



ЖУРНАЛ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ *и* ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ



НАУКА

— 1727 —

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

ОСНОВАН В МАРТЕ 1873 ГОДА

ТОМ 166, ВЫПУСК 5 (11)

ВЫХОДИТ 12 РАЗ В ГОД

НОЯБРЬ 2024

МОСКВА

РАН

ЖУРНАЛ ИЗДАЕТСЯ ПОД РУКОВОДСТВОМ ОТДЕЛЕНИЯ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК РАН

СОДЕРЖАНИЕ

АТОМЫ, МОЛЕКУЛЫ, ОПТИКА

- Оценка влияния приближения вращающейся волны на спектры поляризации двухуровневой системы в полихроматическом поле Антипов А. Г., Уварова С. В. 575
- О влиянии характеристик электронного пучка на излучение гармоник однопроходных лазеров на свободных электронах Жуковский К. В. 588
- Расчет эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью Тюрнев В. В. 603
- Поиск связанных состояний одномерной квантовой системы степенным методом: практическая реализация Врублевская Н. Р., Шипило Д. Е., Илюшин П. Я., Николаева И. А., Косарева О. Г., Панов Н. А. 612

ЯДРА, ЧАСТИЦЫ, ПОЛЯ, ГРАВИТАЦИЯ И АСТРОФИЗИКА

- Нагрев молекулярного облака первичной черной дырой ... Мелихов А. Н., Михеева Е. В. 618
- Прецизионное измерение гравитационного смещения частоты электромагнитных сигналов Руденко В. Н., Белоненко А. В., Гусев А. В., Гурин Ф. С., Кулагин В. В., Попов С. М., Манучарян Г. Д., Захваткин М. В., Коваленко А. В. 632

ТВЕРДЫЕ ТЕЛА И ЖИДКОСТИ

- Физические свойства диборида циркония при температуре 2500–5000 К Онуфриев С. В., Савватимский А. И. 641

ПОРЯДОК, БЕСПОРЯДОК И ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕДАХ

Фазовый переход и кроссоверы на каирской решетке диполей Изинга Шевченко Ю. А., Лобанова Э. А., Трефилов И. В., Стронгин В. С., Овчинников П. А., Нефедев К. В.	655
Уравнение эволюции электрической поляризации мультиферроиков, пропорциональной векторному произведению спинов ионов ячейки, под влиянием гамильтониана Гейзенберга Андреев П. А., Труханова М. И.	665
Спектроскопия андреевского отражения FeSe: анализ в рамках двухзонной модели Степанов В. А., Голубков М. В., Садаков А. В., Усольцев А. С., Чареев Д. А.	679
Fractional a.c. Josephson effect as evidence of topological hinge states in Dirac semimetal NiTe_2 Kazmin D. Yu., Esin V. D., Timonina A. V., Kolesnikov N. N., Deviatov E. V.	688
Спектры резонансной магнитоупругости в кристаллах $\text{NaCl}(\text{Ca} + \text{Ni})$ Альшиц В. И., Колдаева М. В., Петриж Е. А., Даринская Е. В.	696

ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА ТВЕРДЫХ ТЕЛ

Изменение свойств $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ при циклической переполаризации сегнетоэлектрических конденсаторов с разными материалами электродов Залялов Т. М., Исламов Д. Р.	703
Диэлектрическая электронно-дырочная жидкость в монослойных гетероструктурах на основе ди-халькогенидов переходных металлов Ратников П. В.	710

СТАТИСТИЧЕСКАЯ И НЕЛИНЕЙНАЯ ФИЗИКА, ФИЗИКА «МЯГКОЙ» МАТЕРИИ

Равновесия и процессы в диссоциированном воздухе Смирнов Б. М.	727
Особенности работы проволочных X-пинчей на компактном сильноточном генераторе КИНГ Тиликин И. Н., Шелковенко Т. А., Мингалеев А. Р., Мингалеев А. А., Тер-Оганесян А. Е., Пикуз С. А.	739
Низкопороговый распад обыкновенной СВЧ-волны в присутствии крупномасштабных когерентных структур в разреженной плазме Попов А. Ю., Гусаков Е. З., Наговицын А. А., Симончик Л. В., Усачёнок М. С.	748

ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ПРИБЛИЖЕНИЯ ВРАЩАЮЩЕЙСЯ ВОЛНЫ НА СПЕКТРЫ ПОЛЯРИЗАЦИИ ДВУХУРОВНЕВОЙ СИСТЕМЫ В ПОЛИХРОМАТИЧЕСКОМ ПОЛЕ

А. Г. Антипов*, С. В. Уварова**

*Санкт-Петербургский государственный университет
199034, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 14 декабря 2022 г.,
после переработки 4 марта 2024 г.
Принята к публикации 14 марта 2024 г.

Спектры поляризации двухуровневой системы в полихроматическом поле получены в двух случаях — с использованием приближения вращающейся волны и без использования указанного приближения. Полученные спектры сравнивались по двум показателям — по усредненному отклонению по всему частотному диапазону и по отклонению на частоте перехода. Оба показателя позволяют дать количественную оценку искажения спектров поляризации, которые вносит использование приближения вращающейся волны. Получены зависимости указанных выше показателей от ключевых параметров модели — от центральной частоты, от отстройки, от ширины спектра воздействующего полихроматического поля. Полученные зависимости позволяют оценить границы применимости приближения вращающейся волны при заданном уровне допустимых искажений в спектре поляризации.

DOI: 10.31857/S0044451024110014

1. ВВЕДЕНИЕ

Приближение вращающейся волны (rotating wave approximation, RWA) — способ упрощения систем дифференциальных уравнений, описывающих физическую модель, применяемый в квантовой оптике и в области квантовых магнитных явлений. В системе уравнений отбрасываются компоненты, содержащие высокочастотные операторы, и при решении системы принимаются во внимание лишь низкочастотные, медленно протекающие во времени процессы. Как правило, возможность разделения существующих в модели процессов на высокочастотные и низкочастотные связано с наличием близких друг к другу частот, таких, например, как частота перехода между энергетическими уровнями атома и частота воздействующего поля в квантовой оптике. Разность этих близких частот дает низкочастотную составляющую, а их сумма — высокочастотную.

Первым примером успешного использования приближения вращающейся волны считается [1, 2] работа Блоха и Зигерта [3], в которой рассматривается уравнение Шредингера для частицы со спином $1/2$ в переменном магнитном поле с сильным перпендикулярным постоянным подмагничиванием. В качестве близких частот в этой модели выступают ларморова частота подмагничивающего поля и частота воздействующего переменного поля. При их совпадении наблюдается магнитный резонанс, когда вероятность перехода между состояниями с разными проекциями спина на направление подмагничивающего поля существенно возрастает. В работе [3] разность двух частот действительно полагается малой по сравнению с самими частотами, однако помимо этого предела при выводе приближенного решения уравнения Шредингера используются еще два важных допущения — малость отклонения поляризации воздействующего поля от круговой и малость амплитуды воздействующего поля по сравнению с величиной подмагничивающего поля. В определенном смысле работу [3] можно рассматривать не только как пример успешного

* E-mail: a.antipov@phys.spbu.ru

** E-mail: usvik2015@gmail.com

применения приближения вращающейся волны, но и как первую попытку обойти его, поскольку при выводе поправки к значению резонансной частоты, названной впоследствии сдвигом Блоха – Зигерта, учитываются малые величины, обратно пропорциональные частоте воздействующего поля.

Авторы работы [3] ни в ней, ни в последующих своих работах не применяют термин «приближение вращающейся волны» для обозначения использованного способа поиска приближенного решения рассматриваемого уравнения. Однако корни происхождения термина можно усмотреть именно в [3]: если воздействующее поле имеет круговую поляризацию, т. е. вращается в плоскости, перпендикулярной направлению подмагничивающего поля, уравнение Шредингера допускает точное аналитическое решение, полученное ранее Раби [4]. Если же имеет место отклонение от круговой поляризации, то точное решение оказывается невозможным и, чтобы найти приближенное решение, приходится прибегать к дополнительным допущениям, в частности — малости отклонения частоты воздействующего поля от ларморовой частоты подмагничивающего поля. Таким образом, решение Раби есть решение нулевого порядка в приближении вращающейся волны в задаче, рассмотренной в [3], в то время как Блох и Зигерт исследовали поправки уже первого порядка в указанном приближении. Раби в [4], разумеется, никакого приближения вращающейся волны не рассматривал, поскольку изначально решал более узкую задачу с круговой поляризацией воздействующего поля.

В дальнейшем, помимо области квантовых магнитных явлений, приближение вращающейся волны стало применяться и в квантовой оптике. Возможность подобного методологического переноса обусловлена идентичностью уравнений, математически описывающих, казалось бы, совершенно разные физические процессы (см. [5], разд. III.6). В квантовой оптике в качестве близких частот стали выступать частота воздействующего электромагнитного излучения и частота перехода между энергетическими уровнями атома. Однако долгое время единого мнения, как называть столь часто применяемое приближение, не было. Некоторые исследователи использовали термин «резонансное приближение» (*resonant approximation*) [6]. Другие обозначали подход как приближение вращающегося поля, что выглядит вполне оправданным, если речь идет о квантовых магнитных явлениях (иногда словосочетание «приближение вращающегося поля» встречается и в современных статьях [7, 8], но в дан-

ных случаях можно уже говорить, по-видимому, о терминологической ошибке). Зачастую исследователи вообще никак не обозначали используемое приближение, ограничиваясь математической формулировкой предела малой разности частот [9]. Одним из первых пропагандистов термина в современном виде можно признать Лэмба, который еще в 1957 г. использовал термин «приближение вращающейся волны» в своей статье [10], посвященной микроволновой спектроскопии атома гелия. Постепенно, особенно после публикации «Теории оптических мазеров» Лэмба [11] и справочника Хакена [5], термин «приближение вращающейся волны» стал вытеснять все остальные варианты и в 70-е годы стал общепринятым.

В настоящее время приближение вращающейся волны активно применяется при расчетах моделей в квантовой оптике и в области квантовых магнитных явлений. Например, при работе с такими моделями нанопотоники [12], как квантовые точки [13, 14] и квантовые провода [15]; при описании процессов, протекающих в оптоэлектронных устройствах [16]; при изучении переходов в ридберговских атомах во внешних полях [18] и др. Однако в подавляющем большинстве работ не приводится количественных оценок, насколько повлияло использование приближения вращающейся волны на конечный результат. Это вполне объяснимо, поскольку подразумевает выполнение расчетов без использования приближения вращающейся волны, что в большинстве ситуаций может быть весьма затруднительным из-за отсутствия точного аналитического решения и большого объема необходимых вычислений при реализации численных методов решения задачи.

В данной работе мы рассматриваем двухуровневую атомную систему в полихроматическом поле. Данная модель допускает аналитическое решение только в приближении вращающейся волны и при нулевой отстройке центральной частоты воздействующего поля от частоты перехода [17], в остальных случаях доступно только численное решение. Особенностью этой модели является то, что спектральный диапазон воздействующего поля может быть весьма широк и значительное влияние на границы применимости приближения вращающейся волны оказывает не только величина отстройки центральной частоты воздействующего поля от частоты перехода, но и количество гармоник полихроматического поля.

Мы оцениваем возмущение в спектрах поляризации, возникающее при использовании приближения вращающейся волны, по двум показателям —

по отклонению спектральной амплитуды, усредненному по всему частотному диапазону, и по отклонению спектральной амплитуды на частоте перехода. Получены зависимости обоих показателей от ключевых параметров модели, таких как центральная частота действующего поля, отстройка, количество полихроматических компонент. Данные зависимости позволяют установить, при заданной допустимой величине отклонения, применимо ли использование приближения вращающейся волны или нет для конкретного набора параметров модели. За счет экстраполяции определенные выводы можно сделать и для тех наборов параметров, при которых вычисления непосредственно не проводились. Полагаем, что предложенная методика оценки влияния приближения вращающейся волны может быть использована и для других моделей квантовой оптики.

Работа построена следующим образом. В разд. 2 рассматривается уравнение матрицы плотности применительно к многоуровневой атомной системе в полихроматическом поле, а также упрощенный вариант уравнения, возникающий в приближении вращающейся волны. В разд. 3 изложены детали проведенных численных расчетов исходного и упрощенного уравнений и вводятся критерии сравнения спектров поляризации, получаемых при решении уравнений. Результаты расчетов, в частности, зависимости величин искажений спектров, возникающих из-за использования приближения вращающейся волны, от ключевых параметров модели, обсуждаются в разд. 4. Выводы представлены в разд. 5.

2. ПРИБЛИЖЕНИЕ ВРАЩАЮЩЕЙСЯ ВОЛНЫ В СЛУЧАЕ ДВУХУРОВНЕВОЙ СИСТЕМЫ В ПОЛИХРОМАТИЧЕСКОМ ПОЛЕ

Рассмотрим уравнение матрицы плотности, описывающее двухуровневую систему — неподвижный атом в полихроматическом поле в дипольном приближении:

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] - i\hbar \Gamma \cdot \rho + i\hbar L, \quad (1)$$

где гамильтониан взаимодействия

$$H = E + V = \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & V_{12} \\ V_{12}^* & 0 \end{pmatrix}$$

содержит зависящие от времени недиагональные элементы

$$V_{12} = \hbar \tilde{V}_{12} e^{i\omega_{12}t} + \hbar \tilde{V}_{12}^* e^{-i\omega_{12}t},$$

$$\tilde{V}_{12}(t) = \frac{\Omega_{120}}{2} + \sum_{m=1}^{M_{12}} \Omega_{12m} \cos(m\Delta_{12}t), \quad (2)$$

матрицы

$$\Gamma = \begin{pmatrix} \gamma_1 & \Gamma_{12} \\ \Gamma_{12}^* & \gamma_2 \end{pmatrix}, \quad L = \begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 \\ 0 & \lambda_2 \end{pmatrix}$$

— соответственно матрицы релаксации и накачки, а символ « $\cdot$ » отвечает поэлементному перемножению матриц. В (2) Δ_{12} обозначает спектральный интервал между компонентами полихроматического поля на переходе между уровнями с индексами 1 и 2; M_{12} определяет количество спектральных компонент поля; Ω_{12m} , $m = 0, 1, \dots, M_{12}$ — их амплитуды.

Выполним преобразование, смещающее спектр недиагональных элементов матрицы плотности на частоту, определяемую разностью соответствующих энергетических уровней:

$$\rho = \tilde{\rho} \cdot e^{i\omega t}, \quad (3)$$

где матрица преобразования имеет вид

$$e^{i\omega t} = \begin{pmatrix} 1 & e^{i\omega_{12}t} \\ e^{i\omega_{21}t} & 1 \end{pmatrix},$$

$$\omega = \begin{pmatrix} 0 & \omega_{12} \\ \omega_{21} & 0 \end{pmatrix},$$

$$\omega_{12} = \frac{E_2 - E_1}{\hbar}.$$

После подстановки (3) в (1) и поэлементного домножения обеих частей равенства на $e^{-i\omega t}$ с учетом значения коммутатора диагональной матрицы E с матрицей плотности,

$$[E, \rho] = -\hbar\omega \cdot \rho,$$

и равенства

$$L \cdot e^{-i\omega t} = L$$

приходим к следующему уравнению:

$$i\hbar \frac{d\tilde{\rho}}{dt} = [V, \tilde{\rho} \cdot e^{i\omega t}] \cdot e^{-i\omega t} - i\hbar \Gamma \cdot \tilde{\rho} + i\hbar L.$$

Поскольку элементы матрицы ω определяются разностью энергетических уровней, для любых трех индексов $1 \leq j, k, l \leq 2$ имеем

$$\omega_{jk} + \omega_{kl} + \omega_{lj} = 0.$$

Это позволяет занести экспоненту под знак коммутатора:

$$\frac{d\tilde{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [V \cdot e^{-i\omega t}, \tilde{\rho}] - \Gamma \cdot \tilde{\rho} + L,$$

и, подставляя (2), получаем

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\rho}}{dt} = & -i [\tilde{V} \cdot e^{i(w-\omega)t}, \tilde{\rho}] - i [\tilde{V}^* \cdot e^{-i(w+\omega)t}, \tilde{\rho}] - \\ & - \Gamma \cdot \tilde{\rho} + L. \end{aligned} \quad (4)$$

В получившемся выражении имеются два коммутатора с разными частотными характеристиками. В первом коммутаторе присутствует медленно изменяющийся с течением времени оператор — характерные частоты определяются разностями частот возмущающего поля w и частот переходов ω . Во втором коммутаторе, напротив, имеется быстро осциллирующий оператор, характерные частоты последнего задаются суммой частот w и ω .

Приближение вращающейся волны заключается в отбрасывании второго, высокочастотного коммутатора в уравнении для матрицы плотности (4), в результате чего получившееся упрощенное уравнение описывает исключительно низкочастотные, медленно зависящие от времени процессы.

В качестве обоснования такого упрощения можно привести следующие соображения. Рассмотрим предел $w + \omega \rightarrow \infty$ такой, что

$$|w - \omega| \ll w + \omega, \quad (5)$$

$$M \cdot \Delta \ll w + \omega, \quad (6)$$

где матрицы M , Δ , характеризующие полихроматическое поле, для двухуровневой системы имеют вид

$$M = \begin{pmatrix} 0 & M_{12} \\ M_{12} & 0 \end{pmatrix}, \quad \Delta = \begin{pmatrix} 0 & \Delta_{12} \\ -\Delta_{12} & 0 \end{pmatrix}.$$

Матричные неравенства (5), (6) подразумевают, что любой недиагональный элемент матрицы из левой части по модулю много меньше любого недиагонального элемента матрицы в правой части. Для матриц размера 2×2 все сводится к соотношениям между единственными недиагональными элементами

$$\begin{aligned} |w_{12} - \omega_{12}| & \ll w_{12} + \omega_{12}, \\ M_{12}\Delta_{12} & \ll w_{12} + \omega_{12}. \end{aligned}$$

Требование (5) является универсальным и применимо, в том числе для монохроматического поля; требование (6) — специфично для полихроматического поля. В рассматриваемом пределе решение уравнения (4) можно представить в виде суммы компонент,

каждая из которых относится к одному из непересекающихся спектральных доменов с центрами на частотах

$$(w_{12} + \omega_{12})s, \quad s = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \quad (7)$$

причем взаимодействие между компонентами соседних доменов осуществляется исключительно за счет второго, высокочастотного коммутатора. Действительно, остальные составляющие уравнения (4) при достаточно больших значениях $w + \omega$ выполняют отображение лишь внутри отдельных спектральных доменов: домножение на $e^{i(w-\omega)t}$ не меняет существенно спектр $\tilde{\rho}$ в силу (5), домножение на $\tilde{V}$ — в силу (6), дифференцирование не порождает новых спектральных компонент, Γ и L вообще не зависят от времени.

Рассмотрим асимптотическое разложение решения уравнения (4) в пределе $w + \omega \rightarrow \infty$:

$$\tilde{\rho} = \rho^{(RWA)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)} + \dots, \quad (8)$$

где $\rho^{(l)}$, $l = 1, 2, \dots$ — слагаемые различной степени малости в рассмотренном пределе,

$$\rho^{(l)} \propto (w + \omega)^{-l}$$

или, для отдельных элементов матриц,

$$\rho_{jk}^{(l)} \propto ||w + \omega||^{-l} \propto (w_{12} + \omega_{12})^{-l}, \quad 1 \leq j, k \leq 2.$$

Можно утверждать, что первое слагаемое в асимптотическом разложении (8), не исчезающее при $w + \omega \rightarrow \infty$ и обозначенное $\rho^{(RWA)}$, относится исключительно к наиболее низкочастотному спектральному домену (с индексом $s = 0$), иначе говоря, его спектр обладает только частотами внутри диапазона

$$-(w_{12} + \omega_{12})/2 \dots (w_{12} + \omega_{12})/2.$$

Действительно, если бы это было не так, то, с учетом наличия дифференцирования по времени в (4), при рассмотрении любого иного спектрального домена мы бы получили бесконечно растущую при $w + \omega \rightarrow \infty$ левую часть, которую невозможно скомпенсировать вполне конечной правой частью.

Уравнение, определяющее функцию $\rho^{(RWA)}$, есть уравнение (4), рассмотренное замкнуто в низкочастотной области — спектральном домене с индексом $s = 0$. Это означает, что из уравнения (4) изъят высокочастотный коммутатор, поскольку он переводит $\rho^{(RWA)}$ в соседние спектральные домены с индексами $s = \pm 1$, где результату действия высокочастотного коммутатора на $\rho^{(RWA)}$ приравнивается произ-

водная по времени от $\rho^{(1)}$ в соответствующем домене — величина того же порядка малости по $w + \omega$ (нулевого), что и $\rho^{(RWA)}$:

$$\frac{d\rho_{s=\pm 1}^{(1)}}{dt} = -i \left[\tilde{V}^* \cdot e^{-i(w+\omega)t}, \rho^{(RWA)} \right]. \quad (9)$$

Таким образом, в уравнении, определяющем $\rho^{(RWA)}$, полностью исчезает зависимость от суммы частоты перехода ω и центральной частоты воздействующего поля w и остается зависимость лишь от их разности. Вводя отстройку

$$\delta = w - \omega = \begin{pmatrix} 0 & w_{12} - \omega_{12} \\ \omega_{12} - w_{12} & 0 \end{pmatrix},$$

получаем окончательно уравнение для матрицы плотности в приближении вращающейся волны:

$$\frac{d\rho^{(RWA)}}{dt} = -i \left[\tilde{V} \cdot e^{i\delta t}, \rho^{(RWA)} \right] - \Gamma \cdot \rho^{(RWA)} + L. \quad (10)$$

По сравнению с исходным уравнением (4) уравнение (10) оказывается существенно проще, позволяя в ряде случаев представить решение в аналитическом виде [17]. С точки зрения выполнения численных расчетов, уравнение (10) также является более предпочтительным, нежели (4). При численном расчете величина шага по времени определяется максимальной частотой, с которой флуктуируют элементы матрицы плотности. Поэтому при работе с уравнением (10), описывающим низкочастотные процессы, можно взять шаг по времени меньше по сравнению с тем шагом по времени, который требуется использовать при численном решении уравнения (4). В случаях, когда отношения максимальных частот и, следовательно, шагов по времени велики, объем необходимых вычислений может различаться на порядки. Именно поэтому приближение вращающейся волны столь популярно при численном решении уравнений матрицы плотности.

Выполнив замену

$$\rho^{(RWA)} = \tilde{\rho}^{(RWA)} \cdot e^{i\delta t},$$

можно сместить нулевую частоту спектра на частоту отстройки, тем самым заменив осциллирующий множитель в коммутаторе на чисто мнимую добавку к матрице релаксации

$$\frac{d\tilde{\rho}^{(RWA)}}{dt} = -i \left[\tilde{V}, \tilde{\rho}^{(RWA)} \right] - (\Gamma + i\delta) \cdot \tilde{\rho}^{(RWA)} + L.$$

3. ПРОВЕДЕННЫЕ РАСЧЕТЫ

Мы изучали влияние, которое оказывает приближение вращающейся волны на спектры

поляризации

$$P_j = -\frac{1}{2} \langle \rho_{12} e^{ij\Delta_{12}t} \rangle_t,$$

двухуровневой системы, определяющие дисперсию и поглощение среды. Для этого численно решалось уравнение (4) для матрицы плотности и полученные спектры недиагональных элементов матрицы плотности сравнивались с аналогичными спектрами, полученными в результате решения уравнения (10) для матрицы плотности в приближении вращающейся волны.

Для численного решения уравнений для матрицы плотности использовался метод Рунге–Кутты второго порядка. Задавалось начальное значение матрицы плотности

$$\rho_0 = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 0 \\ 0 & \frac{1}{2} \end{pmatrix},$$

после чего рекуррентно строилась последовательность матриц $\rho_k = \rho(k\Delta t)$, $k = 1, 2, \dots$, отражающая дискретную эволюцию матрицы плотности по времени с шагом Δt :

$$\rho_k = \rho_{k-1} + \frac{\Delta t}{2} [f((k-1)\Delta t, \rho_{k-1}) + f(k\Delta t, \rho_{k-1} + \Delta t f((k-1)\Delta t, \rho_{k-1}))], \quad (11)$$

где матрица

$$f(t, \rho) = -i \left[\tilde{V} \cdot e^{i\delta t}, \rho \right] - i \left[\tilde{V}^* \cdot e^{-i(2\omega+\delta)t}, \rho \right] - \Gamma \cdot \rho + L$$

использовалась при решении точного уравнения, а матрица

$$f(t, \rho) = -i \left[\tilde{V} \cdot e^{i\delta t}, \rho \right] - \Gamma \cdot \rho + L$$

— при решении уравнения в приближении вращающейся волны. В качестве не зависящих от времени матриц релаксации и накачки на уровни были взяты матрицы

$$\Gamma = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}, \quad L = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Для двухуровневой системы в матрицах M , Δ , Γ , w , ω , δ имеется всего один недиагональный элемент (M_{12} , Δ_{12} , $\dots$). При дальнейшем изложении нижние индексы у этих величин будут опускаться.

Величина шага по времени Δt выбиралась так, чтобы на период максимальной частоты спектрального домена (7) с индексом $s = 1$, т. е. $(4\pi/3)/(w+\omega)$, приходилось 50 шагов. При использовании приближения вращающейся волны в большинстве ситуаций такая величина шага является избыточной, однако, чтобы процедура расчета была максимально одинаковой в обоих случаях, величина $\Delta t = (4\pi/150)/(w+\omega)$ бралась при расчете как

по точной формуле, так и в приближении вращающейся волны. Количество шагов, которое необходимо выполнить при расчете, определяется длительностью переходных процессов, приводящих, в конечном итоге, к тому, что элементы матрицы плотности оказываются периодическими функциями с периодом, равным периоду $2\pi/\Delta$ частоты межкомпонентного сдвига полихроматического поля. Частота Δ межкомпонентного сдвига оказывается минимальной базовой частотой процессов, установившихся в системе. Длительность переходных процессов, выраженная в периодах базовой частоты, задается отношением Δ к усредненной величине элементов матрицы релаксации Γ , и при рассматриваемых параметрах достаточно было вычислить несколько периодов базовой частоты, чтобы устранить влияние переходных процессов на результаты расчетов. С учетом выбранной величины шага по времени Δt , количество необходимых шагов составляло порядка 10^5 – 10^6 .

