптическим излучением при четырехфотонном смещении с учетом нелинейной связи колебательных возбуждений.
6. В рамках построенной модели показано, что:
- а) благодаря оптической накачке колебательные возбуждения в цепочке чередующихся С-С и С=С связей коллективизируются с формированием колебательного «конденсата» и «квантового газа», которые из-за спонтанного нарушения симметрии локализуются на одном из типов связей;
- б) рассеяние на конденсате и «захваченной» им части квантового газа объясняет появление низкочастотного крыла антистоксовой линии в спектре КР и «аномальное» соотношение интенсивностей стоксовой и антистоксовой компонент при температурах вплоть до комнатных.

7. Для изучения динамики самоорганизации, протекающих при развитии процесса ОВФ в однокристалльном самонакачивающемся двойном ОВФ зеркале на ФРК проведено численное моделирование, позволившее установить, что:
- а) в двойном ОВФ зеркале помимо динамической голограммы, формирующейся в области самопересечения входных пучков (первый «канал» ОВФ), спонтанно возникают дополнительные решетки показателя преломления, формирующие второй «канал» ОВФ с геометрией взаимодействия, характерной для схем двухкристалльных ОВФ зеркал;
  - б) конкуренция двух этих «каналов» ОВФ приводит к сложной пространственно-временной динамике генерируемых в ФРК нелинейных волн. В зависимости от условий эксперимента возможно как ОВФ с энергетической эффективностью вплоть до 50÷60 % при интеграле перекрытия до 70÷80 %, так и режим формирования динамических структур из тонких солитоноподобных «нитей».

**Публикации по теме диссертации:**

1. А.В. Воронов, В.М. Петникова, В.В. Шувалов. *Магнито - дипольная самоорганизация носителей заряда в высокотемпературных сверхпроводниках и кинетика фазового перехода*. ЖЭТФ **120**, №5, 1256, 2001.
2. V.M. Petnikova, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Kinetics of stripes and energy pseudogap in high-temperature superconductors: coherent nonlinear spectroscopy of phase transition in Y-Ba-Cu-O*. Laser Physics **12**, №2, 278, 2002.
3. V.M. Petnikova, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Kinetics of stripes and pseudogap in high temperature superconductors*. Proceedings SPIE, **4752**, 113, 2002.
4. V.M. Petnikova, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. "Stripes" and "pseudogap": what we see in nonstationary four-photon spectroscopy of HTSC materials. ITARUS' 2000, Palermo, Italy, September 16-20, 2000. Book of Abstracts, p.34.
5. V.M. Petnikova, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Kinetics of stripes and pseudogap in high temperature superconductors*. ICONO 2001, Minsk, Belarus, June 26- July 01, 2001. Tech. Digest, p.FH3.
6. V.M. Petnikova, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Kinetics of stripes and energy pseudogap in high-temperature superconductors: coherent nonlinear spectroscopy of phase transition in Y-Ba-Cu-O*. LPHYS'01, Moscow, Russia, July 3-7, 2001. Book of Abstracts, p.54.
7. V.M. Petnikova, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Kinetics of "stripes" and energy "pseudogap" in transient four-photon spectroscopy of HTSC materials*. IQEC'2002, Moscow, Russia, June 22 – 27, 2002. Tech. Digest, p.390.

8. Yu.V. Bobyrev, V.M. Petnikova, K.V. Rudenko, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Picosecond degenerate four-photon spectroscopy as an energy gap diagnostic tool for HTSC compounds*. LO'2001, St. Petersburg, Russia, June 30 – July 4, 2003. Tech. Program, p.73.
9. Ю.В. Бобырев, А.В. Воронов, В.М. Петникова, К.В. Руденко, В.В. Шувалов. *Спектроскопия сверхтонких металлических пленок: метод вырожденной четырехфотонной спектроскопии*. Ломоносовские чтения 2003. Секция физики. Москва, Физический факультет МГУ, 18-25 апреля 2003 г. Сборник расширенных тезисов докладов, с.83.
10. А.В. Воронов, В.М. Петникова, К.В. Руденко, В.В. Шувалов. *«Оптическое перемешивание спинов» и кинетика нелинейного отклика в четырехфотонной спектроскопии тонких ферромагнитных пленок*. Квантовая электроника, **31**, №12, 1058, 2001.
11. V.M. Petnikova, K.V. Rudenko, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Spin mixing in ultra-thin ferromagnetic Ni films under picosecond excitation*. RGLS'2000, Vladimir/Suzdal, Russia, September 21-26, 2000. Tech. Digest, p.40.
12. V.M. Petnikova, K.V. Rudenko, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Laser-induced “frozen spin waves” in ultra-thin ferromagnetic films revealed by picosecond degenerate four-photon spectroscopy*. IQEC'2002, Moscow, Russia, June 22 – 27, 2002. Tech. Digest, p.433.
13. А.В. Воронов, В.М. Петникова, В.В. Шувалов. *Конденсация колебательного возбуждения и специфика комбинационного рассеяния цепочками сопряженных полимеров*. Квантовая электроника **33**, №3, 219, 2003.
14. V.M. Petnikova, V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Room-temperature vibration condensate and Raman spectroscopy of conjugated polymers*. Physics Letters A **315**, №3-4, 262, 2003.
15. V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *The role of coherent collective states in Raman spectroscopy of one-dimensional molecular chains*. LPHYS'02, July 1-5, 2002. Bratislava, Slovakia. Book of Abstracts, p.190.
16. А.В. Воронов, В.В. Шувалов. *Динамика самонакачивающихся двойных ОВФ зеркал на фоторефрактивной нелинейности*. Квантовая электроника **34**, 2004, в печати.
17. V.V. Shuvalov, A.V. Voronov. *Kinetics of self-organization in self-pumped double phase-conjugate mirrors*. Laser Optics'2003, St. Petersburg, Russia, June 30–July 4, 2003. Tech. Program, p.28.
18. V.V. Shuvalov, A.A. Voronov. *Dynamic self-organization in double phase-conjugate mirrors*. LPHYS'03, Hamburg, Germany, August 25-29, 2003. Book of Abstracts, p.269.