После получения двух последовательностей матриц (11) из них выбирались матрицы, соответствующие последнему периоду $2\pi/\Delta$ базовой частоты полихроматического поля, и дискретным преобразованием Фурье вычислялись спектры недиагональных элементов ρ_{12} на частотах $0, \pm\Delta, \pm2\Delta, \dots$. В полученных спектрах, с точностью до коэффициента представляющих собой спектры поляризации двухуровневой системы, рассматривались отдельно вещественные и мнимые составляющие.

Искажения спектров, возникающие при использовании приближения вращающейся волны, количественно оценивались по двум характеристикам. Во-первых, вычислялось квадратичное отклонение по всему спектру поляризации, нормированное на полную энергию точного спектра,

$$d_{avg} = \sqrt{\frac{\sum_j (P_j^{(RWA)} - P_j)^2}{\sum_j P_j^2}}, \quad (12)$$

причем указанное отклонение можно отдельно рассчитывать как для вещественной части спектра поляризации, так и для мнимой. Отклонение d_{avg} , рассчитанное по формуле (12) для вещественной части спектра поляризации, дает количественную оценку усредненного по всему набору частот искажения спектра дисперсии, вызванного использованием приближения вращающейся волны, а рассчитанное для мнимой части спектра — аналогичную оценку усредненного искажения спектра поглощения.

Во-вторых, в ряде ситуаций для оценки искажений спектра поляризации также целесообразно использовать отклонение спектра на частоте перехода ($j = 0$):

$$d_{peak} = \left| \frac{P_0^{(RWA)} - P_0}{P_0} \right|. \quad (13)$$

Зачастую именно на частоте перехода в мнимой части спектра поляризации наблюдается выраженный пик, что дает возможность оценить влияние приближения вращающейся волны в этой части спектра поглощения. Для вещественной части спектра поляризации оценка по формуле (13), как правило, является мало полезной, поскольку значение дисперсии на частоте перехода оказывается близким к нулю. Так, при нулевой отстройке вещественная часть спектра поляризации в приближении вращающейся волны равна нулю на частоте перехода, а при использовании точной формулы (4) имеет малое, но отличное от нуля значение. Следовательно, оценка вещественной части спектра, выполненная по формуле (13), дает ровно единицу, что не отражает адекватно сложившуюся ситуацию.

Очевидно, что величина возмущений спектров, возникающих при использовании приближения, зависит от ряда параметров, таких как частота перехода, величина отстройки, ширина спектра полихроматического поля. Рассчитанные и представленные далее зависимости позволяют оценить корректность применения приближения вращающейся волны в том или ином случае.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

На рис. 1 показаны спектры поляризации, полученные в приближении вращающейся волны и без использования указанного приближения, для двухуровневой системы, находящейся под воздействием полихроматического поля, состоящего из 101 компоненты с одинаковыми амплитудами ($M = 50$, $\Omega = 0.2\Gamma$). Данный случай в приближении вращающейся волны был рассмотрен в работах [19,20] и выделяется наличием излучения на частоте перехода (отрицательный импульс в спектре $\text{Im } P$ при $j = 0$).

Обращают на себя внимание два явных отличия спектров в приближении вращающейся волны (показанных пунктиром) от точных спектров. Во-первых, спектр в приближении вращающейся волны обладает определенной четностью относительно частоты перехода $j \rightarrow -j$, точный спектр такой четности не демонстрирует. Это связано с тем, что у двухуровневой системы при нулевой отстрой-



Рис. 1. Спектры поляризации, полученные с использованием приближения вращающейся волны и без использования указанного приближения: a — вещественная часть поляризации; b — мнимая часть поляризации. $M = 50$, $\Omega = 0.2\Gamma$, $\Delta = 0.3\Gamma$, $\delta = 0$, $w = 150\Delta$

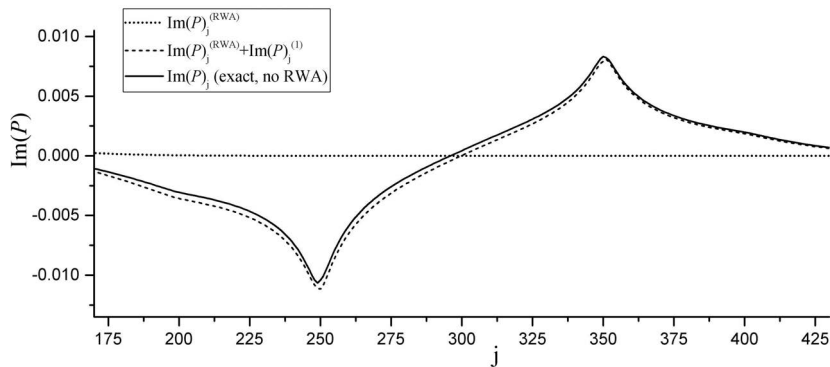


Рис. 2. Спектр поглощения в высокочастотной области спектра. $M = 50$, $\Omega = 0.2\Gamma$, $\Delta = 0.3\Gamma$, $\delta = 0$, $w = 150\Delta$

ке в приближении вращающейся волны отсутствует вещественная часть недиагональных элементов матрицы плотности [17]. В результате спектр поляризации характеризуется некоторой четностью — вещественная часть оказывается нечетной, а мнимая часть — четной. Если не использовать приближение вращающейся волны, то вещественная часть недиагональных элементов оказывается ненулевой и четность спектра нарушается. Во-вторых, в спектрах поляризации, рассчитанных в приближении вращающейся волны, полностью отсутствуют возмущения вблизи удвоенной частоты перехода

($j \approx (w + \omega)/\Delta = 2w/\Delta$), т. е. в спектральном домене с индексом $s = 1$ (см. (7)). Последнее неудивительно, поскольку, как отмечалось ранее, в решении $\rho^{(RWA)}$ уравнения (10) существенную роль играют лишь низкочастотные компоненты в спектральном домене с индексом $s = 0$. На рис. 2 подробнее показана высокочастотная спектральная область $s = 1$. Чтобы добиться лучшего приближения к точному решению в этой спектральной области требуется рассматривать следующую за $\rho^{(RWA)}$ поправку в асимптотическом разложении (8), вычисленную по формуле (9) и показанную на рис. 2 штриховой линией.

a

b

Рис. 3. (В цвете онлайн) Величина искажений спектров поляризации, возникающих при использовании приближения вращающейся волны, в зависимости от центральной частоты воздействующего поля w : *a* — усредненное по спектру искажение (d_{avg}) для обеих частей поляризации; *b* — искажение амплитуды импульса на частоте перехода (d_{peak}) спектра мнимой части поляризации. $M = 50$, $\Omega = 0.2\Gamma$, $\Delta = 0.3\Gamma$, $\delta = 0$

a

b

Рис. 4. (В цвете онлайн) То же, что на рис. 3, но для 9-компонентного полихроматического поля ($M = 4$)

Несколько менее явное различие спектров на рис. 1 заключается в искажениях вблизи частоты перехода ($j \approx 0$), в низкочастотном спектральном домене (7) с индексом $s = 0$. Амплитуда отрицательного пика спектра мнимой части поляризации на частоте перехода в приближении вращающейся волны оказывается приблизительно на 1.4 % больше, нежели подсчитанная по точной формуле (4). Кроме того, более точные расчеты показывают смещение пика вправо, в то время как приближение вращающейся волны предсказывает излучение именно на частоте перехода $j = 0$. Амплитуда и форма боковых положительных импульсов в спектре мнимой части поляризации также разнятся. Аналогичные искажения наблюдаются и в спектре вещественной части поляризации.

Куда менее очевидное различие спектров обнаруживается вблизи отрицательной удвоенной частоты перехода ($j \approx -(w + \omega)/\Delta = -2w/\Delta$). На вставках на рис. 1 *a*, *b* в увеличенном вертикальном масштабе

показаны спектры поляризации в спектральном домене с индексом $s = -1$. Подсчитанные по точной формуле спектры имеют отличные от нуля компоненты в этой области частот, хотя, конечно, величина возмущений почти на 2 порядка меньше той, что наблюдается в спектральном домене $s = 1$ при $2w/\Delta - M \lesssim j \lesssim 2w/\Delta + M$. Дисперсия возмущения на отрицательных частотах выше и затрагивает более широкую часть спектра. Кроме того, центр возмущения несколько смещен в сторону положительных значений частот, также как и спектр вблизи частоты перехода. Что касается спектра, полученного в приближении вращающейся волны, то на нем какие-либо возмущения при $j \approx -2w/\Delta$ практически полностью отсутствуют.

При увеличении частоты воздействующего поля (и частоты перехода при нулевой отстройке) возмущение при $j \approx 2w/\Delta$, наблюдаемое на рис. 1 *a*, *b*, смещается вправо, его величина уменьшается. Отклонения в спектрах в низкочастотном домене $s = 0$ вбли-

a

b

Рис. 5. (В цвете онлайн) Величина искажений спектров поляризации, возникающих при использовании приближения вращающейся волны, в зависимости от отстройки δ : *a* — относительное искажение d_{avg} ; *b* — энергии спектров поляризации $E_{Re P}$, $E_{Im P}$ без использования приближения и абсолютные величины искажений $E_{Re P}^{(d)}$, $E_{Im P}^{(d)}$. $M = 50$, $\Omega = 0.2\Gamma$, $\Delta = 0.3\Gamma$, $w = 150\Delta$

зи частоты перехода $j \approx 0$ также становятся меньше. Все это проявляется в монотонном уменьшении усредненного отклонения спектров d_{avg} , которое демонстрирует рис. 3*a*. Величина d_{avg} при больших частотах воздействующего поля оказывается обратно пропорциональной w (см. вставку на рис. 3*a*). Подобные зависимости наблюдаются для спектров как вещественной, так и мнимой частей поляризации.

При уменьшении частоты воздействующего поля величина искажений спектра при использовании приближения вращающейся волны возрастает. При приближении к частотам $w/\Delta \sim M$ условие (6) нарушается, величина искажений резко увеличивается, делая приближение вращающейся волны абсолютно непригодным для расчета спектров поляризации. Край областей спектров полихроматического поля $-M \lesssim j \lesssim M$ и $2w/\Delta - M \lesssim j \lesssim 2w/\Delta + M$ начинают перекрываться, в результате чего в спектрах дисперсии и поглощения происходят существенные изменения. Расчеты по точной формуле (4) вполне отражают указанные изменения, в то время как вычисления в приближении вращающейся волны — нет, поскольку вообще не описывают корректно спектры в частотном диапазоне $2w/\Delta - M \lesssim j \lesssim 2w/\Delta + M$. В итоге получается, что при малых w приближение вращающейся волны для полихроматического излучения оказывается неадекватным ситуации не при приближении к нулю, а уже при $w/\Delta \sim M$.

Искажение мнимой части поляризации на частоте перехода d_{peak} также стремится к нулю при больших частотах воздействующего поля (рис. 3*b*). Однако, как показывает вставка на рис. 3*b*, величина d_{peak} оказывается обратно пропорциональной не первой степени w , а ее квадрату. Более быстрое убывание погрешности приближения вращающейся волны по сравнению с наблюдаемым в среднем по спектру характерно исключительно для компоненты на частоте перехода ($j = 0$) и связано, по-видимому, с особой симметрией спектра, проявляющейся в пределе $w \rightarrow \infty$.

На рис. 4 показаны зависимости величин искажений спектров поляризации от w для случая девятикомпонентного ($M = 4$) полихроматического поля. Этот случай был рассмотрен в приближении вращающейся волны [17] и, в отличие от случая с $M = 50$, не имеет излучения на частоте перехода. Однако характер зависимостей d_{avg} , d_{peak} остается таким же, как и в случае более широкой спектральной полосы воздействующего поля. Искажение компоненты на частоте перехода (рис. 4*b*) убывает обратно пропорционально квадрату w , а искажение в среднем по спектру (рис. 4*a*) — обратно пропорционально первой степени w . Это указывает на фундаментальный характер зависимостей погрешности, вызываемой применением приближения вращающейся волны, в пределе больших частот воздействующих полей.

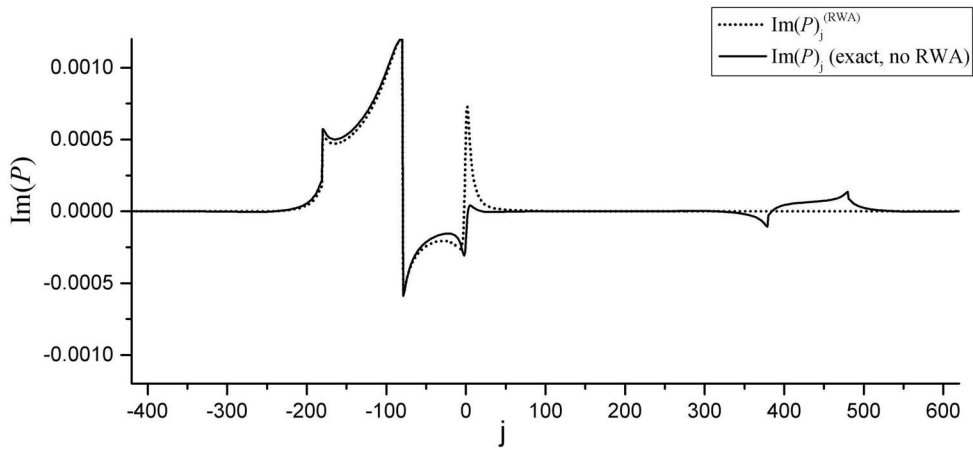


Рис. 6. Спектр мнимой части поляризации, полученный с использованием приближения вращающейся волны и без использования указанного приближения. $M = 50$, $\Omega = 0.2\Gamma$, $\Delta = 0.3\Gamma$, $\delta = 39$, $\omega = 150\Delta$. Максимальное отклонение наблюдается на частоте перехода ($j = 0$)

Особенностью зависимостей искажений спектров поляризации от отстройки δ (рис. 5), по сравнению с зависимостями от частоты воздействующего поля ω при нулевой отстройке, является то, что полная энергия спектров существенно зависит от изменяемого параметра. Когда величина отстройки δ достаточно велика и превышает половину ширины спектрального диапазона воздействующего полихроматического поля, т. е. частота перехода выходит за пределы указанного диапазона, полная энергия спектров поляризации, как вычисленная по точному уравнению (4), так и в приближении вращающейся волны (10), начинает уменьшаться экспоненциально. Это хорошо заметно на рис. 5b, где показаны полные энергии спектров поляризации

$$E_{\text{Re } P} = \sum_j (\text{Re } P_j)^2,$$

$$E_{\text{Im } P} = \sum_j (\text{Im } P_j)^2$$

и полные энергии отклонений спектров, возникающих при использовании приближения вращающейся волны,

$$E_{\text{Re } P}^{(d)} = \sum_j \left(\text{Re } P_j^{(RWA)} - \text{Re } P_j \right)^2,$$

$$E_{\text{Im } P}^{(d)} = \sum_j \left(\text{Im } P_j^{(RWA)} - \text{Im } P_j \right)^2,$$

в логарифмическом масштабе по вертикальной оси. При больших значениях отстройки скорость убывания полной энергии спектра поляризации замедляется — при $\delta \rightarrow \infty$ энергия вещественной части спектра уменьшается обратно пропорционально δ^2 , а энергия мнимой части — обратно пропорционально δ^4 . Если рассматривать достаточно широкий диапазон значений параметра δ , то энергия спектра по-

ляризации может отличаться на порядки. Таким образом, оказывается, что колебания относительной, усредненной по всему спектру величины искажений d_{avg} , наблюдаемые на рис. 5a, суть результат сочетания двух факторов. Во-первых, на d_{avg} влияют непосредственно отклонения, вызванные использованием приближения вращающейся волны, что учитывается в числителе выражения (12). Во-вторых, часть колебаний величины d_{avg} есть результат изменений полной энергии спектров поляризации, входящей в знаменатель выражения (12). Так, минимумы d_{avg} для спектра мнимой части поляризации, наблюдаемые при отстройках $\delta = \pm M\Delta$, суть последствия действия именно второго фактора — при этих значениях отстройки края спектрального диапазона приходятся на частоту перехода. Это вызывает резкое увеличение полной энергии спектра мнимой части поляризации, что, в конечном итоге, приводит к уменьшению относительной величины искажений. Максимум d_{avg} , обнаруживаемый при $\delta \approx 39 \pm 3$, напротив, есть результат действия первого фактора — при данных значениях отстройки возникает существенное отклонение спектра в приближении вращающейся волны от точного (см. рис. 6). Приближение вращающейся волны предсказывает здесь существование поглощения на частоте перехода, в то время как при использовании более точного уравнения (4) этого вывода сделать нельзя.

При больших значениях отстройки спектр поляризации распадается на две не взаимодействующих друг с другом частотных области:

$$-\frac{\delta}{\Delta} - M < j < -\frac{\delta}{\Delta} + M,$$

$$\frac{2\omega + \delta}{\Delta} - M < j < \frac{2\omega + \delta}{\Delta} + M.$$

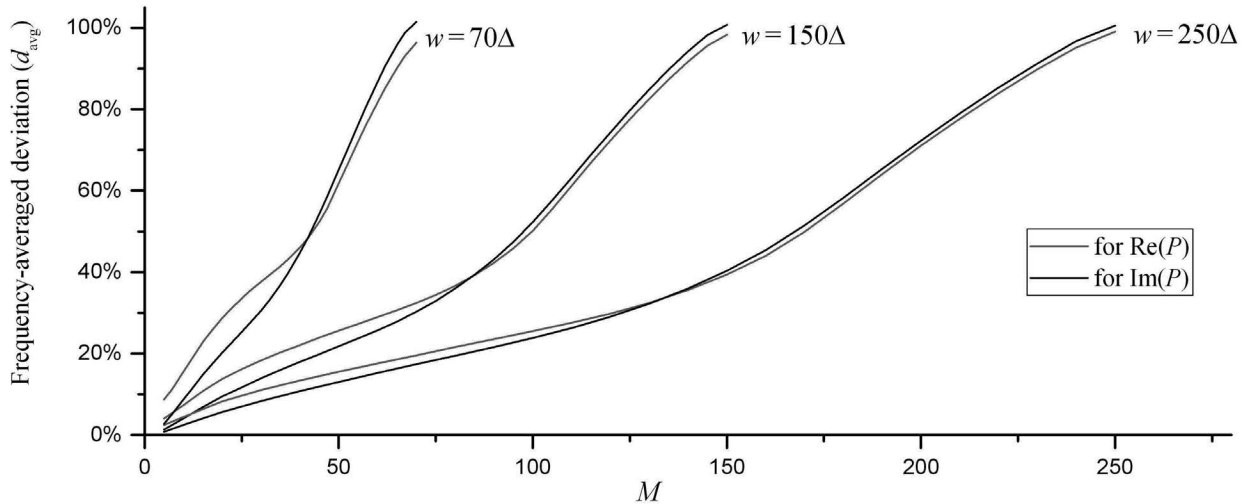


Рис. 7. (В цвете онлайн) Величина искажений спектров поляризации, возникающих при использовании приближения вращающейся волны, в зависимости от количества компонент полихроматического поля M при трех фиксированных значениях частоты воздействующего поля $w = 70\Delta$, 150Δ , 250Δ ; $\Omega = 0.2\Gamma$, $\Delta = 0.3\Gamma$, $\delta = 0$

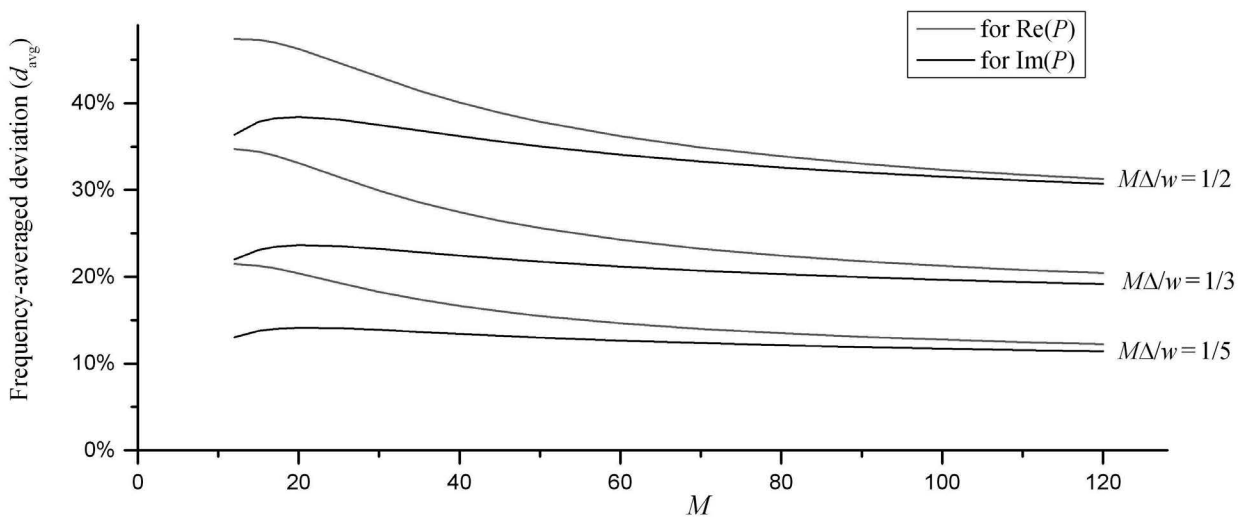


Рис. 8. (В цвете онлайн) Величина искажений спектров поляризации, возникающих при использовании приближения вращающейся волны, в зависимости от количества компонент полихроматического поля M . Частота воздействующего поля w здесь изменяется пропорционально M , тем самым фиксированной оказывается доля спектрального диапазона, перекрываемого полосой полихроматического поля (рассмотрены доли $1/5$, $1/3$, $1/2$); $\Omega = 0.2\Gamma$, $\Delta = 0.3\Gamma$, $\delta = 0$

Спектр в первой области с высокой степенью точности описывается приближением вращающейся волны, а спектр во второй, напротив, полностью отсутствует в данном приближении. Энергии спектров областей при $\delta \gg 2\omega$ практически равны, поэтому d_{avg} , как видно на рис. 5а, асимптотически стремится к $1/\sqrt{2} \approx 70.7\%$ при $\delta \rightarrow \infty$. Столь высокий уровень искажений в этом пределе связан с нарушением условия применимости приближения вращающейся волны (5). Такое поведение усредненного отклонения спектра при $\delta \rightarrow \infty$ характерно как для вещественной, так для мнимой части поляризации.

При отрицательных значениях отстройки при приближении к $M\Delta - \omega$ спектральные области начинают перекрываться, нарушается условие применимости приближения вращающейся волны (6), в результате указанное приближение становится совершенно неадекватным, выдавая спектры, сильно отличающиеся от подсчитанных исходя из точного уравнения (4).

На рис. 7 показаны зависимости относительных величин искажений спектров поляризации, возникающих при использовании приближения вращающейся волны, d_{avg} от количества компонент M

воздействующего полихроматического поля при нескольких значениях центральной частоты w . Центральная частота воздействующего поля w определяет расстояние между спектральными областями, а количество компонент M , при фиксированном значении расстояния между компонентами Δ , — ширину спектральных областей. С ростом M относительные величины искажений спектров поляризации монотонно возрастают, достигая при $M = w/\Delta$ значений, близких к 100 %. Последнее означает, что когда края спектральных областей начинают перекрываться, энергия отклонения спектров, вызванных использованием приближения вращающейся волны, оказывается близкой к энергии исходного, точного спектра. Очевидно, что условие (6) здесь нарушается, и приближение вращающейся волны в этом случае дает неудовлетворительные результаты.

Схожий вид зависимостей $d_{avg}(M)$ при различных значениях w с точностью до растяжения вдоль горизонтальной оси на рис. 7 указывает на то, что искажения спектров в приближении вращающейся волны определяются не количеством компонент в воздействующем полихроматическом поле как таковым, а долей в спектральном диапазоне между частотами $\omega - w$ и $\omega + w$, которую занимает спектр полихроматического поля. Это подтверждает рис. 8, где показаны графики зависимости $d_{avg}(M)$ не при фиксированных w , а при фиксированных отношениях $M\Delta/w$, т. е. при фиксированных долях спектрального диапазона, который занимает спектр полихроматического поля. Если w изменяется пропорционально M , вид спектров поляризации слабо меняется, также как и величины искажений спектров, вызванных использованием приближения вращающейся волны. Отметим, что при достаточно больших M и w величина $d_{avg}(M)$ стабилизируется на уровне, приблизительно равном двум третям от отношения $M\Delta/w$.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы выполнили количественную оценку влияния, которое оказывает использование приближения вращающейся волны на спектры поляризации двухуровневой системы в полихроматическом поле. Вычислено усредненное по всему частотному диапазону отклонение спектров, вызываемое применением приближения вращающейся волны, от ряда параметров системы, а именно — от частоты воздействующего поля w , от величины отстройки δ и от количества компонент воздействующего поля M .

Величина усредненного отклонения спектров оказалась обратно пропорциональной частоте воз-

действующего поля, что подтверждает предположение о том, что первая поправка к матрице плотности в асимптотическом разложении в пределе $w + \omega \rightarrow \infty$ имеет порядок $(w + \omega)^{-1}$. Однако отклонение на частоте перехода продемонстрировало более быстрое убывание с увеличением частоты воздействующего поля, а именно — оказалась обратно пропорциональной квадрату частоты.

Зависимость усредненного отклонения спектров от отстройки центральной частоты полихроматического поля w от частоты перехода ω не имеет четких тенденций, когда величина отстройки мала относительно суммы частоты перехода и средней частоты воздействующего поля, и в значительной мере определяется полной энергией спектра поляризации. Локальный минимум отклонения спектров наблюдается, если частота перехода соответствует границе воздействующего полихроматического поля. При больших отстройках условие применимости приближения вращающейся волны нарушается и отклонения спектров асимптотически стремятся к $1/\sqrt{2}$.

Что касается влияния количества компонент воздействующего полихроматического поля на усредненное отклонение спектров, то оно проявляется опосредованно, через долю частотного диапазона, которую занимает полихроматическое поле в диапазоне частот от $\omega - w$ до $\omega + w$. С увеличением количества компонент при фиксированном расстоянии между ними доля увеличивается, что приводит к увеличению отклонений. Если же доля фиксирована, например, за счет роста центральной частоты воздействующего поля пропорционально количеству компонент, то величина отклонений стабилизируется на уровне, приблизительно равном $2/3$ от доли.

ЛИТЕРАТУРА

1. G. S. Agarwal, Phys. Rev. A **4**, 1778 (1971).
2. D. F. Walls, Phys. Lett. A **42**, 217 (1972).
3. F. Bloch and A. Siegert, Phys. Rev. **57**, 522 (1940).
4. I. I. Rabi, Phys. Rev. **51**, 652 (1937).
5. H. Haken, *Handbuch der Physik*, Springer, Berlin (1970), Vol. XXV/2C.
6. L. E. Estes, T. H. Keil, and L. M. Narducci, Phys. Rev. **175**, 286 (1968).
7. M. S. Conradi, S. A. Altobelli, S. J. Sowko et al., J. Magn. Res. **288**, 23 (2018).

8. E. Jericha, C. Gösselsberger, H. Abele et al., *Sci. Rep.* **10**, 5815 (2020).
9. E. T. Jaynes and F. W. Cummings, *Proc. IEEE* **51**, 89 (1963).
10. W. E. Lamb, Jr., *Phys. Rev.* **105**, 559 (1957).
11. W. E. Lamb, Jr., in *Quantum Optics and Electronics*, Gordon and Breach, New York (1965), p. 329.
12. C. Tserkezis, A. I. Fernández-Domínguez, P. A. D. Gonçalves et al., *Rep. Prog. Phys.* **83**, 082401 (2020).
13. I. Maldonado, J. Villavicencio, L. D. Contreras-Pulido, E. Cota, and J. A. Maytorena, *Phys. Rev. B* **97**, 19531 (2018).
14. G. Rastelli and M. Governale, *Phys. Rev. B* **100**, 085435 (2019).
15. S. Huber, M. Buchhold, J. Schmiedmayer, and S. Diehl, *Phys. Rev. A* **97**, 043611 (2018).
16. C. Jirauschek, M. Riesch, and P. Tzenov, *Adv. Theory Simul.* **2**, 1900018 (2019).
17. А. Г. Антипов, С. А. Пулькин, А. С. Сумароков и др., *Опт. и спектр.* **118**, 977 (2015) [A. G. Antipov, S. A. Pulkin, A. S. Sumarokov et al., *Opt. Spectr.* **118**, 945 (2015)].
18. T. Armon and L. Friedland, *Phys. Rev. A* **102**, 052817 (2020).
19. A. G. Antipov, A. A. Kalinichev, S. A. Pulkin et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **735**, 012029 (2016).
20. А. Г. Антипов, Н. И. Матвеева, С. А. Пулькин, С. В. Уварова, *Опт. и спектр.* **121**, 947 (2016) [A. G. Antipov, N. I. Matveeva, S. A. Pul'kin, and S. V. Uvarova, *Opt. Spectr.* **121**, 879 (2016)].

О ВЛИЯНИИ ХАРАКТЕРИСТИК ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА НА ИЗЛУЧЕНИЕ ГАРМОНИК ОДНОПРОХОДНЫХ ЛАЗЕРОВ НА СВОБОДНЫХ ЭЛЕКТРОНАХ

*К. В. Жуковский **

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 25 мая 2023 г.,
после переработки 14 апреля 2024 г.
Принята к публикации 14 апреля 2024 г.

В настоящее время во многих областях науки и техники все шире применяется когерентное излучение лазеров на свободных электронах (ЛСЭ). В прикладных и теоретических исследованиях важным эффектом является нелинейная генерация второй гармоники в материалах и на поверхностях как реакция на их облучение. В качестве источников света используют ЛСЭ, которые генерируют когерентное излучение в диапазоне от видимого до рентгеновского. При этом вторая гармоника собственно источника, ЛСЭ, является нежелательной, так как она маскирует исследуемый отклик на той же частоте. Нами аналитически исследуется влияние параметров электронного пучка на излучение ЛСЭ; проводится исследование генерации гармоник, в особенности второй; анализируются основные факторы, вызывающие появление второй гармоники в спектре ЛСЭ. Выясняется влияние параметров пучка: сечения, эмиттанса, параметров Твисса и разброса энергии, по отдельности и вместе на длину усиления и генерацию гармоник ЛСЭ на примере хорошо документированного ЛСЭ LEUTL. Анализируется влияние этих параметров на мощности излучения гармоник, в особенности второй. Исследуется также влияние гармоники поля ондулятора на излучение гармоник ЛСЭ. Предлагается повысить разброс энергий электронов в два раза до максимально возможного значения, обеспечивающего группировку электронов и одновременно уменьшение содержания второй гармоники в спектре ЛСЭ на один-два порядка. Также предлагается использовать слабую гармонику поля ондулятора с той же целью — подавить гармонику ЛСЭ.

DOI: 10.31857/S0044451024110026

1. ВВЕДЕНИЕ

Ондуляторное излучение (ОИ) представляет собой излучение релятивистских электронов в пространственно-периодическом магнитном поле. Оно было предсказано Гинзбургом [1] в середине XX века и вскоре после этого получено Мотцом [2]. ОИ от сгустков электронов некогерентное, когда длина сгустка значительно больше длины волны; это происходит в большинстве случаев, но не всегда. Когерентное ОИ от электронов в сгустках, длина которых сравнима или меньше длины волны, было также предсказано Гинзбургом и получено Мадэйем [3] в лазере на свободных электронах (ЛСЭ) в миллиметровом диапазоне. В XXI веке, с появлением новых технических возможностей и пучков высокого качества, ЛСЭ продвинулись в рентгеновский диапазон и активно используются в качестве источни-

ков излучения во многих областях. ЛСЭ представляют собой источники излучения четвертого поколения и являются логичным развитием источников синхротронного излучения (СИ) в XX веке [4–7]; теория ЛСЭ и практика их применения представлены в обширной литературе (см., например, [8–14]). Не останавливаясь на деталях, скажем, что когерентное излучение в ондуляторах ЛСЭ происходит от микробанчей электронов, отстоящих друг от друга на длину волны излучения, а сами микробанчи имеют размер менее длины волны излучения [1]. Основными приборами в современном ЛСЭ является ускоритель и ондулятор; первый ускоряет электроны до высокой энергии, сохраняя малый разброс энергии и эмиттанс, второй представляет систему генерации и излучения в ЛСЭ. Группировка электронов в микробанчи происходит под действием силы Лоренца волны электромагнитного излучения в ондуляторе; она ускоряет электроны, находящиеся позади узлов волны ОИ, и замедляет электроны, находящиеся впереди узлов волны ОИ. Электроны в

* E-mail: zhukovsk@physics.msu.ru

ондуляторе группируются не только на длине волны излучения; группировка идет также и на длинах волн гармоник, но слабее, чем на длине волны основного тона. Наиболее распространенный тип ондулятора — плоский. На оси плоского ондулятора излучение с соседних периодов приходит в фазе для нечетных гармоник и в противофазе для четных. Таким образом, в плоском ондуляторе на оси излучаются в идеале только нечетные гармоники, а четные подавлены. В реальности пучок электронов имеет конечное сечение и на оси излучаются как нечетные, так и четные гармоники. В ондуляторах с двоякопериодическим полем слабая гармоника основного поля ондулятора позволяет в определенных пределах регулировать излучение гармоник ОИ. Кроме того, в реальных ондуляторах всегда присутствует гармоника поля хотя бы потому, что идеальное моногармоническое поле во всем зазоре ондулятора не удовлетворяет уравнениям Максвелла.

Гармоники излучения ЛСЭ могут быть полезны, когда требуется более высокочастотное излучение от электронов данной энергии. Однако не всегда присутствие гармоник играет положительную роль. Например, вторая гармоника ЛСЭ маскирует и затрудняет исследование нелинейного отклика второй гармоники (SHG) [15] среды при исследовании свойств материалов [16–18], пленок и поверхностей [19] в физике [20] и химии [21], органических соединений [22, 23] и др. В XUV-диапазоне [24] генерация четных гармоник наблюдалась при облучении $Ti\ M_{2,3}$, в видимом диапазоне [25, 26] нелинейная генерация четных гармоник основного тона возникает при исследовании физико-химических свойств молекул, пленок и поверхностей и может указывать на нарушение внутренней симметрии исследуемых образцов [21, 23]; нелинейный отклик в рентгеновском диапазоне используется при исследованиях с помощью ядерного резонанса. Поскольку мощность отклика второй гармоники SHG естественно значительно меньше мощности источника, содержание второй гармоники ЛСЭ должно быть минимальным.

Мощности гармоник ЛСЭ могут быть рассчитаны аналитически с помощью формализма коэффициентов Бесселя с учетом всех основных факторов в обобщенных функциях Бесселя: параметров ондулятора, параметров пучка и его отклонения от оси, эмиттанса, фокусировки и т. д. Аналитические выражения для различных ондуляторов с учетом гармоник поля приведены во многих работах (см., например, [27–33]). С их использованием можно считать мощность спонтанного излучения с учетом

основных потерь, но в ЛСЭ рассчитать точно эволюцию мощности гармоник по длине ондуляторов невозможно из-за сложности комплекса уравнений для зарядов и полей и огромного числа электронов. Расчет в моделях ЛСЭ проводится численно с помощью специальных программ (см., например, [34–36] и др.). При этом результаты численного решения уравнений движения и излучения электронов в магнитном поле ондулятора с учетом гармоник поля и взаимодействия с полем волны ОИ согласуются с экспериментальными значениями мощности, измеренной по длине ондуляторов, с точностью до порядка величины для мощности основного тона; для гармоник разброс значений больше [37–41]. Недостатком численных моделей является то, что они не дают возможность выделить и проанализировать в отдельности влияние факторов на генерацию гармоник ЛСЭ.

Мы используем приближенное аналитическое описание экспоненциального роста мощности гармоник в ЛСЭ, которое включает точно рассчитанные коэффициенты Бесселя. Последние определяют параметры Пирса гармоник, их генерацию и дают возможность выявить роль различных факторов в излучении гармоник. Используя аналитические выражения, мы исследуем влияние параметров ондулятора и пучка на излучение ЛСЭ с целью по возможности уменьшить мощность излучения второй гармоники и сохранить при этом мощность основного тона. Ниже мы исследуем влияние сечения, эмиттанса и разброса энергий пучка на излучение ЛСЭ.

2. ПРИБЛИЖЕННОЕ АНАЛИТИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ МОЩНОСТИ ГАРМОНИК ЛСЭ

Основные формулы мощности для расчета излучения гармоник ЛСЭ неоднократно публиковались ранее, например, в [27–33]; результаты при этом согласуются с численными моделями [34, 35, 42–45] и данными всех основных ЛСЭ в мире в диапазоне от видимого до жесткого рентгеновского [37–41]. Ниже мы приведем только основные выражения для мощности гармоник ЛСЭ в насыщении. Гармоника n ОИ под эффективным углом Θ к оси ондулятора имеет следующую длину волны:

$$\lambda_n = \frac{\lambda_u}{2n\gamma^2} \left(1 + \frac{k^2}{2} + (\gamma\Theta)^2 \right), \quad (1)$$

где

$$k = H_0 \lambda_u e / 2\pi m c^2 \approx 0.9337 H_0 [\text{Тл}] \lambda_u [\text{см}]$$

— ондуляторный параметр, e — заряд электрона, λ_u — период ондулятора, H_0 — амплитуда его по-

ля. Для плоского ондулятора коэффициенты Бесселя $f_{n;x,y}$ x - и y -поляризаций n -й гармоники с учетом ее бетатронного расщепления имеют вид [46]

$$\begin{aligned} f_{n;x} &\approx \sum_p \tilde{J}_p \left| (J_{n+1}^n + J_{n-1}^n) + J_n^n \frac{2}{k} \gamma \theta \cos \varphi \right|, \\ f_{n;y} &\approx \sum_p \left(\tilde{J}_p \left| J_n^n \frac{2}{k} \gamma \theta \sin \varphi \right| + \right. \\ &\quad \left. + J_n^n \frac{\sqrt{2}\pi y_0}{\lambda_u} (\tilde{J}_{p+1} - \tilde{J}_{p-1}) \right), \end{aligned} \quad (2)$$

где y_0 — сечение пучка электронов, p — бетатронная гармоника в линии спектра n , φ — полярный угол, θ — азимутальный угол от оси, J_n^m и $\tilde{J}_p$ — обобщенные функции типа Бесселя:

$$\begin{aligned} J_n^m &= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\alpha}{2\pi} \times \\ &\times \exp \left\{ i \left(n\alpha + \frac{mk^2 \left(\frac{\sin(2\alpha)}{4} + \frac{2}{k} \gamma \theta \cos \varphi \sin \alpha \right)}{1 + \gamma^2 \theta^2 + (k^2/2)} \right) \right\}, \\ \tilde{J}_p &= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\alpha}{2\pi} \times \\ &\times \exp \left\{ i \left(p\alpha - \frac{4\pi\theta y_0 \gamma^2 \sin \alpha}{\lambda_u (1 + k^2/2)} - \frac{\pi^2 \gamma y_0^2 k \sin(2\alpha)}{\sqrt{2}\lambda_u^2 (1 + k^2/2)} \right) \right\}. \end{aligned} \quad (3)$$

Коэффициенты Бесселя (2) и входящие в них обобщенные функции Бесселя (3) определяют генерацию гармоник и зависят от параметров пучка и ондулятора сложным образом как явно, так и неявно. Ондуляторный параметр k вместе с углом θ входит в множитель $\sim \frac{2}{k} \gamma \theta$ при функции Бесселя четных гармоник J_n^n ; сечение пучка входит множителем y_0 в бетатронный вклад четных гармоник

$$f_{n;y} \propto \sum_p J_n^n \frac{\sqrt{2}\pi y_0}{\lambda_u} (\tilde{J}_{p+1} - \tilde{J}_{p-1});$$

угловой вклад $\sim \frac{2}{k} \gamma \theta$ присутствует также в аргументе функции Бесселя J_n^m , а сечение пучка входит в аргументы бетатронных функций Бесселя $\tilde{J}_p$ как независимо, так и совместно с зависимостью от угла θ . С учетом угла электрон-фотонного взаимодействия $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$ мы оценили, что для всех основных ЛСЭ с сечением пучков $\sigma_{x,y} \approx 25\text{--}250$ мкм аргумент

$$\frac{4\pi\theta y_0 \gamma^2}{\lambda_u (1 + k^2/2)}$$

на порядок больше, чем аргумент

$$\frac{\pi^2 \gamma y_0^2 k}{\sqrt{2}\lambda_u^2 (1 + k^2/2)}.$$

Итак, коэффициенты Бесселя f_n имеют сложную зависимость от многих параметров ондулятора и пучка. Ниже мы проанализируем их влияние на излучение ЛСЭ LEUTL.

Важно, что в коэффициентах Бесселя для ЛСЭ нужно учитывать в угловой зависимости эффективный угол $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$, под которым электроны в среднем «видят» излучение на длине усиления ЛСЭ и взаимодействуют с ним [27,46]. Угловой вклад от $\bar{\theta}$ является определяющим, так как этот угол обычно значительно больше, чем угол расходимости. В этом отличие от коэффициентов Бесселя для спонтанного ОИ, где определяющими являются расходимость пучка $\theta_{x,y}$ и угол между направлением на наблюдателя и осью ондулятора. Таким образом, в коэффициентах Бесселя для ЛСЭ сечение пучка $\sigma_{x,y}$ играет роль не только в бетатронных вкладах, которые имеют порядок $1/\gamma$ и малы в релятивистском случае, но и в угловых вкладах, которые определяют генерацию четных гармоник ЛСЭ. В длинном ондуляторе рентгеновских ЛСЭ возможно также отклонение пучка от оси, сравнимое с сечением пучка, (см. например, [37]). Подчеркнем зависимость величин не от эмиттанса $\varepsilon_{x,y}$, а от сечения

$$\sigma_{x,y} = \sqrt{\varepsilon_{x,y} \beta_{x,y}},$$

где

$$\beta_{x,y} = \varepsilon_{x,y}/\theta_{x,y}^2 = \sigma_{x,y}^2/\varepsilon_{x,y}$$

— параметр Твисса, и от угла θ , который включает $\bar{\theta}$; эмиттанс пучка

$$\varepsilon_{x,y} = \sigma_{x,y} \theta_{x,y}$$

в этом контексте вторичен. Бетатронные колебания в пучке конечного сечения приводят к расщеплению линии спектра гармоники излучения n на бетатронные гармоники p , которые разделены частотой, значительно меньшей частоты излучения,

$$\omega_\beta \approx \frac{\omega_n k}{\sqrt{2}n\gamma} \ll \omega_n,$$

см. [47], при $\gamma \gg 1$.

В теории вынужденного излучения важную роль играет безразмерный параметр Пирса. Он вводится в процессе приведения к безразмерному виду уравнений движения электронов и усиления волны таким образом, что продольная координата нормируется на волновое число излучаемой волны $k = \omega/c$. При этом в линейном приближении волна усиливается по следующему закону: $A(z) \propto \exp(Ckz)$, где C — параметр Пирса. Изначально параметр Пирса C был введен для излучения черенковского типа и приборов клистронного типа и только потом для

ЛСЭ и циклотронных мазеров [48]. В теории ЛСЭ продольная координата по оси прибора нормируется на волновое число ондулятора $k_u = 2\pi/\lambda_u$. Соответственно, в линейном приближении волна усиливается по закону

$$A(z) \propto \exp(\rho k_u z),$$

где ρ — параметр Пирса в ЛСЭ, который в англоязычных статьях называется иногда FEL-parameter. Параметр Пирса ρ в ЛСЭ отличается от параметра Пирса C нормировкой. Например, параметр Пирса ЛСЭ ρ определяет длину усиления:

$$L_{n,g} \approx \frac{\lambda_u}{4\pi\sqrt{3}n^{1/3}\rho_n}, \quad (4)$$

а электронный КПД ЛСЭ в режиме насыщения просто совпадает с ρ с точностью до корня из двойки [8–11], так что максимальная (впрочем, не обязательно достижимая) мощность n -й гармоники записывается следующим образом:

$$P_{F,n} \approx \sqrt{2}\rho_n P_{beam},$$

где $P_{beam} = EI_0$ — мощность пучка электронов. Здесь есть отличие от параметра Пирса C , в терминах которого ученые определяют КПД устройства как $C\gamma^2$, где γ — релятивистский масс-фактор электрона. Параметр пирса ρ для ЛСЭ записывается следующим образом (см. [8–14]):

$$\rho_n = \frac{1}{2\gamma} \left(\frac{J}{4\pi i} \right)^{1/3} (\lambda_u k |f_n|)^{2/3}, \quad (5)$$

где f_n — коэффициент Бесселя (2) n -й гармоники, $J = I_0/\Sigma$ — плотность тока, I_0 — электронный ток в пучке сечения $\Sigma = 2\pi\sigma_x\sigma_y$, $i[A] = 4\pi\epsilon_0 mc^3/e \approx 1.7045 \cdot 10^4$ — константа тока Альфвена. Потери из-за конечного сечения пучка, его эмиттанса и разброса энергий увеличивают длину усиления L_g и уменьшают мощность гармоник $P_{n,F}$, которая, кроме того, не всегда достижима из-за насыщения всего ЛСЭ, которое обычно наступает ранее насыщения гармоник. Коррекция длины усиления (и, как следствие, коррекция мощности) лучше всего описывается формулой М. Кси (Ming Xie) [49, 50]:

$$L_g = L_{g0}(1 + \Lambda),$$

где Λ — полином дробной степени с девятнадцатью коэффициентами. С этим неплохо согласуются формулы Д. Даттоли (G. Dattoli) [51, 52] для коррекции

параметра Пирса, длины усиления и мощности:

$$\rho_n \rightarrow \frac{\rho_n}{\kappa}, \quad \kappa = \sqrt[3]{1 + \frac{\lambda_u \lambda_n}{16\pi\rho_n\Sigma}}, \quad (6)$$

$$L_{n,g} \rightarrow L_{n,g}\kappa\Phi_n, \quad (7)$$

$$L_s \approx 1.07L_g \ln \frac{9\eta_1 P_F}{P_0}, \quad (8)$$

$$P_{n,F} \approx \sqrt{2} \frac{\eta_1}{\kappa^2} \rho_n P_{beam}. \quad (9)$$

Большая чувствительность электрон-фотонного взаимодействия на длинах волн гармоник n к разбросу энергий электронов и другим потерям учитываются феноменологически. Так, в (6) разброс энергий σ_ϵ и эмиттанс $\epsilon_{x,y}$ учитываются коэффициентами Φ и η , откалиброванными нами ранее по данным всех основных действующих ЛСЭ в диапазонах от видимого до рентгеновского [29–31]:

$$\Phi_n \approx \left(\zeta \sqrt{n} + 0.165 \mu_{\epsilon,n}^2 \right) e^{0.034 \mu_{\epsilon,n}^2},$$

$$\mu_{\epsilon,n} \approx \frac{2\sigma_\epsilon}{n^{1/3} \tilde{\rho}_n}, \quad (10)$$

$$\eta_n \approx 0.942 \left(e^{-\Phi_n(\Phi_n - 0.9)} + \frac{1.57(\Phi_n - 0.9)}{\Phi_n^3} \right).$$

Коэффициент ζ приближенно передает зависимость от параметров Твисса и эмиттанса и имеет сложное выражение [52]; в целом он близок к единице, $\zeta \approx 1$ –1.05, для большинства современных установок с малым эмиттансом, $\gamma\epsilon \sim 10^{-6}$ м·рад, и только для пучков с большим эмиттансом, $\gamma\epsilon > 10^{-5}$ м·рад, имеем $\zeta \approx 1.1$ –1.4, что увеличивает длину усиления. Начальная мощность дается в ЛСЭ от источника затравочного излучения или в ЛСЭ с самоусилением спонтанного излучения SASE от когерентной составляющей шума электронного банча:

$$P_{0,n} \approx 1.6\rho_n^2 e 4\pi c P_{beam} / I_0 \lambda_n,$$

см. [53]. Мощность гармоник обычно ограничена насыщением основного тона и всего ЛСЭ, которое наступает ранее насыщения гармоник и сопровождается ростом индуцированного разброса энергий электронов. Поэтому в режиме нелинейного роста мощность насыщения n -й гармоники обычно меньше, чем $P_{F,n}$; на длине насыщения

$$L_s \approx 1.07L_g \ln \frac{9\eta_1 P_{F,1}}{P_{0,1}}$$

оценка мощности гармоник:

$$P_{n,F} \approx \eta_n \frac{P_{1,F}}{\sqrt{n}} \left(\frac{f_n}{nf_1} \right)^2,$$

см. [51, 52]. В ней не учитываются осцилляции мощ-

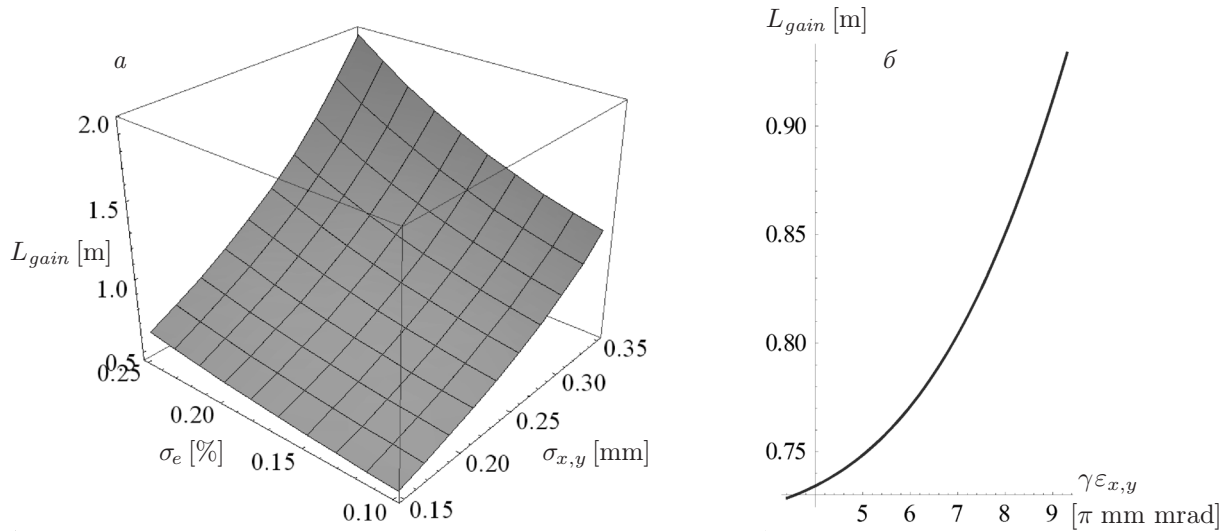


Рис. 1. Зависимости длины усиления ЛСЭ LEUTL от разброса энергий σ_e и сечения $\sigma_{x,y} \equiv \sigma$ пучка электронов с заданным параметром Твисса $\beta = 1.5$ м (а) и от эмиттанса пучка $\gamma\epsilon_{x,y}$ (б) в эксперименте с сечением $\sigma_{x,y} = 0.25$ мм; разброс энергий электронов $\sigma_e = 0.001$; ток $I_0 = 210$ А

ности в насыщении, а также продолжающийся медленный рост мощности гармоник после насыщения основного тона. Перечисленные эффекты учтены феноменологически в формуле, выработанной нами на основе анализа поведения гармоник в режиме насыщения на длине ондуляторов $z \sim L_s$ в основных действующих в мире ЛСЭ:

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{n,F} &\approx P_{n,F} \left(\frac{z}{L_s} \right)^{\frac{2}{3}} \Big|_{z \sim L_s} \times \\ &\times \left(0.77 + 0.23 \cos \frac{n(z - L_s)}{1.3L_g} \right) - \frac{\tilde{P}_{n,F}}{2.5}, \end{aligned} \quad (11)$$

где

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{n,F} &= P_{n,F} \Big|_{\mu_{\varepsilon,n} \rightarrow \tilde{\mu}_{\varepsilon,n}, \Phi_n(\tilde{\mu}_{\varepsilon,n}), \eta(\tilde{\mu}_{\varepsilon,n})}, \\ \tilde{\mu}_{\varepsilon,n} &\approx \frac{2n^{2/3}\sigma_e}{\tilde{\rho}_n}. \end{aligned} \quad (12)$$

Теоретическое выражение для мощности (11) учитывает точные коэффициенты Бесселя (2). Результат хорошо согласуется с известными данными всех наиболее известных ЛСЭ (см. [27–33]); более того, результат (11) лучше передает экспериментальные данные мощности гармоник ЛСЭ, чем теоретические оценки в [54, 55], как показано в [30, 56, 57].

2.1. Влияние параметров пучка электронов на длину усиления ЛСЭ

Рассмотрим хорошо документированный ЛСЭ LEUTL [39, 40] с излучением на длине волны $\lambda_1 \approx 540$ нм. Данные ондулятора LEUTL: период $\lambda_u = 3.3$ см, длина секции $L_u = 2.4$ м, ондуляторный

параметр $k = 3.1$, параметры пучка в ЛСЭ: ток $I_0 = 210$ А, энергия электронов $E = 217$ МэВ, разброс энергий $\sigma_e = 1 \cdot 10^{-3}$, средний эмиттанс $\gamma\epsilon_{x,y} \approx 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм·мрад, параметр Твисса $\beta_{x,y} = 1.5$ м, сечение пучка $\sigma_{x,y} = 0.25$ мм, расходимость $\theta_{div} \approx 0.17$ мрад. Используем формулы (2)–(11) для анализа мощности гармоник ЛСЭ и оценим возможность подавления второй гармоники ЛСЭ.

Рассмотрим зависимость рассчитанной нами длины усиления ЛСЭ от различных параметров пучка электронов; ток считаем во всех случаях фиксированным. От гармоник поля ондулятора длина усиления практически не зависит. Зависимость длины усиления от разброса энергий электронов и от сечения пучка построена нами по формулам (6), (10) и показана на рис. 1а при фиксированном значении параметра Твисса $\beta_{x,y} = 1.5$. Измеренная в эксперименте длина усиления составила $L_{gain} \approx 0.75$ м, что совпадает с нашим теоретическим результатом при заданных параметрах установки (см. рис. 1 для $\sigma_e = 0.1\%$). Эффективный угол взаимодействия электронов с излучением при этом составляет $\theta \approx \sigma_{x,y}/L_{gain} \approx 0.3$ мрад, что дает значение $\gamma\theta \approx 0.13$, в два раза большее, чем для расходимости: $\theta_{div}\gamma \approx 0.07$.

При вариации сечения пучка и фиксированном параметре Твисса $\beta_{x,y}$ эффективное изменение эмиттанса происходит только через изменение сечения. Этот случай представляется важным, так как сечение и длина усиления определяют угол $\bar{\theta}$, который, в свою очередь, в основном определяет генерацию второй гармоники ЛСЭ. Отме-

тим, что зависимость длины усиления от разброса энергий электронов $L_{gain}(\sigma_e)$ при значении сечения $\sigma_{x,y} = 0.25$ мм практически повторяет зависимость от сечения $L_{gain}(\sigma_{x,y})$ при разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$ (см. рис. 1а). Это, по-видимому, совпадение, но эти значения параметров присутствуют во многих экспериментах LEUTL [39, 40]. Зависимость $L_{gain}(\sigma_{x,y})$ при постоянном токе в основном определяется изменением плотности тока J и соответствующим изменением параметра Пирса ρ (5), а также менее значимым изменением параметра κ (6), описывающего влияние эмиттанта на дифракцию пучка; в то же время влияние разброса энергий σ_e на длину усиления описывается независимо коэффициентом μ_ε (10). При малом сечении пучка электронов и соответственно малом эмиттансе длина усиления ЛСЭ LEUTL мало меняется при изменении разброса энергий в широких пределах $\sigma_e \sim 0.1\text{--}0.3\%$ (см. рис. 1а график при $\sigma_{x,y} = 0.1$ мм); при больших сечениях пучка, $\sigma_{x,y} \approx 0.25$ мм, длина усиления ЛСЭ увеличивается с ростом разброса энергий. При еще больших сечениях $\sigma_{x,y} \gg 0.3$ мм и заданном значении $\beta_{x,y} = 1.5$ м сильно увеличивается как длина усиления, так и ее зависимость от разброса энергий (см. рис. 1а при $\sigma_{x,y} = 0.4$ мм).

Рассмотрим теперь возможное влияние вариации эмиттанта пучка $\varepsilon_{x,y}$ в предположении фиксированного сечения $\sigma_{x,y}$. В этом случае изменение эмиттанта обратно пропорционально изменению параметра Твисса $\beta_{x,y}$, так что

$$\sigma_{x,y} = \sqrt{\varepsilon_{x,y}\beta_{x,y}} = \text{const.}$$

При этом не меняются плотность тока, параметр κ (6), описывающий дифракцию, и параметр Пирса ρ (5), определяющий длину усиления и мощность ЛСЭ. Мы получили, что вариация эмиттанта пучка при фиксированном сечении (см. рис. 1б) меняет длину усиления несколько меньше по сравнению с тем, как меняет длину усиления вариация сечения при заданном параметре Твисса (ср. с рис. 1а).

Выразив параметр Твисса как $\beta_{x,y} = \sigma_{x,y}^2/\varepsilon_{x,y}$, можно зафиксировать эмиттанс $\varepsilon_{x,y}$ и проанализировать в этом случае влияние сечения пучка $\sigma_{x,y}$ на длину усиления. Результат представлен на рис. 2. Он заметно отличается от графиков на рис. 1.

В ЛСЭ LEUTL значения эмиттанта менялись и в различных экспериментах составляли $\gamma\varepsilon_{x,y} \approx 5.5\text{--}9 \cdot 10^{-6}$ мм · мрад. На рис. 2 представлен примерно этот диапазон изменения и видно, как зависимость длины усиления от сечения качественно меняется при вариации эмиттанта. При больших сечениях зависимости от эмиттанта почти нет, при малых се-

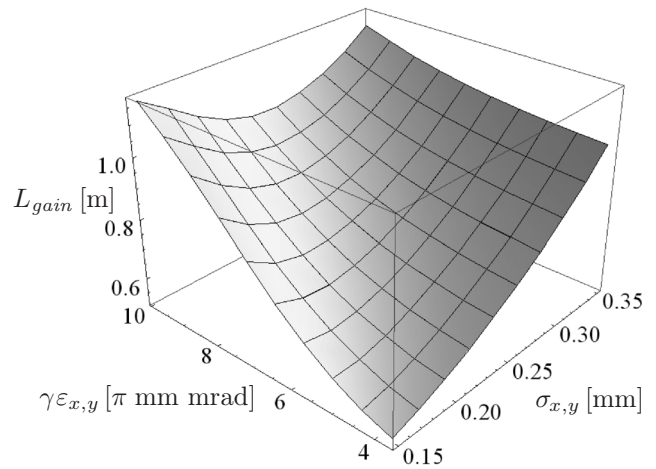


Рис. 2. Зависимость длины усиления ЛСЭ LEUTL от эмиттанта и сечения пучка с разбросом энергий $\sigma_e = 0.001$; ток $I_0 = 210$ А

чениях зависимость длины усиления от эмиттанта сильная. На рис. 2 видно, что малый эмиттанс и малое сечение позволяют уменьшить длину усиления приблизительно до 0.6 м, а при большом эмиттансе сечение меняется в небольшом интервале 1–1.2 м и виден минимум L_{gain} при значении сечения $\sigma_{x,y} \approx 0.25$ мм, что соответствует экспериментальным параметрам ЛСЭ LEUTL [39, 40]. Естественно, с практической точки зрения нужно по возможности уменьшить длину усиления, чтобы уменьшить размер и стоимость ЛСЭ. Меньшая длина усиления, кроме того, сопровождается большей мощностью ЛСЭ, что ценно.

Мы изучили влияние эмиттанта, сечения и разброса энергий пучка электронов на эффективный угол электрон-фотонного взаимодействия в ЛСЭ: $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_{gain}$. Отметим, что изменение параметров пучка приводит к изменению длины усиления ЛСЭ, что показано на рис. 1; это влияет на угол $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_{gain}$; кроме того, на $\bar{\theta}$ непосредственно влияет и само сечение пучка. Полученная аналитическая зависимость $\bar{\theta}(\sigma_{x,y}, \varepsilon_{x,y})$ от сечения и эмиттанта пучка в LEUTL показана на рис. 3а, б, в. При изменении сечения пучка за счет вариации эмиттанта и заданном в эксперименте параметре Твисса $\beta = 1.5$ м угол $\bar{\theta}$ меняется в небольших пределах, как показано на рис. 3а. Интересно, что зависимость $\bar{\theta}(\sigma_{x,y})$ имеет максимум (см. рис. 3а) и этот максимум $\bar{\theta}$ приходится примерно на измеренные экспериментальные значения LEUTL: сечение $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм и эмиттанс $\gamma\varepsilon_{x,y} = 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм · мрад при разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$. При изменении эмиттанта и фиксированном в эксперименте сечении пучка угол $\bar{\theta}$ монотонно убывает с увеличени-

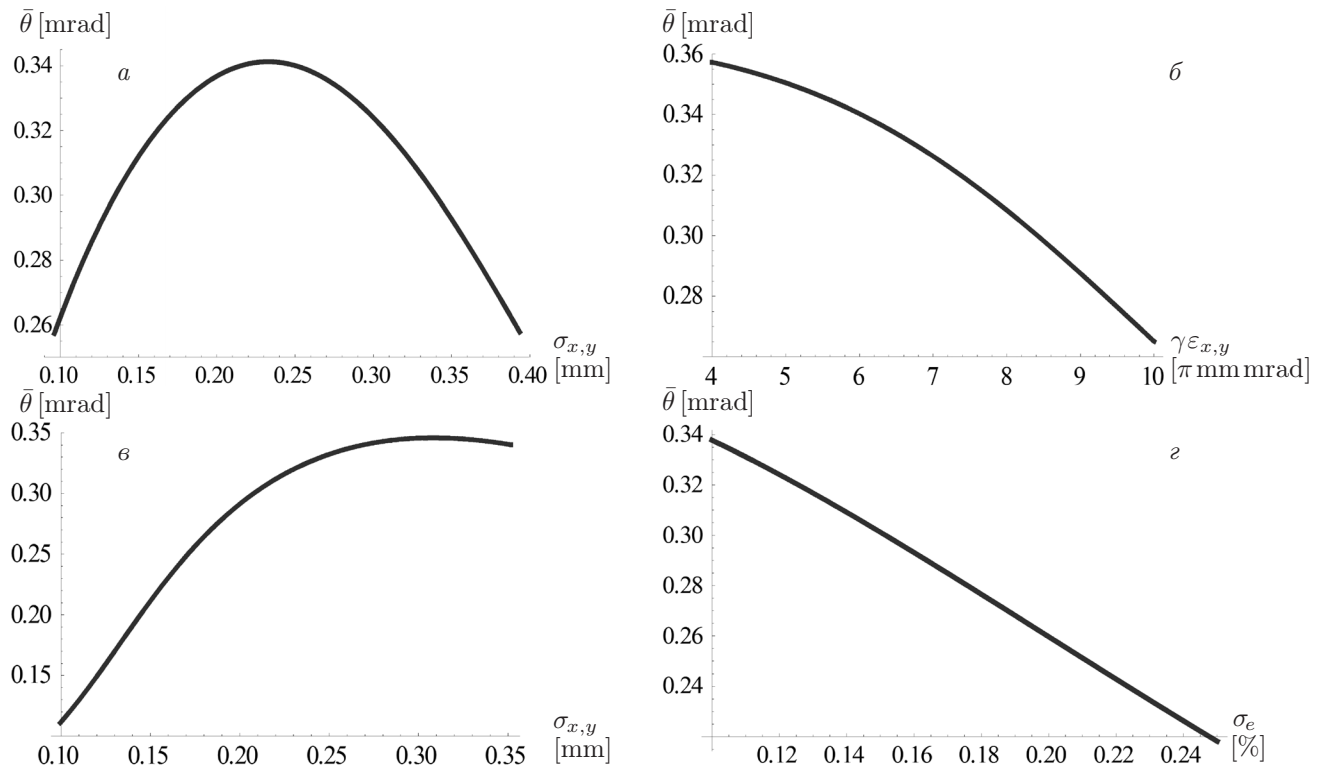


Рис. 3. Зависимости угла электрон-фотонного взаимодействия в ЛСЭ LEUTL от сечения пучка при заданных в эксперименте параметре Твисса $\beta = 1.5$ м и разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$ (а); от эмиттанса при заданных в эксперименте сечении $\sigma_{x,y} = 0.26$ мм и разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$ (б); от сечения при заданных в эксперименте эмиттансе $\gamma\epsilon_{x,y} = 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм · мрад и разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$ (в); от разброса энергий при заданных $\gamma\epsilon_{x,y} = 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм · мрад, $\sigma_{x,y} = 0.26$ мм (г); $\beta = 1.5$ м; ток $I_0 = 210$ А

ем эмиттанса (см. рис. 3б). Таким образом, зависимость от эмиттанса на рис. 3б совсем другая, чем зависимость от сечения пучка на рис. 3а.

Кроме того, мы изучили аналитическую зависимость $\bar{\theta}(\sigma_{x,y})$ от сечения пучка при измеренном в эксперименте эмиттансе $\gamma\epsilon_{x,y} = 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм · мрад, она представлена на рис. 3в. Для данного эмиттанса $\gamma\epsilon_{x,y} = 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм · мрад малые сечения ниже экспериментального дают малые углы $\bar{\theta}$: при сечении $\sigma_{x,y} < 0.2$ мм угол $\bar{\theta} < 0.28$ мрад, а при сечении $\sigma_{x,y} = 0.1$ мм угол $\bar{\theta}$ может быть в три раза меньше его значения при экспериментальных параметрах пучка (см. рис. 3в). Увеличение сечения пучка от $\sigma_{x,y} = 0.1$ мм до значений $\sigma_{x,y} \approx 0.25$ мм, измеренных в эксперименте, приводит к увеличению угла $\bar{\theta}$; при дальнейшем увеличении сечения выше экспериментальных значений и фиксированном эмиттансе не происходит увеличения угла $\bar{\theta}$ (см. рис. 3в).

Зависимость $\bar{\theta}(\sigma_e)$ от разброса энергий электронов представлена на рис. 3г. С увеличением разброса энергий пучка происходит практически линейное уменьшение угла электрон-фотонного взаимодействия $\bar{\theta}$. Это влияет на коэффициенты Бесселя гармоник (2) непосредственно и опосредованно че-

рез обобщенные функции Бесселя (3), которые также зависят от угловых вкладов $\bar{\theta}$. Соответственно, параметры Пирса гармоник ЛСЭ ρ_n также зависят от разброса энергий электронов; эта зависимость показана и исследована нами в разд. 3.

Отметим также, что максимальное значение $\bar{\theta}$ при всех исследованных нами изменениях параметров пучка остается примерно одним и тем же (см. рис. 3а,б,в). С угловыми эффектами тесно связано излучение четных гармоник ОИ. В релятивистских пучках четные гармоники излучения возникают в меньшей степени из-за бетатронных колебаний и в большей степени из-за угловых эффектов; значимый в ЛСЭ эффективный угол $\bar{\theta}$ превышает все другие угловые вклады и меняется при вариации сечения и эмиттанса незначительно (см. рис. 3а,в). При заданном фиксированном эмиттансе изменение угла $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_{gain}$ электрон-фотонного взаимодействия происходит в сторону меньших значений с отклонением сечения пучка LEUTL от его штатного значения $\sigma_{x,y} \approx 0.25$ мм (см. рис. 3а,в). Это дает основание предположить, что при данном эмиттансе в ЛСЭ LEUTL меньшие сечения пучка могут ослабить четные гармоники ЛСЭ.

3. ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРОВ ПУЧКА ЭЛЕКТРОНОВ НА ИЗЛУЧЕНИЕ ГАРМОНИК ЛСЭ

Мы рассчитали по формулам (2)–(11) и проследили влияние параметров пучка электронов на коэффициенты Бесселя и на мощности гармоник излучения. Учен эффективный угол электрон-фотонного взаимодействия в ЛСЭ LEUTL: $\gamma\bar{\theta} \approx 0.14$, который сильно влияет на мощность четных гармоник ЛСЭ. Зависимость коэффициентов Бесселя от сечения пучка при фиксированном в эксперименте параметре Твисса $\beta = 1.5$ м представлена графически на рис. 4а; фактически изменение эмиттанса в этом случае происходит за счет вариации сечения. Зависимость коэффициентов Бесселя от разброса энергий пучка электронов представлена на рис. 4б для данного в эксперименте эмиттанса и сечения пучка LEUTL.

Отметим, что изменение сечения при фиксированном параметре Твисса (т.е. при заданной фокусировке) мало сказывается на коэффициентах Бесселя: значение $f_1 = 0.75$ для основного тона не меняется и поэтому оно не показано на рисунках; меняются, хотя и мало, значения f_2 для второй гармоники (см. рис. 4а), следуя за изменением угла $\bar{\theta}$ на рис. 3а (оранжевая линия на рис. 4а следует за изгибом линии на рис. 3а). Интересным представляется уменьшение коэффициентов Бесселя второй гармоники f_2 по сравнению с коэффициентом Бесселя третьей гармоники f_3 при увеличении разброса энергий (см. рис. 4б). Это позволяет заключить (см. рис. 4б), что вторая гармоника, по-видимому, будет сильнее подавлена в спектре ЛСЭ при увеличенном разбросе энергий пучка. В то же время изменение сечения (см. рис. 4а), по-видимому, не окажет столь значительного влияния на мощность второй гармоники, как изменение разброса энергий. Для зависимости от разброса энергий на рис. 4б мы ограничились сверху областью исследуемых значений σ_e значением параметра Пирса ρ (5) ЛСЭ исходя из условия $\sigma_e < \rho$. В отношении зависимости коэффициента Бесселя третьей гармоники f_3 от разброса энергий отметим, что небольшое увеличение f_3 с ростом разброса энергий электронов, вообще говоря, нетипично и, по-видимому, связано с уменьшением угловых вкладов в обобщенных функциях Бесселя (3) для установки ЛСЭ LEUTL.

С реальными параметрами установки в эксперименте ЛСЭ LEUTL [40] (данные приведены выше в начале разд. 2) мы аналитически получили содержание второй гармоники в излучении ЛСЭ $\approx 0.3\%$, что находится в пределах разброса измерений и в хо-

рошем согласии со средним значением, измеренным во всех экспериментах: $P_2/P_1 = 1/240$ [40]. Рассчитанное содержание третьей гармоники получилось $\approx 0.8\%$, что также согласуется с экспериментом; рассчитанная длина усиления $L_g = 0.77$ м и длина насыщения $L_s = 16$ м точно соответствуют измеренным значениям [40].

С учетом коэффициентов Бесселя (см. рис. 4) мы аналитически рассчитали зависимости параметра Пирса ρ_n для гармоник, а также мощности излучения гармоник P_n от сечения пучка и разброса энергий электронов. Зависимости ρ_n и P_n от сечения пучка при заданном в эксперименте разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$ представлены на рис. 5; зависимости от разброса энергий при заданном сечении $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм показаны на рис. 6. Проанализируем на рис. 5 и 6 влияние параметров пучка на излучение гармоник ЛСЭ.

При увеличении сечения пучка $\sigma_{x,y}$ происходит ослабление излучения ЛСЭ вследствие уменьшения значения параметра Пирса, показанного на рис. 5а. С ростом сечения параметр Пирса уменьшается (см. рис. 5а) хотя бы потому, что увеличение сечения пучка $\sigma_{x,y}$ уменьшает плотность электронного тока в нем (при фиксированном токе I); это непосредственно влияет на параметр Пирса (5):

$$\rho_n \propto \sqrt[3]{\left(\frac{I}{\sigma_{x,y}^2}\right) |f_n|^2}.$$

Вообще говоря, обычно за изменением параметра Пирса ρ следует изменение мощности; это хорошо видно на рис. 5б. Из графиков на рис. 5 следует, как мы и предполагали по результатам анализа зависимости длины усиления от сечения (см. разд. 2), что влияние сечения на излучение примерно одинаково для всех гармоник $n = 1, 2, 3$ (см. рис. 5). Отметим, что мощность второй гармоники немного больше для сечений $\sigma_{x,y} \sim 0.1\text{--}0.15$ мм и не меняется при увеличении сечения пучка до $\sigma_{x,y} \approx 0.2$ мм (см. оранжевую штрихпунктирную линию на рис. 6а). Это происходит из-за того, что вторая гармоника ЛСЭ сильно зависит от эффективного угла $\bar{\theta}$, и ее мощность следует зависимости $\bar{\theta}$ от сечения, показанной на рис. 3а.

Изменение разброса энергий электронов практически не влияет на параметр Пирса нечетных гармоник (см. рис. 6а), но увеличение разброса энергий уменьшает параметр Пирса f_{even} четных гармоник. Это происходит главным образом потому, что f_{even} сильно зависят от угла $\bar{\theta}$, который уменьшается с ростом разброса энергий (см. рис. 3г). В то же время увеличение разброса энергий приводит к уменьше-

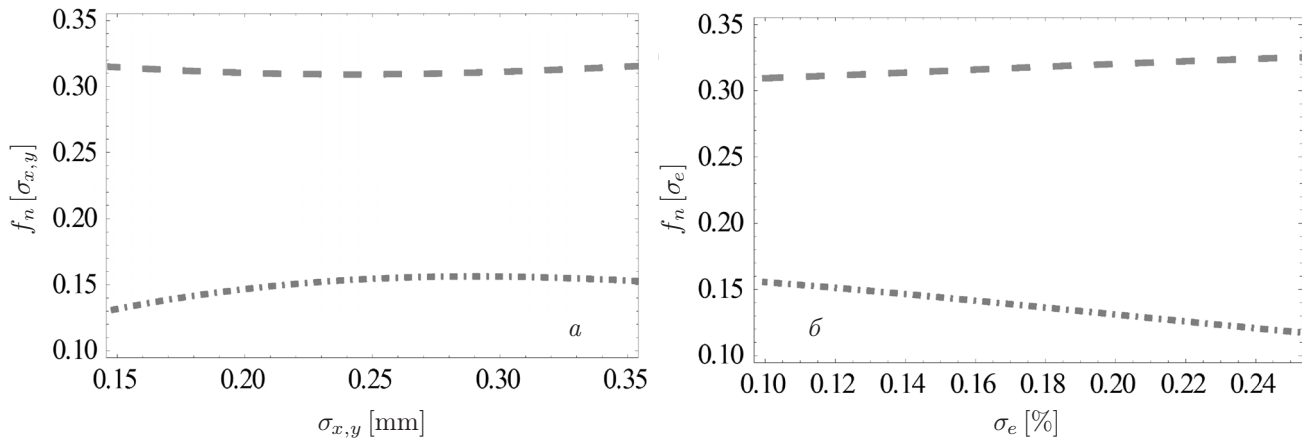


Рис. 4. Зависимости коэффициентов Бесселя f_n гармоник ЛСЭ LEUTL от сечения пучка при разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$ (а) и разброса энергий при сечении пучка $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм (б); ток $I_0 = 210$ А, параметр $\beta_{x,y} = 1.5$ м. Гармоники: $n = 2$ — штрихпунктирная оранжевая линия, $n = 3$ — штриховая зеленая линия

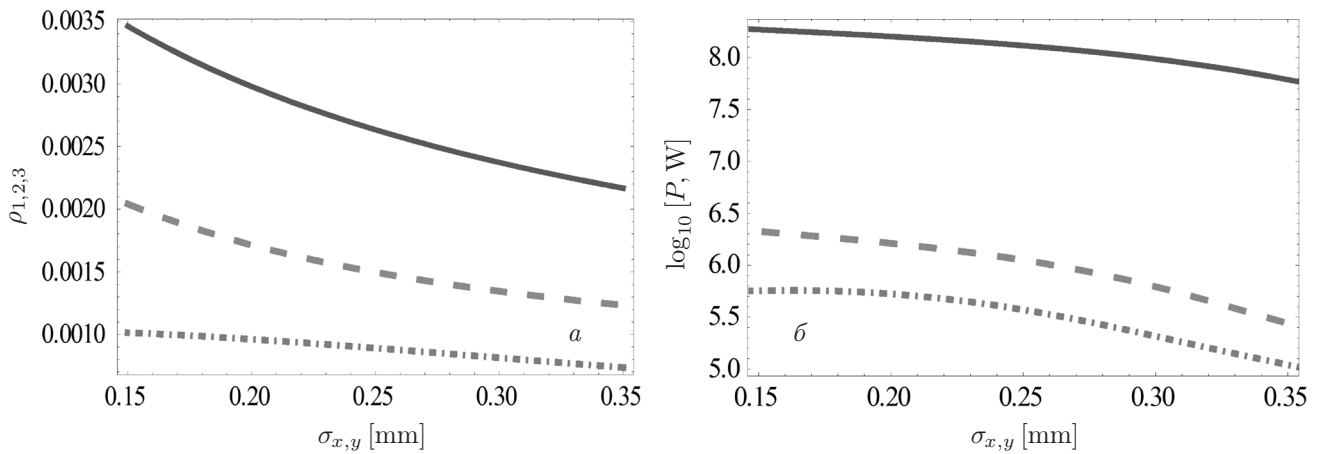


Рис. 5. Зависимости параметра Пирса гармоник ЛСЭ LEUTL (а) и мощности гармоник ЛСЭ LEUTL (б) от сечения пучка. Разброс энергий $\sigma_e = 0.001$, ток $I_0 = 210$ А, параметр Твисса $\beta_{x,y} = 1.5$ м; эмиттанс меняется с изменением сечения. Гармоники: $n = 1$ — сплошная красная линия, $n = 2$ — штрихпунктирная оранжевая линия, $n = 3$ — штриховая зеленая линия

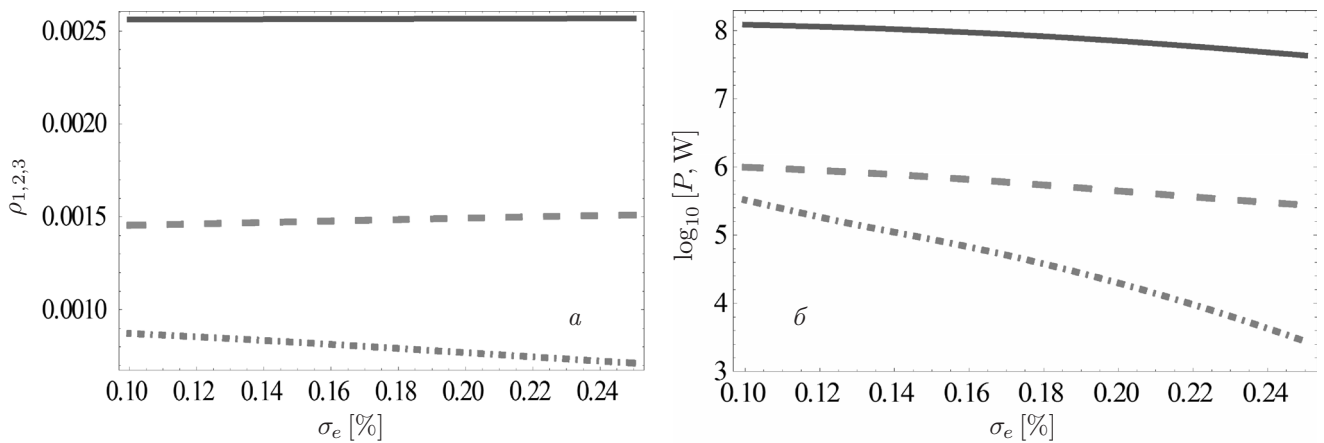


Рис. 6. Зависимости параметра Пирса гармоник ЛСЭ LEUTL (а) и мощности гармоник ЛСЭ LEUTL (б) от разброса энергий. Сечение $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм, ток $I_0 = 210$ А, параметр Твисса $\beta_{x,y} = 1.5$ м, эмиттанс $\gamma_{e,x,y} = 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм · мрад. Гармоники: $n = 1$ — сплошная красная линия, $n = 2$ — штрихпунктирная оранжевая линия, $n = 3$ — штриховая зеленая линия

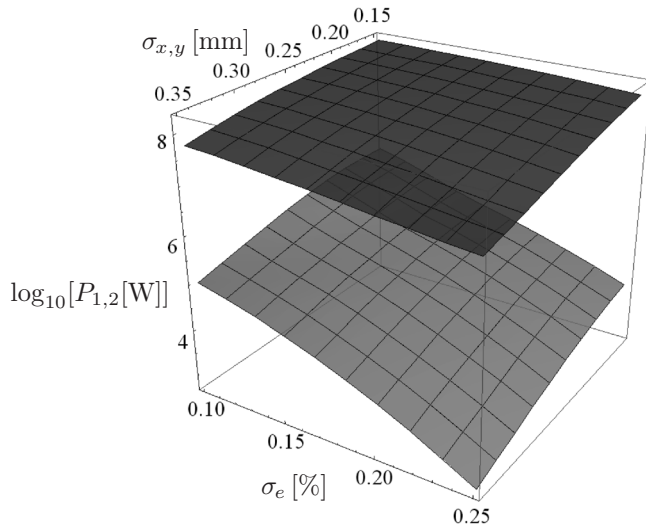


Рис. 7. Зависимость мощности первой и второй гармоник ЛСЭ LEUTL от разброса энергий и сечения пучка электронов при токе $I_0 = 210$ А; параметр Твисса $\beta_{x,y} = 1.5$ м

нию мощности всех гармоник ЛСЭ ввиду ухудшения группировки электронов (см. рис. 6б). Это более выражено для второй гармоники, чем для третьей и для основного тона, что не связано с параметром Пирса, соответствующее изменение которого показано на рис. 6а. Для разброса энергий в широком диапазоне значений параметр Пирса первой и третьей гармоник практически не меняется, а параметр Пирса второй гармоники убывает с увеличением разброса энергий (см. рис. 6а), но не настолько сильно, чтобы вызвать уменьшение мощности второй гармоники ЛСЭ, представленное на рис. 6б. При экспериментальном сечении пучка $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм увеличение разброса энергий электронов от 0.1 % до 0.25 % приводит к уменьшению мощности излучения основного тона и третьей гармоники примерно в три раза, в то время как мощность второй гармоники уменьшается более чем в сто раз. Сравнивая рис. 5 и 6, можно увидеть, что если зависимость параметра Пирса на рис. 5а вызывает изменения мощности на рис. 5б, то изменения на рис. 6б вызваны не только зависимостью на рис. 6а, где практически не меняется параметр Пирса $\rho_{1,3}$. Также ослабление излучения второй гармоники ЛСЭ на два порядка при увеличении разброса энергий от $\sigma_e = 0.1$ % до $\sigma_e = 0.25$ % (оранжевая штрихпунктирная линия на рис. 6б), по-видимому, вызвано не только изменением параметра Пирса ρ_2 (оранжевая штрихпунктирная линия на рис. 6а).

Сравнение влияния изменения сечения пучка и разброса энергий электронов на мощность первой и второй гармоник показано на рис. 7; сравнение влияния на мощность первой и третьей гармоник

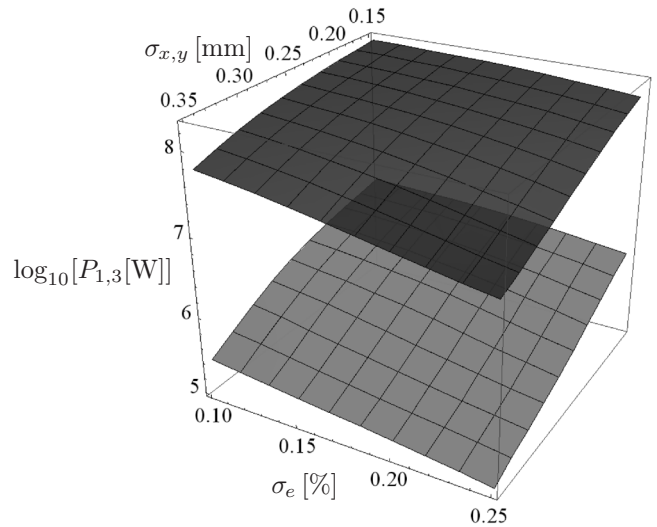


Рис. 8. Зависимость мощности первой и третьей гармоник ЛСЭ LEUTL от разброса энергий и сечения пучка электронов при токе $I_0 = 210$ А; параметр Твисса $\beta_{x,y} = 1.5$ м

показано на рис. 8. Зависимости от сечения пучка и разброса энергий электронов качественно похожи друг на друга, особенно для первой и третьей гармоник на рис. 8. Однако одинаковые изменения параметров пучка приводят к большим изменениям мощности второй гармоники ЛСЭ, чем первой (см. рис. 7). На рис. 7 видно, что в случае увеличения разброса энергии пучка в два раза с $\sigma_e \approx 0.1$ % до $\sigma_e \approx 0.2$ % при заданных в экспериментах значениях эмиттанса и сечения $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм мощность второй гармоники ЛСЭ уменьшится более чем в десять раз. Если при этом немного увеличить сечение с $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм до $\sigma_{x,y} \approx 0.3$ мм, то вторая гармоника будет еще ослаблена. При увеличении разброса энергии до $\sigma_e \approx 0.25$ % и стандартном сечении пучка $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм мощность второй гармоники уменьшится примерно в сто раз, а при одновременном с этим увеличении сечения до $\sigma_{x,y} \approx 0.3$ мм получаем ослабление второй гармоники ЛСЭ примерно в двести раз (см. рис. 7). Мощность основного тона при этом меняется, но мало. Отметим, что при фиксированном значении параметра Твисса $\beta = 1.5$ м и увеличении сечения с $\sigma_{x,y} \approx 0.25$ мм до $\sigma_{x,y} \approx 0.3$ мм, а также одновременном увеличении разброса энергий с $\sigma_e \approx 0.1$ % до $\sigma_e \approx 0.2$ % мощность ЛСЭ уменьшится примерно в три раза, мощность второй гармоники — более чем на порядок (см. рис. 7), а длина усиления возрастет с ≈ 0.77 м до ≈ 1.33 м (см. рис. 1а). То же уменьшение мощности ЛСЭ ожидается при неизменном сечении $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм и увеличенном в 2.5 раза разбросе энергий $\sigma_e \approx 0.25$ %. В этом случае длина усиления растет несколько медленнее (см. рис. 1а) и достигает 1.2 м.

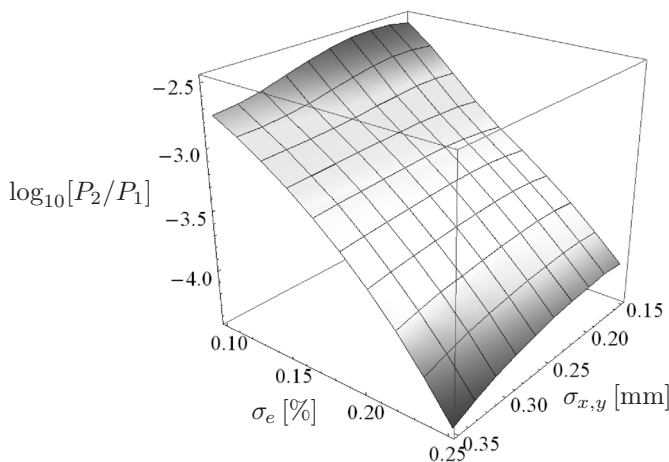


Рис. 9. Зависимость содержания второй гармоники в излучении ЛСЭ LEUTL от разброса энергий электронов и сечения пучка при токе $I_0 = 210$ А; параметр Твисса $\beta_{x,y} = 1.5$ м

Итак, используя увеличенный разброс энергий электронов при неизменном сечении пучка, получаем выигрыш в более короткой длине усиления при том же уменьшении мощности ЛСЭ, что и в случае увеличенного сечения при неизменном разбросе энергий.

Отметим, что поведение третьей гармоники ЛСЭ при изменении параметров очень похоже на поведение основного тона (ср. зеленую $n = 3$ и красную $n = 1$ поверхности на рис. 8). Содержание второй гармоники в излучении ЛСЭ LEUTL в зависимости от сечения и разброса энергии пучка показано на рис. 9. Отметим, что изменение сечения мало меняет содержание второй гармоники, а увеличение разброса энергий сильно уменьшает содержание второй гармоники. Итак, для подавления второй гармоники ЛСЭ лучше увеличить разброс энергии, а не сечение или эмиттанс пучка. Зависимость содержания второй гармоники излучения ЛСЭ от разброса энергий близка к экспоненциальной с отрицательным показателем: на рис. 9 в логарифмическом масштабе уменьшение $\log_{10}(P_2/P_1)$ с увеличением σ_e происходит почти линейно.

В заключение сравним влияние увеличенного разброса энергий электронов с влиянием второй гармоники поля ондулятора на излучение второй гармоники ЛСЭ, недавно исследованное в [57, 58]. В этих работах была продемонстрирована возможность ослабить вторую гармонику ЛСЭ, используя вторую гармонику магнитного поля ондулятора в противофазе основному полю. Согласно результа-

там в [57, 58], вторая гармоники поля

$$H_{2,d} = H_0 d \sin(4\pi z/\lambda_u)$$

с относительной амплитудой $d \approx -0.1$ основного поля ондулятора

$$H = H_0 \sin(2\pi z/\lambda_u)$$

позволяет уменьшить излучение второй гармоники ЛСЭ примерно на порядок (степень влияния гармоники поля зависит от параметров установки). Группировка электронов при этом идет в поле двух волн, возбуждающихся на разных ондуляторных гармониках. Если волны или их гармоники приходят в фазе, то группировка на этой длине волны происходит сильнее, а если в противофазе, то слабее. Похожий двухчастотный эффект имеет место и в циклотронных усилителях миллиметрового диапазона. Обычно стараются улучшить группировку электронных банчей; например, в [59–61] было показано, что в циклотронных мазерах использование группировки частиц в поле двух волн, возбуждающихся на первой и второй циклотронных гармониках, дает существенное улучшение группировки электронов. Влияние разброса энергии при этом не рассматривалось. Аналогично этому, варьируя амплитуду и фазу гармоники поля в ондуляторах, можно менять содержание соответствующей гармоники в излучении, почти не меняя мощность основного тона (см. [42, 44, 45, 62] и др.).

Мы сравнили и проанализировали совместное влияние второй гармоники поля ондулятора и разброса пучка электронов σ_e на мощность излучения ЛСЭ. Применив формулы (5)–(11) для аналитического вычисления мощности гармоник ЛСЭ, мы использовали коэффициенты Бесселя для двухчастотного ондулятора с учетом второй гармоники поля из [58]:

$$\begin{aligned} f_{n;x} \approx \sum_p \tilde{J}_p \left| (J_{n+1}^n + J_{n-1}^n) + \right. \\ \left. + \frac{d}{h} (J_{n+h}^n + J_{n-h}^n) + J_n^n \frac{2}{k} \gamma \theta \cos \varphi \right|, \\ f_{n;y} \approx \sum_p \left(\tilde{J}_p \left| J_n^n \frac{2}{k} \gamma \theta \sin \varphi \right| + \right. \\ \left. + J_n^n \frac{\sqrt{2}\pi y_0}{\lambda_u} \left((\tilde{J}_{p+1} - \tilde{J}_{p-1}) + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{d}{h} (\tilde{J}_{p+h} - \tilde{J}_{p-h}) \right) \right), \end{aligned} \quad (13)$$

где d — амплитуда гармоники поля ондулятора с номером h ; в частности, в интересующем нас случае $h = 2$. Коэффициенты Бесселя (13) имеют более

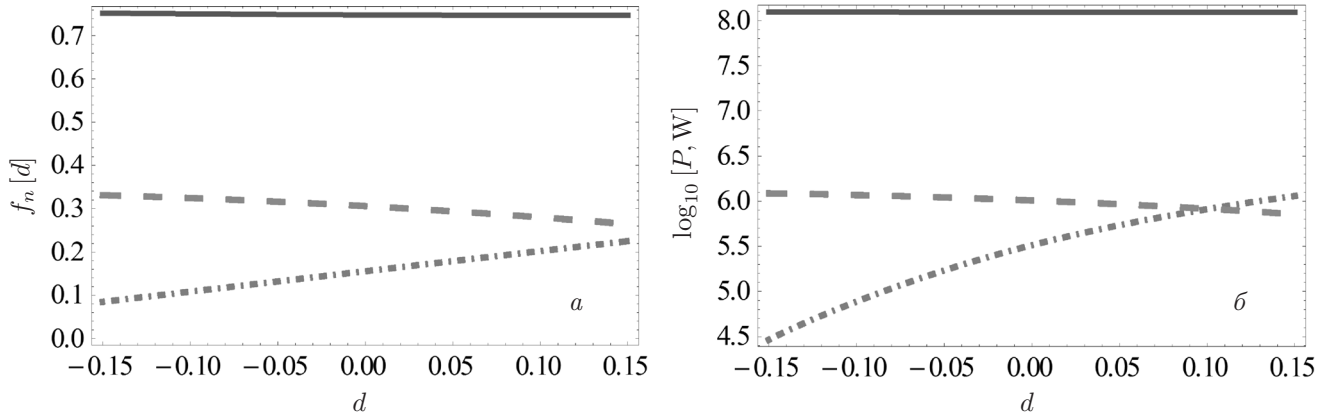


Рис. 10. Зависимости коэффициентов Бесселя f_n (а) и мощности излучения гармоник (б) ЛСЭ LEUTL от относительной амплитуды второй гармоники поля ондулятора d при $I_0 = 210$ А, $\sigma_{x,y} \approx 0.26$ мм, $\beta_{x,y} = 1.5$ м и $\sigma_e = 0.001$. Гармоники излучения: $n = 2$ — штрихпунктирная оранжевая линия, $n = 3$ — штриховая зеленая линия

сложный вид, чем (2) и учитывают влияние гармоники поля явно в (13) и неявно в следующих аргументах:

$$\begin{aligned} \xi_0 &= \frac{2d\gamma\theta \cos \varphi \sin(h\alpha)}{kh^2}, & \xi_1 &= \frac{\sin(2\alpha)}{4}, \\ \xi_2 &= \frac{d \sin((h-1)\alpha)}{h(h-1)}, & \xi_3 &= \frac{d \sin((h+1)\alpha)}{h(h+1)}, \\ \xi_4 &= \frac{d^2 \sin(2h\alpha)}{4h^3}, & \xi_5 &= \frac{2}{k} \gamma \theta \cos \varphi \sin \alpha, \\ \kappa &= \frac{4\pi\theta y_0 \gamma^2}{\lambda_u (1 + k^2/2)}, & \eta &= \frac{\pi^2 \gamma y_0^2 k}{\sqrt{2} \lambda_u^2 (1 + k^2/2)}, \end{aligned} \quad (14)$$

в обобщенных функциях Бесселя

$$\begin{aligned} J_n^m &= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\alpha}{2\pi} \times \\ &\times \exp \left\{ i \left(n\alpha + \frac{mk^2(\xi_0 + \xi_1 + \xi_2 + \xi_3 + \xi_4 + \xi_5)}{1 + \gamma^2\theta^2 + k_{eff}^2/2} \right) \right\}, \quad (15) \\ \tilde{J}_p &= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\alpha}{2\pi} \exp \{ i(p\alpha - \kappa \sin \alpha - \eta \sin(2\alpha)) \}. \end{aligned}$$

В результате в дополнение к полученной выше зависимости длины усиления и мощности гармоник от сечения, эмиттанса и разброса энергий пучка мы получили их зависимости от амплитуды $H_{h=2,d} = H_0 d$ второй гармоники поля ондулятора. Зависимость коэффициентов Бесселя от второй гармоники поля в ондуляторе показана на рис. 10а. Отрицательная фаза второй гармоники поля уменьшает коэффициент Бесселя f_2 второй гармоники ЛСЭ и, таким образом, уменьшается мощность ее излучения в ЛСЭ. Положительная фаза второй гармоники поля увеличивает коэффициент Бесселя f_2 (оранжевая

штрихпунктирная линия на рис. 10а) и уменьшает коэффициент Бесселя третьей гармоники f_3 (зеленая штриховая линия на рис. 10а). Это приводит к соответствующему изменению мощностей этих гармоник в излучении, как показано на рис. 10б. Коэффициент Бесселя основного тона f_1 (красная сплошная линия на рис. 10а) не меняется под влиянием второй гармоники поля ондулятора; не меняется и мощность ЛСЭ (красная сплошная линия на рис. 10б), в то время как мощности излучения гармоник меняются, следуя изменению $f_{2,3}$.

Итак, варьируя амплитуду второй гармоники поля d , можно менять содержание второй гармоники излучения, не меняя мощность самого ЛСЭ; содержание третьей гармоники в спектре ЛСЭ при изменении амплитуды второй гармоники поля меняется мало (см. рис. 10б).

Совместное влияние второй гармоники поля ондулятора и разброса энергий пучка на содержание второй гармоники в спектре излучения ЛСЭ LEUTL показано на рис. 11.

Обратим внимание, что увеличение разброса энергий электронов и амплитуды второй гармоники поля ондулятора в противофазе основному полю взаимно усиливают подавление излучения второй гармоники ЛСЭ (см. рис. 11). При разбросе энергий $\sigma_e = 0.001$ имеем относительно слабую зависимость мощности второй гармоники излучения от амплитуды d второй гармоники поля ондулятора: при $d = -0.1$ происходит уменьшение содержания второй гармоники ЛСЭ в 5–7 раз [58], а при $d = 0$ имеем результаты, представленные выше в настоящей работе. В остальной части рис. 11 видим, что вторая гармоника поля ондулятора и разброс энергий электронов эффективно «помогают» друг другу в подавлении излучения второй гармоники ЛСЭ: при

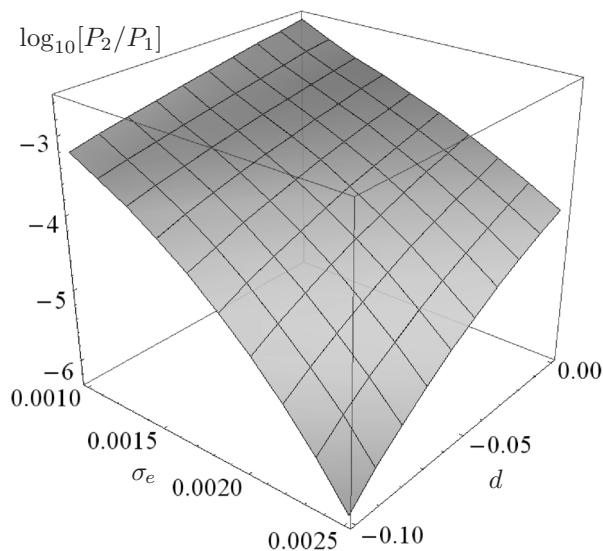


Рис. 11. Зависимость содержания второй гармоники в излучении ЛСЭ LEUTL от разброса энергий электронов и амплитуды второй гармоники поля ондулятора при следующих значениях параметров: $I_0 = 210$ А, $\beta_{x,y} = 1.5$ м, $\sigma_{x,y} = 0.26$ мм, $\gamma\varepsilon_{x,y} \approx 6.2\pi \cdot 10^{-6}$ мм · мрад

$\sigma_e = 0.0025$ вторая гармоника поля с относительной амплитудой $d = -0.1$ ослабляет излучение второй гармоники ЛСЭ на два порядка величины мощности (см. рис. 11). Отметим, что в экспериментах LEUTL со стандартным ондулятором и разбросом энергий $\sigma_e = 0.001$ содержание второй гармоники ЛСЭ составляло около 0.1–0.5 %; на рис. 11 это соответствует дальнему верхнему углу, где

$$\log_{10} \frac{P_2}{P_1} \bigg|_{d=0, \sigma_e=0.001} \approx -2.5.$$

Увеличив в два раза разброс энергий до $\sigma_e = 0.002$ и добавив в поле ондулятора в противофазе вторую гармонику амплитудой 5 % основного поля, $d = -0.05$, получаем содержание второй гармоники ЛСЭ на два порядка ниже:

$$\log_{10} \frac{P_2}{P_1} \bigg|_{d=-0.05, \sigma_e=0.002} \approx -4.5.$$

Со второй гармоникой поля амплитудой $d = -0.1$ и с увеличенным в 2.5 раза разбросом энергий $\sigma_e = 0.002$ получаем еще меньшее содержание второй гармоники в излучении ЛСЭ:

$$\log_{10} \frac{P_2}{P_1} \bigg|_{d=-0.1, \sigma_e=0.0025} \approx -6.$$

Итак, увеличение разброса энергий электронов может значительно ослабить вторую гармонику излучения, но увеличивает длину усиления ЛСЭ. Вторая гармоника поля ондулятора с обратной фазой

также ослабляет излучение второй гармоники ЛСЭ и при этом не влияет на длину усиления ЛСЭ и мощность основного тона, что позволяет сохранить размеры ЛСЭ без серьезного увеличения его стоимости. Влияние второй гармоники поля несколько более эффективно при больших разбросах энергии пучка.

Дополнительный скоростной разброс электронов, по-видимому, можно устроить уже на стадии формирования сгустка в фотоинжекторе. Там энергии электронов небольшие и разброс приобретает, например, из-за кулоновских полей сгустка или из-за нерегулярности во времени ускоряющего поля (когда разные электроны ускоряются разными полями).

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведен теоретический анализ влияния параметров электронного пучка на излучение ЛСЭ и генерацию в нем гармоник. Рассмотрен пример хорошо документированного ЛСЭ LEUTL с излучением в видимом диапазоне на длине волны $\lambda_1 \approx 540$ нм. Использован формализм обобщенных функций Бесселя, где аналитически учтены основные параметры ЛСЭ. Результаты моделирования мощности гармоник ЛСЭ LEUTL полностью согласуются с экспериментальными данными. Проведен анализ влияния сечения, эмиттанса и разброса энергий пучка на длину усиления и мощности гармоник излучения ЛСЭ.

Аналитически показано, как увеличение разброса энергий, сечения и эмиттанса пучка увеличивает длину усиления и уменьшает мощности гармоник излучения ЛСЭ. В случае фиксированного параметра Твисса увеличение сечения происходит вследствие увеличения эмиттанса; это приводит к более значительному росту длины усиления ЛСЭ по сравнению со случаем фиксированного эмиттанса и изменения сечения вследствие вариации параметра Твисса β .

Продemonстрировано примерно одинаковое влияние увеличения сечения пучка и разброса энергий электронов на мощности первой и третьей гармоник излучения ЛСЭ LEUTL.

Показано, как вариация сечения пучка и вызываемое этим изменение длины усиления ЛСЭ меняют угол электрон-фотонного взаимодействия. Изменение угла $\bar{\theta}$ больше при фиксированном эмиттансе, чем при фиксированном параметре Твисса при одинаковой вариации сечения. Угловые эффекты, связанные с $\bar{\theta}$, в свою очередь, определяют генерацию четных гармоник ЛСЭ.

Аналитически показано, что увеличение разброса энергий электронов увеличивает длину усиления ЛСЭ и ослабляет генерацию всех гармоник излучения; особенно сильно при этом подавляются четные гармоники (ср. рис. 7 и 8). Вариация сечения пучка оказывает меньшее влияние на мощность второй гармоники, чем вариация разброса энергий электронов. Итак, для подавления второй гармоники ЛСЭ требуется, скорее, увеличение разброса энергий, а не сечения или эмиттанса пучка.

Анализ мощностей гармоник ЛСЭ LEUTL в зависимости от разброса энергий σ_e и сечения пучка $\sigma_{x,y}$ приводит к следующей оценке: независимо от сечения пучка изменение содержания второй гармоники излучения идет по закону, близкому к экспоненциальному с отрицательным показателем:

$$\log_{10} \frac{P_2}{P_1} \sim -\sigma_e,$$

см. рис. 1.

Показана возможность уменьшить на порядок содержание второй гармоники ЛСЭ LEUTL за счет увеличения разброса энергий пучка в два раза с 0.1 % до 0.2 %. Более того, увеличение разброса энергий с 0.1 % до 0.25 % уменьшает почти на два порядка содержание второй гармоники ЛСЭ. В этом случае полная мощность ЛСЭ уменьшается в несколько раз и длина усиления удваивается. Такой способ уменьшения содержания второй гармоники ЛСЭ представляется наиболее простым и осуществим, например, путем увеличения разброса энергий электронов уже в фотоинжекторе.

Уменьшение мощности второй гармоники ЛСЭ возможно при помощи второй гармоники поля ондулятора в противофазе основному полю. Показано, что влияние второй гармоники поля ондулятора и увеличенного разброса энергий электронов взаимно усиливают друг друга и эффективно подавляют излучение второй гармоники ЛСЭ. Увеличение в два раза разброса энергий электронов с $\sigma_e = 0.1\%$ до $\sigma_e = 0.2\%$ и одновременное использование ондулятора со второй гармоникой поля с амплитудой 5 % основного поля уменьшает содержание второй гармоники ЛСЭ на два порядка. Увеличение разброса энергий до $\sigma_e = 0.25\%$ и вторая гармоника поля с амплитудой 10 % основного поля еще уменьшают содержание второй гармоники ЛСЭ до значения $P_2/P_1 \sim 0.0001\%$.

Использование двухчастотного ондулятора с гармоникой поля сложно реализовать технически, но это позволяет менять содержание второй гармоники в спектре, не меняя полную мощность излучения и не меняя длину усиления ЛСЭ.

Полученные результаты могут использоваться в теоретических и прикладных исследованиях и проектировании экспериментов при анализе нелинейного отклика второй гармоники (SHG) с источником когерентного излучения ЛСЭ.

Благодарности. Автор благодарит I. Rapp за оформление статьи в формате L^AT_EX.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки России (грант № 075-15-2021-1353).

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Л. Гинзбург, Изв. АН СССР (Физика) **11**, 165 (1947).
2. H. Motz, W. Thon, and R. N. J. Whitehurst, Appl. Phys. **24**, 826 (1953).
3. J. M. Madey, J. Appl. Phys. **42**, 1906 (1971).
4. G. Margaritondo, Rivista del Nuovo Cimento **40**, 411 (2017).
5. В. Г. Багров, Г. С. Бисноватый-Коган, В. А. Бордо-вицын и др., *Теория излучения релятивистских частиц*, Физматлит, Москва (2002).
6. И. М. Тернов, В. В. Михайлин, В. Р. Халилов, *Синхротронное излучение и его применения*, Изд-во МГУ, Москва (1980).
7. G. Margaritondo, *Characteristics and Properties of Synchrotron Radiation*, in *Synchrotron Radiation*, ed. by S. Mobilio, F. Boscherini, and C. Meneghini, Springer, Berlin, Heidelberg (2015).
8. B. W. J. McNeil and N. R. Thompson, Nature Photonics **4**, 814 (2010).
9. C. Pellegrini, A. Marinelli, and S. Reiche, Rev. Mod. Phys. **88**, 015006 (2016).
10. P. Schmuser, M. Dohlus, J. Rossbach, and C. Behrens, *Free-Electron Lasers in the Ultraviolet and X-Ray Regime*, Springer Tracts Mod. Phys., 258, Cham (ZG): Springer Int. Publ. (2014).
11. Z. Huang and K. J. Kim, Phys. Rev. ST Accel. Beams **10**, 034801 (2007).
12. G. Margaritondo and P. R. Ribic, J. Synchrotron Rad. **18**, 101 (2011).
13. E. L. Saldin, E. A. Schneidmiller, and M. V. Yurkov, *The Physics of Free Electron Lasers*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2000).
14. R. Bonifacio, C. Pellegrini, and L. Narducci, Opt. Comm. **50**, 373 (1984).
15. T. Sumi, M. Horio, T. Senoo et al., E-J. Surf. Sci. Nanotech. **20**, 31 (2021), DOI: 10.1380/ejssnt.2022-002.
16. S. Shwartz, M. Fuchs, J. B. Hastings et al., Phys. Rev. Lett. **112**, 163901 (2014).

17. S. Yamamoto, T. Omi, H. Akai et al., *Phys. Rev. Lett.* **120**, 223902 (2018).
18. E. Berger, S. Jamnuch, C. Uzundal et al., *arXiv*: 2010.03134.
19. R. K. Lam, S. L. Raj, T. A. Pascal et al., *Phys. Rev. Lett.* **120**, 023901 (2018).
20. L. Wu, S. Patankar, T. Morimoto et al., *Nature Phys.* **13**, 350 (2016).
21. M. Nuriya, S. Fukushima et al., *Nature Commun.* **7**, 11557 (2016).
22. C. P. Schwartz, S. L. Raj, S. Jamnuch et al., *arXiv*: 2005.01905.
23. P. J. Campagnola and L. M. Loew, *Nature Biotechnol.* **21**, 1356 (2003).
24. T. Helk, E. Berger, S. Jamnuch et al., *Sci. Adv.* **7**, 2265 (2021).
25. G. Boyd, T. Bridges, and E. Burkhardt, *IEEE J. Quant. Electron.* **4**, 515 (1968).
26. G. C. Bhar, S. Das, and K. L. Vodopyanov, *Appl. Phys. B* **61**, 187 (1995).
27. K. Zhukovsky, *Opt. Laser Technol.* **131**, 106311 (2020).
28. K. Zhukovsky, *Eur. Phys. J. Plus* **136**, 714 (2021).
29. K. Zhukovsky, *Ann. Phys.* **533**, 2100091 (2021).
30. K. Zhukovsky, *Rad. Phys. Chem.* **189**, 109698 (2021).
31. K. Zhukovsky, *Opt. Laser Technol.* **143**, 107296 (2021).
32. K. Zhukovsky, *Results Phys.* **19**, 103361 (2020).
33. K. Zhukovsky and I. Fedorov, *Symmetry* **13**, 135 (2021).
34. J. R. Henderson, L. T. Campbell, H. P. Freund, and B. W. J. McNeil, *New J. Phys.* **18**, 062003 (2016).
35. H. P. Freund, P. J. M. van der Slot, D. L. A. G. Grimminck et al., *New J. Phys.* **19**, 023020 (2017).
36. H. P. Freund and P. J. M. van der Slot, *New J. Phys.* **20**, 073017 (2018).
37. P. Emma, R. Akre, J. Arthur et al., *Nature Photonics* **4**, 641 (2010).
38. D. Ratner, A. Brachmann, F. J. Decker et al., *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **14**, 060701 (2011).
39. S. V. Milton, E. Gluskin, N. D. Arnold et al., *Science* **292**, 2037 (2001).
40. S. G. Biedron et al., *Nucl. Instrum. Meth. A* **483**, 94 (2002).
41. L. Giannessi et al., *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **14**, 060712 (2011).
42. К. В. Жуковский, *Изв. вузов. Физика* **62**, 109 (2019) [K. V. Zhukovsky, *Russ. Phys. J.* **62** (6), 1043 (2019)].
43. H. P. Freund and P. J. M. van der Slot, *J. Phys. Commun.* **5**, 085011 (2021).
44. K. Zhukovsky and A. Kalitenko, *J. Synchrotron Rad.* **26**, 159 (2019).
45. К. В. Жуковский, А. М. Калитенко, *Изв. вузов. Физика* **62**, 153 (2019) [K. V. Zhukovsky and A. M. Kalitenko, *Russ. Phys. J.* **62** (2), 354 (2019)].
46. К. В. Жуковский, *УФН* **191**, 318 (2021) [K. V. Zhukovsky, *Physics-Uspekhi* **64**, 304 (2021)].
47. B. Prakash, V. Huse, M. Gehlot, and G. Mishra, *Optik* **127**, 1639 (2016).
48. V. L. Bratman, N. S. Ginzburg, and M. I. Petelin, *Opt. Comm.* **30**, 409 (1979).
49. M. Xie, *Nucl. Instrum. Meth. A* **445**, 59 (2000).
50. M. Xie, *Proc. 1995 Particle Accelerator Conf.*, IEEE, Piscataway, NJ, 183 (1995).
51. G. Dattoli, P. L. Ottaviani, and S. Pagnutti, *J. Appl. Phys.* **97**, 113102 (2005).
52. G. Dattoli, L. Giannessi, P. L. Ottaviani, and C. Ron-sivalle, *J. Appl. Phys.* **95**, 3206 (2004).
53. L. Giannessi, *Seeding and Harmonic Generation in Free-Electron Lasers, Synchrotron Light Sources and Free-Electron Lasers*, ed. by E. J. Jaeschke et al., Switzerland, Springer Int. Publ. (2016), DOI: 10.1007/978-3-319-14394-1_3.
54. Z. Huang and K.-J. Kim, *Nucl. Instrum. Meth. A* **475**, 112 (2001).
55. G. Geloni, E. Saldin, E. Schneidmiller, and M. Yurkov, *Opt. Comm.* **271**, 207 (2007).
56. K. Zhukovsky, I. Fedorov, and N. Gubina, *Opt. Laser Technol.* **159**, 108972 (2023).
57. K. Zhukovsky, *Europhys. Lett.* **141**, 45002 (2023).
58. К. В. Жуковский, *ЖЭТФ* **164**, 315 (2023) [K. V. Zhukovsky, *JETP* **137**, 271 (2023)].
59. A. V. Savilov and G. S. Nusinovich, *Phys. Plasmas* **14**, 053113 (2007).
60. D. D. Krygina, N. Y. Peskov, and A. V. Savilov, *Frequency Multiplication in a Powerful Terahertz Free-Electron Maser, 2021 46th Int. Conf. on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz)*, Chengdu, China (2021), DOI: 10.1109/IRMMW-THz50926.2021.9567533.
61. A. V. Savilov and G. S. Nusinovich, *Phys. Plasmas* **15**, 013112 (2008).
62. А. М. Калитенко, К. В. Жуковский, *ЖЭТФ* **157**, 394 (2020) [A. M. Kalitenko and K. V. Zhukovskii, *JETP* **130**, 327 (2020)].

РАСЧЕТ ЭФФЕКТИВНОЙ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ КОМПОЗИТНОГО МАТЕРИАЛА, СОДЕРЖАЩЕГО НАПОЛНИТЕЛЬ С ОТРИЦАТЕЛЬНОЙ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТЬЮ

В. В. Тюрнев*

Институт физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук
660036, Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 29 марта 2024 г.,
после переработки 22 апреля 2024 г.
Принята к публикации 30 мая 2024 г.

Дано объяснение, почему уравнение Бруггемана непригодно для расчета эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью. Получены формулы для расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита, содержащего сферические наночастицы наполнителя с отрицательной диэлектрической проницаемостью. Эти формулы могут быть использованы при получении композитных материалов с заданной диэлектрической проницаемостью, когда в композитах в качестве наполнителя используются наночастицы металла. Предсказано существование в указанных случаях немонотонной «резонансной» зависимости эффективной диэлектрической проницаемости от концентрации наночастиц наполнителя.

DOI: 10.31857/S00044451024110038

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из важных достоинств композитного материала является то, что, варьируя в его матрице величину объемной концентрации наночастиц наполнителя, можно изготавливать искусственный материал с заданным значением эффективной диэлектрической проницаемости. В частности, использование таких композитных материалов в многослойных полосно-пропускающих фильтрах, относящихся к частотно-селективным поверхностям микроволнового и оптического диапазонов, позволяет существенно уменьшить количество диэлектрических слоев в конструкции и благодаря этому значительно повысить их частотно-селективные свойства [1]. Это повышение выражается в расширении нижней и верхней полосы заграждения фильтра при фиксированной ширине полосы пропускания.

Для расчета эффективной диэлектрической проницаемости композитных материалов широко используется уравнение Бруггемана [2]. В случае изотропных композитов, содержащих сферические изо-

тропные частицы, это уравнение имеет вид

$$c_f \frac{\varepsilon^f - \varepsilon^e}{\varepsilon^f + 2\varepsilon^e} + (1 - c_f) \frac{\varepsilon^m - \varepsilon^e}{\varepsilon^m + 2\varepsilon^e} = 0, \quad (1)$$

где c_f — относительная объемная концентрация частиц наполнителя в матрице композитного материала, ε^m и ε^f — относительные диэлектрические проницаемости материала матрицы композита и материала ее наполнителя соответственно, ε^e — относительная эффективная диэлектрическая проницаемость композитного материала. Это уравнение было получено в квазистатическом приближении, предполагающем, что размеры каждой частицы композитного материала малы по сравнению с длиной волны как в самой частице, так и в композитном материале. Дипольное взаимодействие между частицами композита учитывалось в приближении эффективного поля, описывающего воздействие на выделенную частицу со стороны других окружающих частиц. Такое приближение стали называть приближением эффективной среды [3] или теорией эффективной среды [4]. Решение уравнения (1) выражается формулой

$$\varepsilon^e = \frac{H + \sqrt{H^2 + 8\varepsilon^m\varepsilon^f}}{4}, \quad (2)$$

где

$$H = (2 - 3c_f)\varepsilon^m + (3c_f - 1)\varepsilon^f.$$

* E-mail: tyurnev@iph.krasn.ru

Обобщение уравнения (1) на случай, когда размеры сферических частиц соизмеримы с длиной волны в материале наполнителя, но остаются много меньше длины в композитном материале, проще всего осуществить, если в уравнении (1) провести замену [5]

$$\varepsilon^i \rightarrow \varepsilon^i J(k^i a), \quad (3)$$

где $k^i = \sqrt{\varepsilon^i \mu^i} \omega / c$ — волновое число для i -го материала ($i = m, f$), a — радиус частиц, а функция $J(x)$ задана формулой

$$J(x) = 2 \frac{1 - x \operatorname{ctg}(x)}{x^2 + x \operatorname{ctg}(x) - 1}. \quad (4)$$

Эта функция при $x = 0$ становится равной единице.

Обобщение уравнения (1) на случай анизотропных композитных материалов, содержащих сонаправленные эллипсоидальные частицы из изотропных материалов, записывают в виде системы уравнений [6–8]

$$\frac{c_f(\varepsilon^f - \varepsilon_j^e)}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^f - \varepsilon_j^e)} + \frac{(1 - c_f)(\varepsilon^m - \varepsilon_j^e)}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^m - \varepsilon_j^e)} = 0, \quad (5)$$

где ε_j^e — диагональные элементы тензора относительной эффективной диэлектрической проницаемости ϵ^e композитного материала, индекс j нумерует оси координат x, y, z , совпадающие с осями сонаправленных эллипсоидальных частиц, N_j — коэффициенты деполяризации эллипсоидальных частиц композита. Уравнения (5) выражают требование равенства нулю суммы электрических дипольных моментов $\mathbf{p}^i$ всех частиц как матрицы, так и наполнителя, содержащихся в любом достаточно большом выделенном объеме композитного материала. Отметим, что составляющие комплексного вектора $\mathbf{p}^i$ дипольного момента i -й частицы в анизотропной среде с тензором относительной диэлектрической проницаемости ϵ^e выражаются формулой [9]

$$p_j^i = V^i \frac{\varepsilon_j^e(\varepsilon^i - \varepsilon_j^e)}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^i - \varepsilon_j^e)} \varepsilon_0 E_j^0, \quad (6)$$

где ε_0 — абсолютная диэлектрическая проницаемость свободного пространства, $\mathbf{E}^0$ — комплексная амплитуда электрического поля в анизотропной окружающей среде, V^i — объем, ε^i — относительная диэлектрическая проницаемость материала i -й частицы.

Далее гармонические электромагнитные колебания будем описывать множителем $\exp(-i\omega t)$. В этом случае мнимая часть любой из рассматриваемых диэлектрических проницаемостей не может принимать отрицательное значение.

Коэффициенты деполяризации N_j известны как элементы тензора деполяризации $\mathbf{N}$, которые описывают связь электрического поля $\mathbf{E}^i$ внутри образца с полем $\mathbf{E}^0$ в окружающем образце пространстве. Когда образец имеет форму эллипсоида, а его оси направлены вдоль осей тензора ϵ^e , описывающего диэлектрические свойства окружающей среды, эта связь выражается формулой [9]

$$E_j^i = \frac{\varepsilon_j^e}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^i - \varepsilon_j^e)} E_j^0, \quad (7)$$

где ε^i — относительная диэлектрическая проницаемость изотропного материала i -го образца. Для сферического образца в изотропной среде коэффициент деполяризации N_j не зависит от диэлектрических проницаемостей ε^i , ε^e и принимает фиксированное значение для любого направления j . В этом случае формула (7) имеет простой вид [9]

$$\mathbf{E}^i = \frac{3\varepsilon^e}{2\varepsilon^e + \varepsilon^i} \mathbf{E}^0. \quad (8)$$

Математическое решение системы уравнений (5) можно записать в виде

$$\varepsilon_j^e = \frac{H_j \pm \sqrt{R_j}}{2(1 - N_j)}, \quad (9)$$

$$R_j = H_j^2 + 4N_j(1 - N_j)\varepsilon^m \varepsilon^f, \\ H_j = (1 - c_f - N_j)\varepsilon^m + (c_f - N_j)\varepsilon^f.$$

Как отмечено в [8], традиционно в уравнение (5) подставляют значения коэффициентов N_j , которые рассматривают как константы, не зависящие от ε_j^e и заданные интегралами

$$N_j = \int_0^\infty \frac{a_x a_y a_z ds}{2(s + a_j^2) \sqrt{(s + a_x^2)(s + a_y^2)(s + a_z^2)}}, \quad (10)$$

где a_x, a_y, a_z — полуоси эллипсоидальных частиц композита. Из этой формулы следует, что

$$N_x + N_y + N_z = 1. \quad (11)$$

Также видно, что коэффициенты N_j в формуле (10) зависят только от формы частиц, но не от их размеров и диэлектрических проницаемостей ε^m и ε^f . В частном случае, когда эллипсоид является сфероидом, т.е. $a_x = a_y \neq a_z$, формула (10) существенно упрощается и принимает вид [9]

$$N_z = \frac{1 + \kappa^2}{\kappa^3} (\kappa - \operatorname{arctg} \kappa), \\ N_x = N_y = \frac{1 - N_z}{2}, \quad (12) \\ \kappa = \sqrt{a_x^2/a_z^2 - 1}.$$

Однако формула (12) была получена для сфероидального образца, расположенного только в изотропной среде [9]. Это значит, что ее использование для образцов в анизотропных средах неправомерно. Поэтому в [8] для коэффициентов деполяризации N_j предлагается использовать другую формулу, являющуюся строгой, но более сложной. Она совпадает с формулой (10), если в ней вместо полюсов a_x и a_z использовать полюсы приведенного сфероида [10]

$$a'_x = a_x / \sqrt{\varepsilon_x^e}, \quad a'_z = a_z / \sqrt{\varepsilon_z^e}. \quad (13)$$

Таким образом, коэффициенты деполяризации N_j в уравнениях (5) являются не константами, а функциями концентрации c_f . Их надо искать вместе с функциями $\varepsilon_j^e(c_f)$ совместным решением системы уравнений (9), (10) и (13). Заметим, что коэффициенты N_x и N_z , согласно формулам (12) и (13), могут принимать комплексные значения, когда отношение $\varepsilon_x^e / \varepsilon_z^e$ перестает быть вещественным. На эти факты было указано в работе [8]. Сравнение результатов расчета ε_j^e , выполненных с использованием как традиционной, так и строгой формулы для коэффициентов деполяризации N_j , проведено в работе [11].

Далее будем рассматривать случай композитного материала, изотропного по отношению к однородному электрическому полю $\mathbf{E}^0$. Для определенности будем предполагать, что это поле направлено вдоль оси z . Поэтому эффективной диэлектрической проницаемостью композита ε^e будем называть диагональный элемент ε_z^e тензора $\boldsymbol{\varepsilon}^e$, описывающего свойства среды по отношению к неоднородным локальным полям рассеяния частиц $\mathbf{E}^s$. Коэффициентом деполяризации N , отвечающим элементу ε_z^e , будем называть диагональный элемент N_z . Тогда уравнение для эффективной диэлектрической проницаемости ε^e , согласно формуле (9), принимает вид

$$\varepsilon^e = \frac{H \pm \sqrt{R}}{2(1 - N)}, \quad (14)$$

$$H = (1 - c_f - N)\varepsilon^m + (c_f - N)\varepsilon^f, \\ R = H^2 + 4N(1 - N)\varepsilon^m\varepsilon^f.$$

Эта двузначная формула при выборе в ней знака плюс и $N = 1/3$ совпадает с формулой (2).

2. НЕРЕШЕННАЯ ПРОБЛЕМА

Существенным недостатком уравнения Бруггемана (1) является то, что при отрицательных значениях ε^f существует область значений концентрации c_f , в которой эффективная диэлектрическая проницаемость ε^e , вычисляемая по формуле (2), при-

нимает комплексные значения даже при вещественных значениях ε^m и ε^f . Нижняя и верхняя границы этой области при вещественных ε^m и ε^f выражаются формулой

$$c_{1,2} = \frac{(\sqrt{2\varepsilon^m} \mp \sqrt{-\varepsilon^f})^2}{3(\varepsilon^m - \varepsilon^f)}. \quad (15)$$

Однако комплексное значение ε^e при отсутствии диэлектрических потерь недопустимо, так как оно говорит о неустойчивом состоянии композитного материала, выражающемся в изменении амплитуды плоской электромагнитной волны по мере ее распространения. На этот недостаток уравнения (1) было указано в работе [12].

Другой недостаток заключается в том, что при $2\varepsilon^m + \varepsilon^f < 0$ формула (2) в точке $c_f = 0$ вместо значения $\varepsilon^e = \varepsilon^m$ выдает значение $\varepsilon^e = -\varepsilon^f/2$, а при $\varepsilon^m + 2\varepsilon^f < 0$ в точке $c_f = 1$ вместо значения $\varepsilon^e = \varepsilon^f$ выдает значение $\varepsilon^e = -\varepsilon^m/2$. Однако этот недостаток легко устраняется, если в формуле (2) выбрать противоположный знак перед знаком квадратного корня, т. е. выбрать другой корень квадратного уравнения (1).

В оптическом диапазоне отрицательной диэлектрической проницаемостью обладают металлы [13, 14].

Целью настоящей работы является расчет концентрационной зависимости эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon^e(c_f)$ изотропного немагнитного композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью ε^f .

3. ПРИЧИНА ПРОБЛЕМЫ

Указанная проблема возникла в результате ошибочного предположения о том, что изотропная композитная среда всегда проявляет изотропные свойства не только по отношению к однородному поляризующему полю $\mathbf{E}^0$, но и по отношению к порождаемым поляризованными частицами среды локализованным неоднородным полям рассеяния $\mathbf{E}^s$, которые имеют составляющие, ортогональные полю $\mathbf{E}^0$.

В действительности же поляризованная композитная среда, являясь изотропной по отношению к однородному полю $\mathbf{E}^0$, не может сохранить свои изотропные свойства по отношению к микронеподнородным полям $\mathbf{E}^s$, если ε^m и ε^f имеют противоположные знаки. В противном случае, т. е. при изотропных коэффициентах деполяризации N_j , поляризованная композитная среда будет по отношению к полям $\mathbf{E}^s$ находиться в неустойчивом состоянии, на что ука-

зывает появление мнимой части при вещественных значениях ε^m и ε^f , как было отмечено выше.

О зависимости структуры поля рассеяния частицы $\mathbf{E}^s$ от анизотропных свойств окружающей среды, описываемых тензором ε^e , можно судить по формулам

$$\begin{aligned} E_x^p &= \frac{\frac{2p_x x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{3p_y xy}{\varepsilon_y^e} + \frac{3p_z xz}{\varepsilon_z^e} - \frac{p_x y^2}{\varepsilon_y^e} - \frac{p_x z^2}{\varepsilon_z^e}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_x^e \sqrt{\varepsilon_x^e\varepsilon_y^e\varepsilon_z^e \left(\frac{x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{z^2}{\varepsilon_z^e}\right)^{5/2}}}, \\ E_y^p &= \frac{\frac{2p_y y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{3p_z yz}{\varepsilon_z^e} + \frac{3p_x xy}{\varepsilon_x^e} - \frac{p_y z^2}{\varepsilon_z^e} - \frac{p_y x^2}{\varepsilon_x^e}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_y^e \sqrt{\varepsilon_x^e\varepsilon_y^e\varepsilon_z^e \left(\frac{x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{z^2}{\varepsilon_z^e}\right)^{5/2}}}, \\ E_z^p &= \frac{\frac{2p_z z^2}{\varepsilon_z^e} + \frac{3p_x xz}{\varepsilon_x^e} + \frac{3p_y yz}{\varepsilon_y^e} - \frac{p_z x^2}{\varepsilon_x^e} - \frac{p_z y^2}{\varepsilon_y^e}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_z^e \sqrt{\varepsilon_x^e\varepsilon_y^e\varepsilon_z^e \left(\frac{x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{z^2}{\varepsilon_z^e}\right)^{5/2}}}. \end{aligned} \quad (16)$$

Эти выражения следуют из формулы

$$\varphi^p = \frac{\varepsilon_y^e\varepsilon_z^e p_x x + \varepsilon_x^e\varepsilon_z^e p_y y + \varepsilon_x^e\varepsilon_y^e p_z z}{4\pi\varepsilon_0[\varepsilon_x^e\varepsilon_y^e\varepsilon_z^e(x^2/\varepsilon_x^e + y^2/\varepsilon_y^e + z^2/\varepsilon_z^e)]^{3/2}}, \quad (17)$$

которая описывает в квазистатическом приближении потенциал точечного дипольного момента $\mathbf{p}$ в анизотропной среде. В свою очередь сама формула (17) получается из известной формулы [9]

$$\varphi^q = \frac{q}{4\pi\varepsilon_0 \sqrt{\varepsilon_x^e\varepsilon_y^e\varepsilon_z^e(x^2/\varepsilon_x^e + y^2/\varepsilon_y^e + z^2/\varepsilon_z^e)}} \quad (18)$$

для кулоновского потенциала точечного заряда q в анизотропной окружающей среде и известного соотношения [15]

$$\varphi^p = -\frac{\mathbf{p}}{q} \text{grad} \varphi^q, \quad (19)$$

выражающего потенциал φ^p точечного дипольного момента $\mathbf{p}$ через кулоновский потенциал φ^q точечного заряда.

Таким образом, ошибка при расчете эффективной диэлектрической проницаемости изотропного композитного материала возникла в результате того, что в уравнении (14) не была учтена зависимость коэффициента деполяризации N от структуры поля $\mathbf{E}^s$, которая, в свою очередь, зависит от концентрации c_f . То есть коэффициенту деполяризации задавалось фиксированное значение $N = 1/3$, из-за чего корректная формула (14) превратилась в ошибочную формулу (2).

Поэтому цель настоящей работы сводится к расчету концентрационной зависимости коэффициента деполяризации $N(c_f)$, который используется в формуле (14) при расчете эффективной диэлектриче-

ской проницаемости $\varepsilon^e(c_f)$ изотропного композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью ε^f .

4. РЕШЕНИЕ ЗАДАЧИ

Рассмотрим сначала случай, когда диэлектрические потери в изотропном композитном материале отсутствуют и поэтому диэлектрические проницаемости ε^m , ε^f и ε^e принимают вещественные значения. Этот случай интересен тем, что для него существует несколько точек значений концентрации c_f , в которых значения N и ε^e заранее известны.

Важнейшей из этих точек является точка концентрации c_f , в которой ε^e принимает нулевое значение. Существование «нулевой» точки в области $0 < c_f < 1$ следует из условия непрерывности вещественной функции $\varepsilon^e(c_f)$ и из ее граничных условий

$$\begin{aligned} \varepsilon^e(c_f)|_{c_f=0} &= \varepsilon^m > 0, \\ \varepsilon^e(c_f)|_{c_f=1} &= \varepsilon^f < 0. \end{aligned}$$

Одновременное же обращение в нуль функции $N(c_f)$ в «нулевой» точке следует из формул (12), (13). Из уравнения (5) находим значение c_f для «нулевой» точки:

$$c_f = \varepsilon^m / (\varepsilon^m - \varepsilon^f). \quad (20)$$

Замечаем, что в этой точке подкоренное выражение R , используемое в формуле (14), обращается в нуль.

Двумя другими важными значениями c_f являются граничные точки $c_f = 0$ и $c_f = 1$, в которых ε^e принимает значения ε^m и ε^f соответственно. Для нахождения значения N в таких точках можно воспользоваться формулой

$$N = \frac{c_f \varepsilon^e}{\varepsilon^e - \varepsilon^m} + \frac{(1 - c_f) \varepsilon^e}{\varepsilon^e - \varepsilon^f}, \quad (21)$$

которая получается из уравнения (5). Отсюда находим значения N :

$$\lim_{\substack{c_f \rightarrow 0 \\ \varepsilon^e \rightarrow \varepsilon^m}} N = \frac{\varepsilon^m}{\varepsilon^m - \varepsilon^f}, \quad \lim_{\substack{c_f \rightarrow 1 \\ \varepsilon^e \rightarrow \varepsilon^f}} N = \frac{\varepsilon^f}{\varepsilon^f - \varepsilon^m}. \quad (22)$$

Замечаем, что и в этих двух крайних точках, как и в «нулевой» точке, подкоренное выражение R обращается в нуль.

Обратимся еще к двум точкам c_1 и c_2 , заданным формулой (15). В этих точках, как мы уже знаем, вещественные решения частного уравнения (1), выражаемые формулой (2), совпадают с решениями (14) обобщенного уравнения (5) при $N = 1/3$. Это

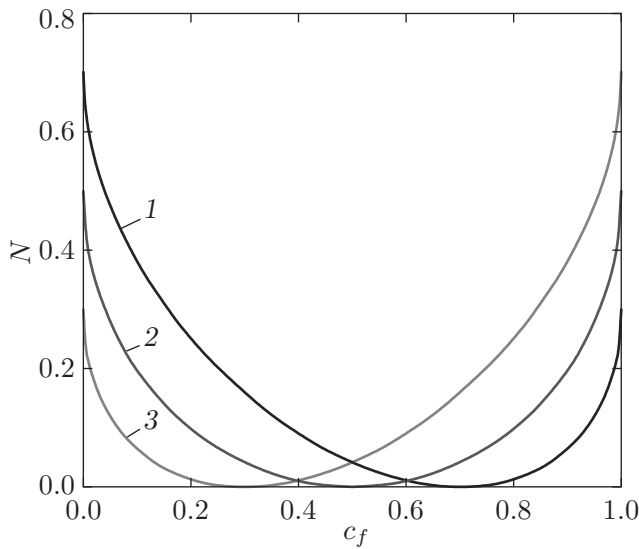


Рис. 1. Концентрационные зависимости коэффициента деполаризации частиц. 1 — $\varepsilon^m = 7$, $\varepsilon^f = -3$; 2 — $\varepsilon^m = 5$, $\varepsilon^f = -5$; 3 — $\varepsilon^m = 3$, $\varepsilon^f = -7$

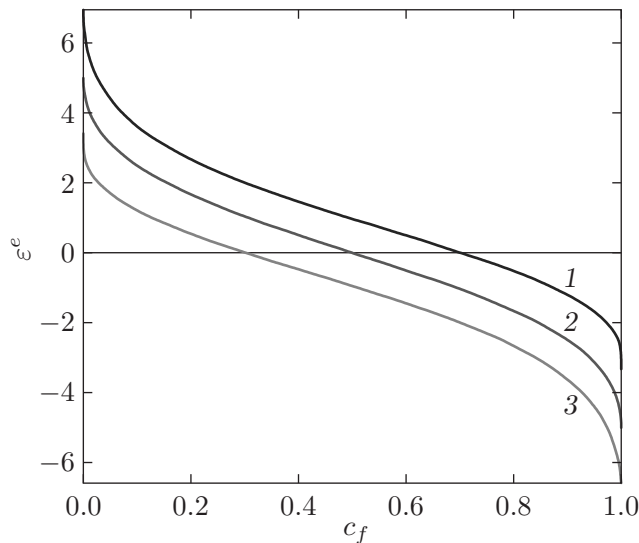


Рис. 2. Концентрационные зависимости эффективной диэлектрической проницаемости. 1 — $\varepsilon^m = 7$, $\varepsilon^f = -3$; 2 — $\varepsilon^m = 5$, $\varepsilon^f = -5$; 3 — $\varepsilon^m = 3$, $\varepsilon^f = -7$

значит, что подкоренное выражение R обращается в нуль и в этих двух точках значений c_f .

Таким образом, известные частные решения уравнения (14) для указанных выше пяти точек значения c_f могут служить критерием для проверки правильности искомого решения $\varepsilon^e(c_f)$ во всей области значений f_c .

По самому определению эффективная диэлектрическая проницаемость $\varepsilon^e(c_f)$ изотропной композитной среды является однозначной величиной, которая может принимать только одно-единственное значение. При этом его мнимая часть при наличии диэлектрических потерь должна быть только поло-

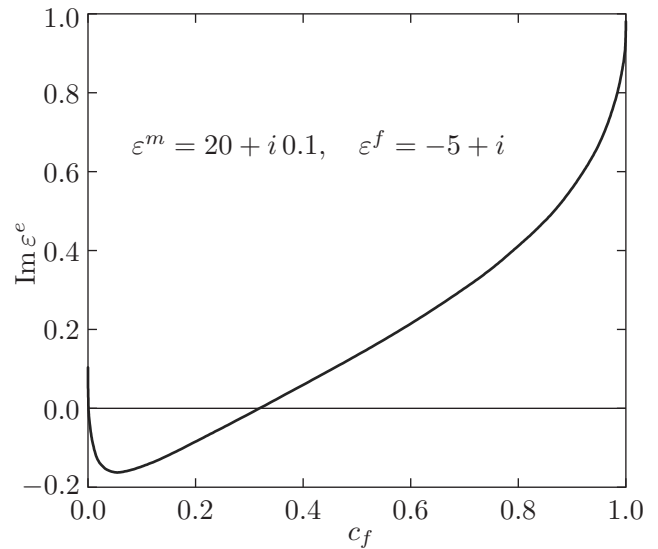


Рис. 3. Зависимость $\text{Im } \varepsilon^e(c_f)$, рассчитанная по формулам (26) и (23) и подлежащая перерасчету по формулам (27) и (23)

жительной при любой концентрации c_f , а при отсутствии потерь должна равняться нулю. Из однозначности $\varepsilon^e(c_f)$ следует, что в формуле (14) подкоренное выражение R должно равняться нулю. Отсюда для нахождения искомой зависимости $N(c_f)$ получаем недостающее уравнение:

$$\varepsilon^e = \frac{(1 - c_f - N)\varepsilon^m + (c_f - N)\varepsilon^f}{2(1 - N)}. \quad (23)$$

Из самого же равенства $R = 0$ следует уравнение

$$[(1 - c_f - N)\varepsilon^m + (c_f - N)\varepsilon^f]^2 + 4N(1 - N)\varepsilon^m\varepsilon^f = 0. \quad (24)$$

Его решение выражается двучленной формулой:

$$N = \frac{[\sqrt{(1 - c_f)\varepsilon^m} \pm \sqrt{-c_f\varepsilon^f}]^2}{\varepsilon^m - \varepsilon^f}. \quad (25)$$

В отсутствие диэлектрических потерь, как мы уже отмечали, существует «нулевая» точка c_f , в которой $N(c_f)$ обращается в нуль. Поэтому формула (24) при отсутствии диэлектрических потерь принимает вид

$$N = \frac{[\sqrt{(1 - c_f)\varepsilon^m} - \sqrt{-c_f\varepsilon^f}]^2}{\varepsilon^m - \varepsilon^f}. \quad (26)$$

Зависимости $N(c_f)$ и $\varepsilon^e(c)$, задаваемые формулами (26) и (23), иллюстрируют графики, представленные на рис. 1 и рис. 2 для трех наборов вещественных значений ε^m и ε^f .

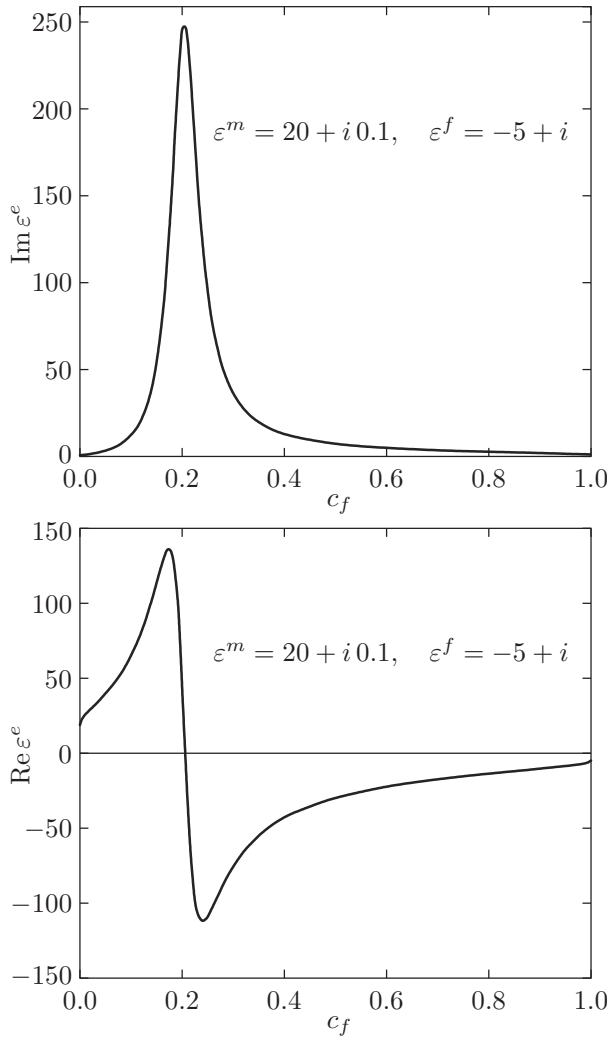


Рис. 4. Зависимости $\text{Im } \varepsilon^e(c_f)$ и $\text{Re } \varepsilon^e(c_f)$, рассчитанные по формулам (27) и (23)

Видно, что зависимости $N(c_f)$ описываются непрерывными гладкими функциями с одним минимумом на нулевом уровне. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ описываются непрерывными гладкими убывающими функциями, пересекающими нулевой уровень.

При наличии диэлектрических потерь из двух значений $N(c_f)$ в двухзначной формуле (24) следует выбрать то значение, при котором мнимая часть $\varepsilon^e(c_f)$ не принимает отрицательное значение ни при каком значении концентрации c_f . Пример, когда мнимая часть функции $\varepsilon^e(c_f)$, рассчитанной по формуле (26), принимает отрицательное значение, показывает график на рис. 3.

В этом случае вместо формулы (26) следует использовать формулу

$$N = \frac{\left[\sqrt{(1 - c_f)\varepsilon^m} + \sqrt{-c_f\varepsilon^f} \right]^2}{\varepsilon^m - \varepsilon^f}. \quad (27)$$

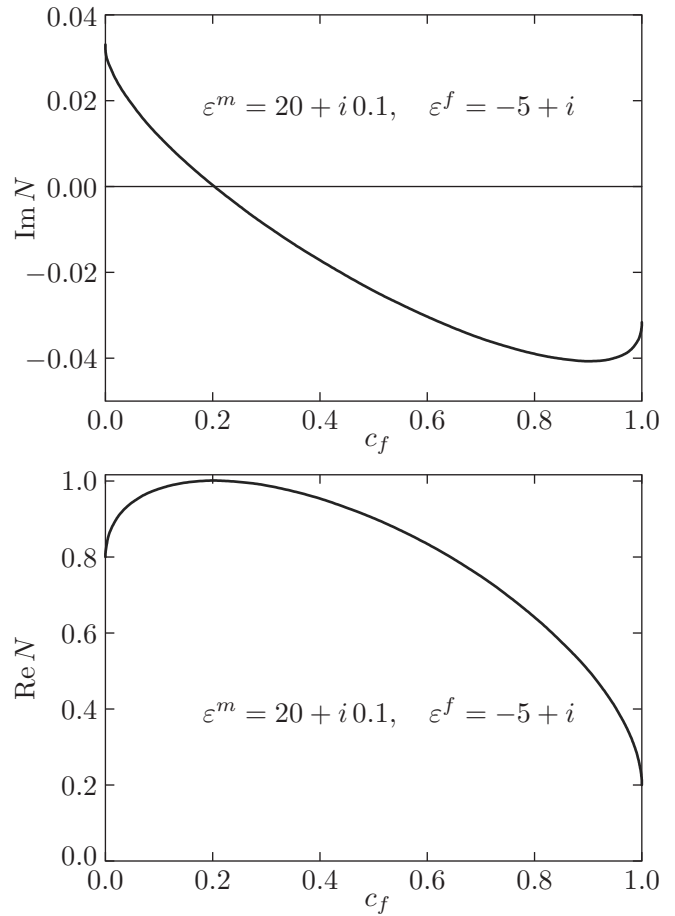


Рис. 5. Зависимости $\text{Im } N(c_f)$ и $\text{Re } N(c_f)$, рассчитанные по формуле (27)

Результат альтернативного расчета зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ по формулам (23) и (27), не допускающего возникновения области отрицательных значений $\text{Im } \varepsilon^e$ при тех же значениях параметров ε^m и ε^f , приведен на рис. 4. Соответствующая зависимость $N(c_f)$, рассчитанная по формуле (27), представлена на рис. 5.

Кривые концентрационных зависимостей на рис. 4 напоминают кривые частотного резонанса. Попробуем дать этому неожиданному явлению не строгое, но хотя бы упрощенное объяснение. Каждую наночастицу композита будем упрощенно рассматривать как реактивный двухполюсник. Для этого сначала запишем формулу для комплексной проводимости параллельного колебательного контура

$$Y_{par} = 1/R + i/(\omega L) - i\omega C_0\varepsilon \quad (28)$$

и формулу для комплексного сопротивления последовательного колебательного контура

$$Z_{ser} = R - i\omega L - i/(\omega C_0\varepsilon). \quad (29)$$

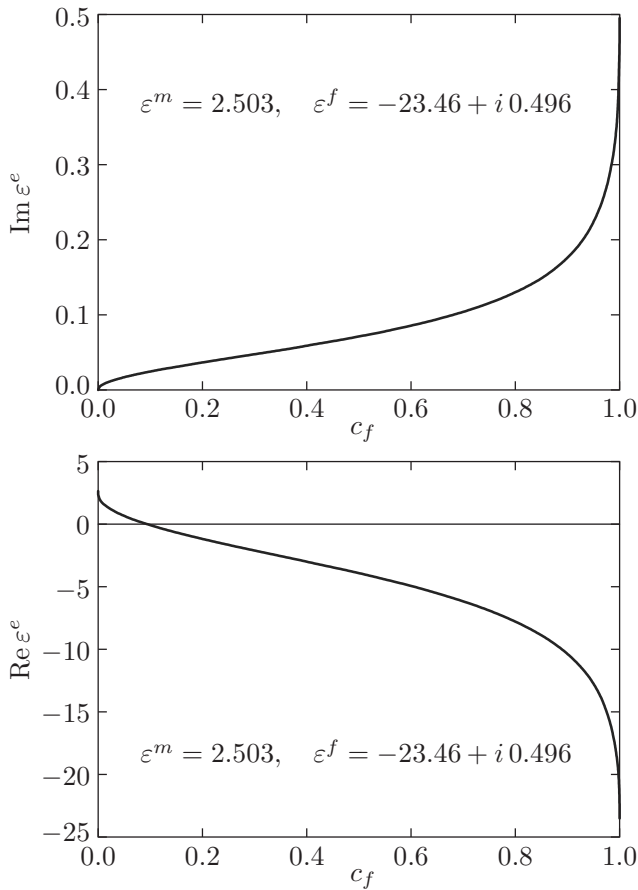


Рис. 6. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 426 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (26)

Здесь ε — относительная диэлектрическая проницаемость материала, заполняющего конденсатор, а C_0 — емкость конденсатора при $\varepsilon = 1$.

Как из формулы (28), так и из формулы (29) видно, что при $\text{Re } \varepsilon < 0$ знак величины реактивной части сопротивления конденсатора совпадает со знаком величины реактивной части сопротивления индуктивности. Это значит, что наночастицы наполнителя композитного материала с отрицательной диэлектрической проницаемостью ε^f будут проявлять свойства только индуктивности.

В случае $\text{Re } \varepsilon > 0$ знак величины реактивной части сопротивления конденсатора противоположен знаку величины реактивной части сопротивления индуктивности. Поэтому наночастицы матрицы композита, имеющие положительную диэлектрическую проницаемость ε^m , могут проявлять как свойства емкости, так и свойства индуктивности, в зависимости от того, емкостное или индуктивное слагаемое реактивной части окажется больше.

В случае, когда наночастицы матрицы проявляют емкостные свойства, они вместе с наноча-

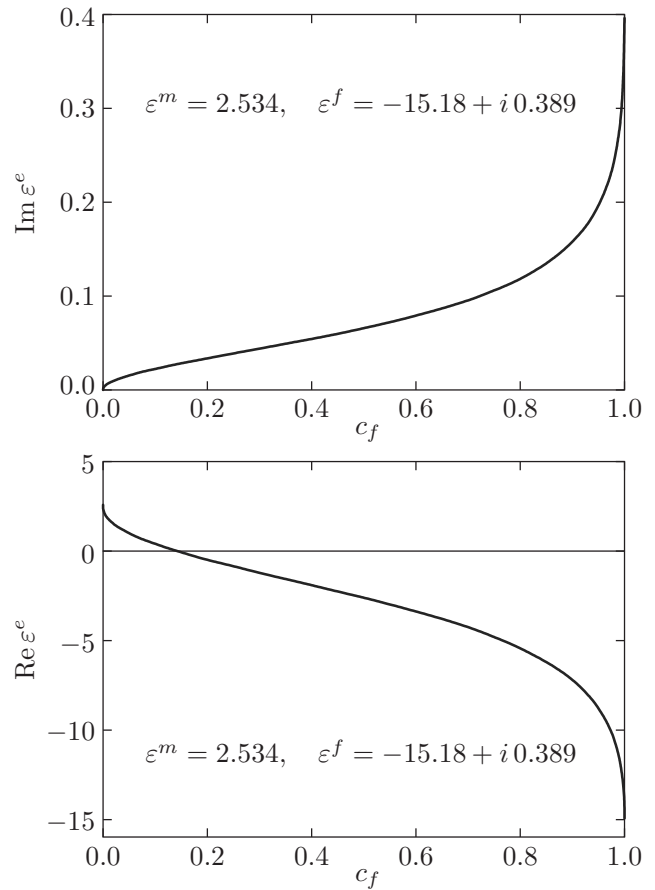


Рис. 7. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 510 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (26)

стищами наполнителя, обладающими индуктивными свойствами, будут представлять собой систему, диэлектрические свойства которой «резонансным» образом зависят от концентрации наполнителя c_f . При «резонансной» концентрации вещественная часть эффективной диэлектрической проницаемости ε^e обращается в нуль, а мнимая часть принимает максимальное значение. Ниже «резонансной» концентрации композитный материал обладает эффективной диэлектрической проницаемостью ε^e , в которой вещественная часть положительна. Выше же «резонансной» концентрации вещественная часть отрицательна.

Отметим, что полученное решение, выражаемое формулами (26), (27), находится в полном согласии с заранее известными решениями задачи для пяти указанных точек c_f . Это решение также отвечает граничным условиям

$$\varepsilon^e(c_f)|_{c_f=0} = \varepsilon^m,$$

$$\varepsilon^e(c_f)|_{c_f=1} = \varepsilon^f.$$

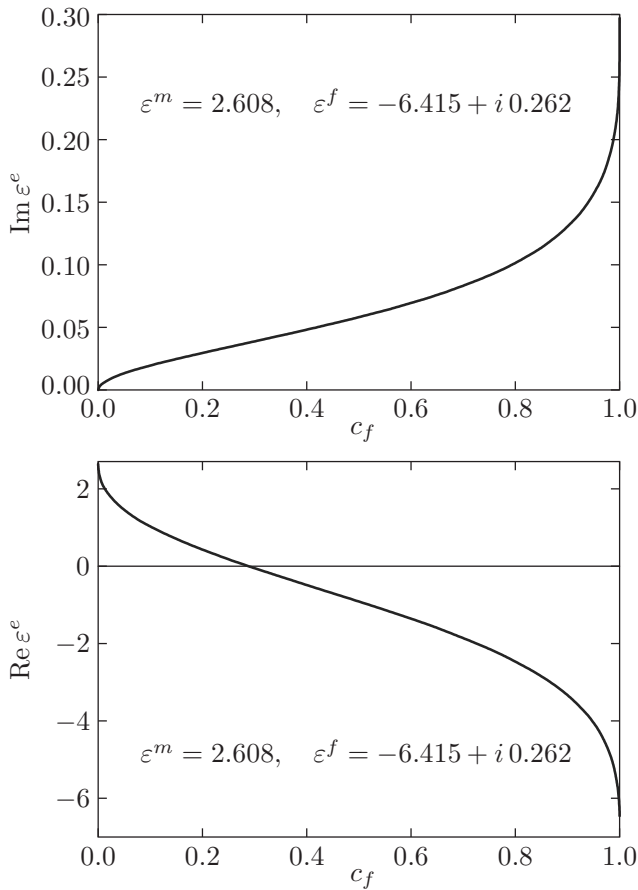


Рис. 8. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 688 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (26)

5. ПРИМЕРЫ РАСЧЕТА ДЛЯ ПОЛИСТИРОЛА, НАПОЛНЕННОГО НАНОЧАСТИЦАМИ СЕРЕБРА

В качестве примера приведем результаты расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита, матрицей в котором является полистирол, а наполнителем — наночастицы серебра. Расчет будем выполнять по формулам (26), (27) и (23) на трех частотах видимого оптического диапазона и еще на одной частоте невидимого ультрафиолетового диапазона.

Первый расчет был выполнен для частоты 426 ТГц, относящейся к диапазону красного цвета. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 2.503$ [16], а серебро — $\varepsilon^f = -23.46 + i 0.495$ [14]. Результат расчета комплексной эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 6.

Второй расчет был выполнен для частоты 510 ТГц, относящейся к диапазону желтого цвета. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 2.534$ [16], а серебро —

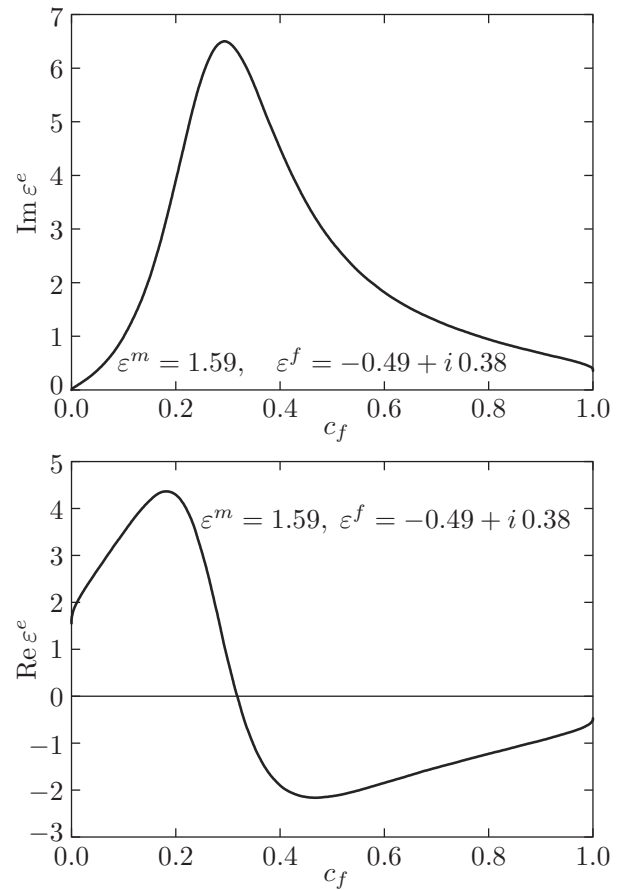


Рис. 9. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 914 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (27)

$\varepsilon^f = -15.18 + i 0.389$ [14]. Результат расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 7.

Третий расчет был выполнен для частоты 688 ТГц, относящейся к диапазону фиолетового цвета. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 2.608$ [16], а серебро — $\varepsilon^f = -6.415 + i 0.262$ [14]. Результат расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 8.

Четвертый расчет был выполнен для частоты 914 ТГц, относящейся к невидимому ультрафиолетовому диапазону. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 1.59$ [17], а серебро — $\varepsilon^f = -0.49 + i 0.38$ [14]. Результат расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 9.

Представленные результаты расчета эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, матрицей которого является полистирол, а наполнителем наночастицы серебра, показывают, что во всем видимом оптическом

диапазоне частот концентрационные зависимости $\text{Re } \varepsilon^e(c_f)$ и $\text{Im } \varepsilon^e(c_f)$ являются непрерывными монотонными функциями. Только в ультрафиолетовом диапазоне частот концентрационная зависимость $\varepsilon^e(c_f)$ перестает быть монотонной и проявляет «резонансные» свойства.

6. ВЫВОДЫ

В работе показано, что причиной того, что уравнение Бруггемана (1) не позволяет выполнять расчет эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon^e(c_f)$ изотропного композитного материала, содержащего сферические частицы наполнителя с отрицательной диэлектрической проницаемостью, является использование при его выводе ошибочного предположения о том, что коэффициент деполяризации N для любой его частицы в поляризованном композите всегда равен $1/3$.

В действительности же, коэффициент деполяризации N при отрицательном значении вещественной части диэлектрической проницаемости наполнителя ε^f является функцией объемной концентрации наполнителя c_f в матрице композита. Для расчета зависимости $N(c_f)$ была получена двузначная формула (24). В ней при заданных значениях параметров ε^m и ε^f следует из двух значений N исключить то значение, которое не обеспечивает устойчивое состояние композитного материала. Критерием неустойчивости состояния материала при наличии в нем диэлектрических потерь является отрицательная величина мнимой части у $\varepsilon^e(c_f)$ хотя бы в какой-либо области значений c_f . В отсутствие же диэлектрических потерь в двузначной формуле (25) следует выбирать значение N , выражаемое однозначной формулой (26). Для расчета $\varepsilon^e(c_f)$, отвечающего выбранному значению $N(c_f)$, была получена формула (23).

Проведенные численные расчеты $\varepsilon^e(c_f)$ с использованием полученных формул показали, что зависимость $\varepsilon^e(c_f)$ не всегда бывает монотонной. Когда вещественная часть ε^m достаточно велика по сравнению с $|\varepsilon^f|$, зависимость $\varepsilon^e(c_f)$ напоминает кривую частотного резонанса.

Результаты работы могут быть полезны при разработке композитных материалов с заданным значением эффективной диэлектрической проницаемости для их использования в устройствах оптического диапазона.

Финансирование. Работа выполнена в рамках научной тематики Госзадания ИФ СО РАН.

ЛИТЕРАТУРА

1. Б. А. Беляев, Ан. А. Лексиков, В. В. Тюрнев и др., ДАН. Физика, техн. **497**, 5 (2021).
2. D. A. G. Bruggeman, Ann. der Phys. Ser. 5 **24**, 636 (1935).
3. D. J. Bergman and D. Stroud, Sol. St. Phys. **46**, 147 (1992).
4. T. C. Choy, *Effective Medium Theory*, Oxford (2016), Ch. 1.
5. Б. А. Беляев, В. В. Тюрнев, ЖЭТФ **154**, 716 (2018).
6. G. B. Smith, Opt. Commun. **71**, 279 (1989).
7. T. G. Mackay and A. Lakhtakia, J. Nanophoton. **6**, 069501 (2012).
8. D. Schmidt and M. Schubert, J. Appl. Phys. **114**, 083510 (2013).
9. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 8, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982), §§ 8, 4, 13.
10. Л. А. Апресян, Д. В. Власов, ЖТФ **84**(12), 23 (2014).
11. Б. А. Беляев, В. В. Тюрнев, С. А. Ходенков, Письма в ЖТФ **47**(23), 22 (2021).
12. T. G. Mackay, J. Nanophoton. **1**, 019501 (2007).
13. P. B. Johnson and R. W. Christy, Phys. Rev. B **6**, 4370 (1972).
14. S. Babar and J. H. Weaver, Appl. Opt. **54**, 477 (2015).
15. Р. Фейнман, Р. Лейтон, М. Сэндс, *Фейнмановские лекции по физике*, вып. 5, *Электричество и магнетизм*, Мир, Москва (1977), гл. 6, § 4 (6.20) [R. P. Feynman, R. B. Leighton, and M. Sands, *The Feynman Lectures on Physics. Vol. II: Mainly Electromagnetism and Matter*, New York (2010), Ch. 6-4 (6.20)].
16. S. N. Kasarowa, N. G. Sultanova, C. D. Ivanov et al., Opt. Materials **29**, 1481 (2007).
17. S. B. Aziz, S. Hussein, A. M. Hussein et al., Int. J. Metals **2013**, Article ID 123657, <http://dx.doi.org/10.1155/2013/123657>.

ПОИСК СВЯЗАННЫХ СОСТОЯНИЙ ОДНОМЕРНОЙ КВАНТОВОЙ СИСТЕМЫ СТЕПЕННЫМ МЕТОДОМ: ПРАКТИЧЕСКАЯ РЕАЛИЗАЦИЯ

Н. Р. Врублевская^{a,b}, Д. Е. Шпило^{a,b}, П. Я. Илюшин^{a,b}, И. А. Николаева^{a,b},
О. Г. Косарева^{a,b}, Н. А. Панов^{a,b}*

^a Физический факультет, Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия

^b Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 июня 2024 г.,
после переработки 7 июня 2024 г.
Принята к публикации 12 июня 2024 г.

Для численного решения нестационарного уравнения Шредингера в задачах об эволюции электрона в заданном потенциале под действием поля ультракороткого импульса высокой интенсивности необходимо с высокой точностью находить связанные состояния этого потенциала. В работе рассматривается применение степенного алгоритма с использованием операторных полиномов Чебышева для поиска связанных состояний одномерного квазикулоновского потенциала. Сходимость алгоритма улучшается с увеличением степени полинома m , насыщаясь при $m \geq 8$. Для такой степени основное состояние находится за $\sim 10^3$ операций вычисления гамильтониана, высоколежащие — за $\sim 10^5$ операций (несколько секунд и несколько минут соответственно).

DOI: 10.31857/S004445102411004X

Одномерные квантовые системы, в которых гамильтониан $\hat{H}$ зависит от единственной координаты x , исследуются с самого зарождения квантовой механики в связи с возможностью туннелирования частиц через потенциальный барьер [1]. В 1980–90-х годах, когда вычислительные возможности были невелики по сравнению с современными, зависимость гамильтониана от единственной пространственной координаты позволила провести численное моделирование нелинейной ионизации в таких системах [2–4]. В последнее десятилетие относительно небольшая вычислительная сложность численного интегрирования одномерного нестационарного уравнения Шредингера дала возможность самосогласованно использовать результаты квантовых расчетов в качестве нелинейного источника в $(3D + t)$ -уравнениях распространения [5] и моделировать с его помощью эффекты квантовой электродинамики в сильных полях ультракоротких импульсов [6].

Взаимодействие одномерной квантовомеханической системы с электромагнитным полем описывается нестационарным уравнением Шредингера для волновой функции $\Psi(x, t)$, здесь и далее используется атомная система единиц, если не указано обратного:

$$i \frac{\partial \Psi(x, t)}{\partial t} = \hat{H} \Psi(x, t) + \hat{\mathcal{H}} \Psi(x, t), \quad (1)$$

где

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \hat{U}(x)$$

является гамильтонианом электрона в независимом от времени t потенциале $\hat{U}(x)$, $\hat{\mathcal{H}}(t)$ — оператор, описывающий взаимодействие электрона с полем электромагнитной волны. Уравнение (1) должно быть дополнено начальным условием $\Psi(x, t = -\infty)$. Система при $t = -\infty$ обычно находится в связанном состоянии, поэтому начальными условиями для уравнения (1) являются волновые функции стационарных состояний $|\Psi_n\rangle$ (чаще всего основного с $n = 0$) с соответствующим дискретным спектром энергий $E_n < 0$, где $n = 0, 1, 2, \dots$. Функции $|\Psi_n\rangle$ являются собственными функциями оператора $\hat{H}$ и задача

* E-mail: schipilo.daniil@physics.msu.ru

поиска связанных состояний системы сводится к решению стационарного уравнения Шредингера:

$$\hat{H}|\Psi_n\rangle = E_n|\Psi_n\rangle. \quad (2)$$

Для большинства квантовых систем не существует аналитического решения уравнения (2), и необходим численный поиск собственных функций и собственных значений. При этом накладываются высокие требования на точность найденных решений для дальнейшего описания отклика квантовых систем с помощью нестационарного уравнения Шредингера, поскольку неточное определение начального состояния приводит к артефактам в решении уравнения (1).

Известны различные численные подходы к поиску собственных функций и собственных значений стационарного уравнения Шредингера: прямое интегрирование [7] уравнения (2), матричный подход [8], методы мнимого времени [9], спектральный [10], степенной [11] и т.д. С вычислительной точки зрения преимуществом степенных методов является то, что одна и та же аппроксимация гамильтониана используется при решении уравнений (2) и (1), что уменьшает скорость накопления численных ошибок при решении нестационарного уравнения. Также степенной метод свободен от проблемы постановки граничных условий [12, 13] и может применяться как для одномерных, так и для многомерных задач. Однако для квантовых систем с большим количеством связанных состояний задача поиска собственных функций может быть чрезвычайно затратной. Ускорения сходимости степенных методов можно добиться, в частности, применяя операторы, являющиеся обратными к гамильтониану [14] либо чебышевскими полиномами от гамильтониана [11], § 16. Рассмотрим второй случай, который является алгоритмически более простым и в некотором смысле более универсальным (обращение оператора Гамильтона возможно, если он аппроксимируется конечными разностями на сетке, но не в случае, когда для вычисления производной используется преобразование Фурье). Кратко изложим идею степенного метода.

Выберем произвольное приближение $|\Psi_n^{(0)}\rangle$ с учетом четности волновой функции n -го состояния и ее убывания в классически запрещенной области. Будем многократно применять к пробной волновой функции некоторый полиномиальный оператор $P(\hat{H})$, собственный базис которого совпадает с базисом $\hat{H}$. При переходе от k -й к $(k+1)$ -й итерации получаем

$$|\Psi_n^{(k+1)}\rangle = P(\hat{H})|\Psi_n^{(k)}\rangle. \quad (3)$$

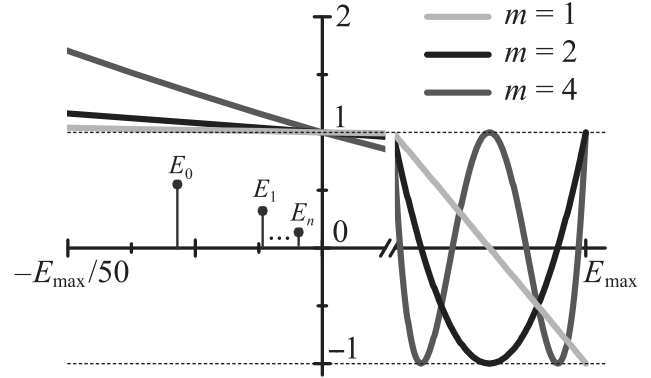


Рис. 1. Зависимость множителя перехода на каждой итерации алгоритма от энергии состояния при использовании полиномов Чебышева различной степени m . Фиолетовыми линиями условно изображены уровни дискретного спектра

Рассмотрим формальное разложение $|\Psi_n^{(k)}\rangle$ по истинному базису $|\Psi_j\rangle$ гамильтониана $\hat{H}$:

$$|\Psi_n^{(k)}\rangle \propto |\Psi_n\rangle + \sum_{j \neq n} c_j^{(k)} |\Psi_j\rangle,$$

где $c_j^{(k)}$ — коэффициенты разложения по базису $|\Psi_j\rangle$ на k -й итерации. Тогда для приближения на следующей итерации получаем

$$P(\hat{H})|\Psi_n^{(k)}\rangle \propto |\Psi_n\rangle + \sum_{j \neq n} c_j^{(k)} \underbrace{\frac{P(E_j)}{P(E_n)}}_{c_j^{(k+1)}} |\Psi_j\rangle. \quad (4)$$

Таким образом, уменьшение амплитуд при возбужденных состояниях и состояниях континуума (и, соответственно, скорость сходимости степенного алгоритма $|\Psi_n^{(k)}\rangle \rightarrow |\Psi_n\rangle$) определяется значением $\max_{j \neq n} |P(E_j)/P(E_n)|$. Оптимальный степенной алгоритм должен его минимизировать.

В результате применения такого алгоритма и нормировки волновой функции (на каждом шаге) мы получим собственную функцию $|\Psi_n\rangle$ и собственное значение $E_n = \langle \Psi_n | \hat{H} | \Psi_n \rangle$, для которых $P(E_n)$ максимально. После этого алгоритм можно повторять, удаляя из волновой функции проекции на уже найденные состояния с меньшим n :

$$|\Psi_n^{(k+1)}\rangle := |\Psi_n^{(k+1)}\rangle - \sum_{j < n} |\Psi_j\rangle \langle \Psi_j | \Psi_n^{(k+1)} \rangle,$$

т.е. обеспечивая $c_j = 0$ для $j < n$, и находить более высокие состояния и значения энергии.

Скорость сходимости степенного алгоритма определяется выбранной функцией $P(\hat{H})$ и ее спектром — значениями $P(E_n)$ для всех уровней энергии в заданном потенциале, включая уровни континуума. При этом желательно ограничиться

операторными функциями, являющимися полиномом конечной степени от оператора Гамильтона, ввиду алгоритмической простоты их вычисления (что особенно важно в многомерном случае). Воспользуемся тем, что среди всех полиномов заданной степени m , значения которых на отрезке $[-1, 1]$ по модулю не превосходят 1, полиномы Чебышева первого рода $T_m(\varepsilon) = \cos[m \arccos(\varepsilon)]$ имеют максимальные значения вне этого отрезка. Пусть $E_{max} = \pi^2/(2\Delta x^2)$ — максимальная энергия состояния, соответствующая частоте Найквиста на заданной расчетной сетке с шагом Δx . Выполним линейное преобразование

$$P_m(\varepsilon) = T_m(1 - 2\varepsilon/E_{max}),$$

разместим центр полинома Чебышева T_m в $E_{max}/2$, т. е. перенесем область, где полином $|P_m(\varepsilon)| \leq 1$, из $[-1, 1]$ в диапазон положительных энергий непрерывных состояний $[0, E_{max}]$; для связанных состояний имеем $|P_m(\varepsilon)| \geq 1$, см. рис. 1. Для энергий связанных состояний $-E_{max} \ll E_n < 0$

$$P_m(E_n) \approx T_m(1) + T'_m(1) \frac{2|E_n|}{E_{max}} = 1 + 2m^2 \frac{|E_n|}{E_{max}}, \quad (5)$$

т. е. на каждой итерации амплитуда n -го состояния будет увеличиваться примерно в $1 + 2m^2|E_n|/E_{max}$.

В настоящей работе мы используем степенной алгоритм с операторными полиномами Чебышева для поиска собственных функций и собственных значений одномерного квазикулоновского потенциала (8) с девятью связанными состояниями. Исследована зависимость скорости работы алгоритма от степени полинома Чебышева. «Оптимальная» степень полинома $m \approx 8$ обеспечивает поиск основного состояния $|\Psi_0\rangle$ за $k \approx 125$ итераций (4 с на рабочей станции с процессорами Intel® Xeon® E5-2630), а связанного состояния с наибольшей энергией $|\Psi_8\rangle$ — за $k \approx 8000$ (при времени расчета около 4 мин). При подстановке найденных волновых функций $|\Psi_n\rangle$ в качестве начальных условий нестационарного уравнения Шредингера (1) без внешнего поля артефактное значение средней координаты электрона отклоняется по модулю от нуля на $\leq 10^{-10}$ за 50 фс.

Будем использовать равномерную сетку по координате x с шагом $\Delta x = 0.125$ и числом узлов $N = 2^{16}$. Это обеспечивает достаточно большую область по x , которая важна для нестационарной задачи и определения поведения компонент волновой функции, соотносящихся с оторванными от атомного остова электронами. Относительно грубое разрешение затрудняет конечно-разностную аппроксимацию второй производной в гамильтониане, поэтому

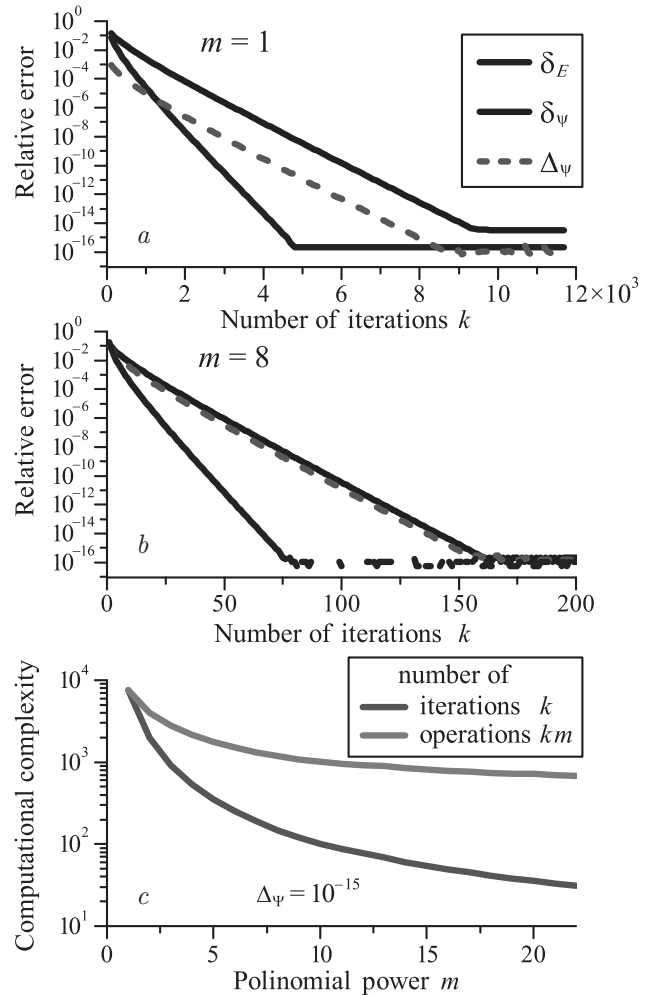


Рис. 2. *a, b* — Зависимости от номера итерации k относительных ошибок определения волновой функции $\delta_\Psi^{(k)}$ и $\Delta_\Psi^{(k)}$, а также ошибки энергии связанного состояния $\delta_E^{(k)}$ потенциала $U(x) = -\text{ch}^{-2}(x)$. Панель *a* соответствует степенному алгоритму с полиномом Чебышева $P_1(\hat{H})$, *b* — с $P_8(\hat{H})$. *c* — Количество итераций k и количество операций km , необходимых для определения $|\Psi\rangle$ с относительной ошибкой $\Delta_\Psi = 10^{-15}$ для полиномов разных степеней m

для ее определения мы использовали преобразование Фурье.

Для исследования сходимости чебышевского степенного алгоритма рассмотрим потенциал

$$U(x) = -\text{ch}^{-2}(x),$$

для которого известны аналитические выражения для волновой функции

$$\Psi_a(x) = \frac{1}{\sqrt{2}} \text{ch}^{-1}(x)$$

и энергии единственного связанного состояния

$$E_a = -\frac{1}{2} = -13.6 \text{ эВ}.$$

Для определения точности вычисления собственных

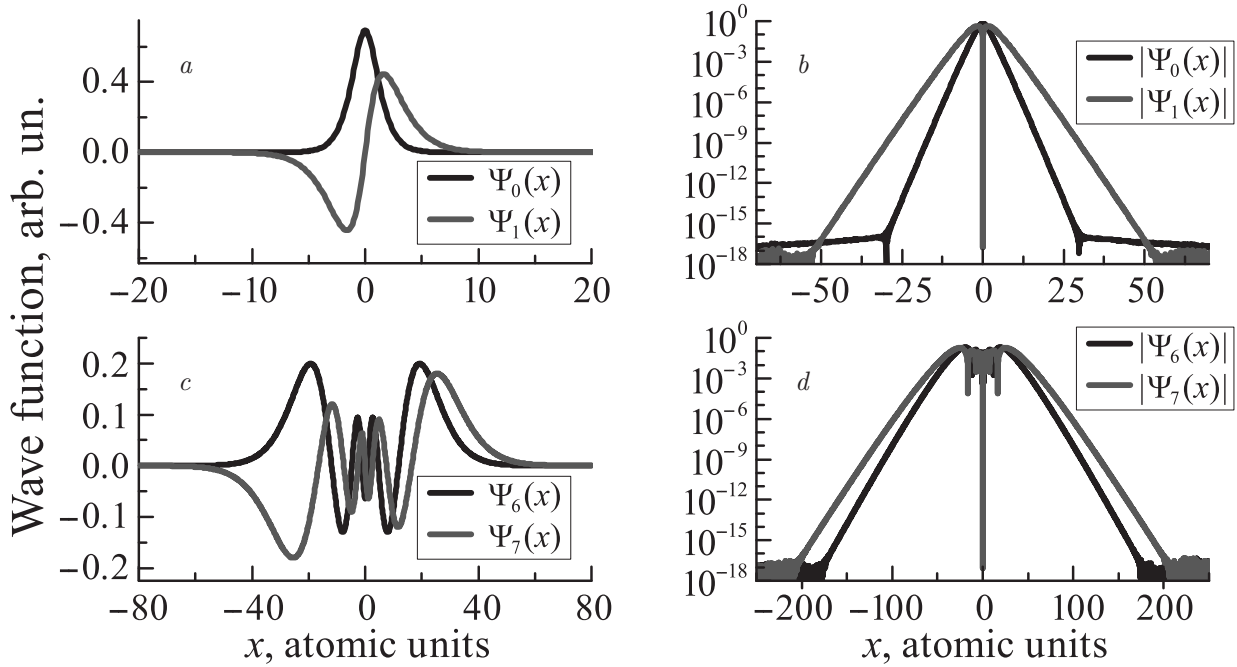


Рис. 3. a, b — Волновые функции $\Psi_0(x)$, $\Psi_1(x)$, c, d — $\Psi_6(x)$, $\Psi_7(x)$. Рисунки a, c построены в линейном масштабе, b, d — в полулогарифмическом. Моделирование проводилось для потенциала (8) с использованием полинома Чебышева $P_8(\hat{H})$

функций $\Psi^{(k)}(x)$ в таком потенциале будем использовать относительные ошибки

$$\delta_{\Psi}^{(k)} = \max_i \left| \frac{\Psi_a(x_i) - \Psi^{(k)}(x_i)}{\Psi_a(x_i)} \right| \quad (6)$$

и

$$\Delta_{\Psi}^{(k)} = \max_i \left| \frac{\Psi^{(k)}(x_i) - \Psi^{(k-1)}(x_i)}{\Psi^{(k-1)}(x_i)} \right|. \quad (7)$$

Первое из данных выражений применимо только для потенциалов с известным аналитическим представлением собственной функции, тогда как второе — для поиска собственных функций в произвольном одномерном потенциале. Относительную ошибку определения энергии состояния определим как

$$\delta_E^{(k)} = |(E_a - E^{(k)})/E_a|.$$

На рис. 2 a, b для полиномов степеней $m = 1$ и $m = 8$ соответственно показаны зависимости от номера итерации k относительных ошибок $\delta_{\Psi}^{(k)}$, $\Delta_{\Psi}^{(k)}$ и $\delta_E^{(k)}$ в исследуемом потенциале. Ошибка определения энергии $\delta_E^{(k)}$ с ростом k убывает быстрее, чем $\delta_{\Psi}^{(k)}$ и $\Delta_{\Psi}^{(k)}$, поэтому в дальнейшем мы будем оценивать скорость выполнения алгоритма через ошибки определения волновой функции. Ошибки $\delta_{\Psi}^{(k)}$ и $\Delta_{\Psi}^{(k)}$ убывают с одинаковым показателем экспоненты и практически одновременно достигают «шумов» $\sim 10^{-15}$, связанных с ошибками округления чисел двойной точности (рис. 2 a, b). Следовательно, условие окончания итерационного алгоритма можно выбирать на основе $\Delta_{\Psi}^{(k)} \approx 10^{-15}$.

С ростом степени полинома m количество итераций, необходимых для достижения одинаковой точности $\Delta_{\Psi} = 10^{-15}$ монотонно убывает на 2 порядка при изменении m от 1 до 24 (см. рис. 2 c). Однако для выполнения одной итерации алгоритма с использованием полинома $P_m(\hat{H})$ требуется в m раз больше операций, чем для полинома $P_1(\hat{H})$. Поэтому выбор порядка полинома определялся переходом к постоянному значению количества операций km , позволяющих найти $|\Psi\rangle$ с относительной ошибкой $\Delta_{\Psi} = 10^{-15}$, которое в нашем случае составляет

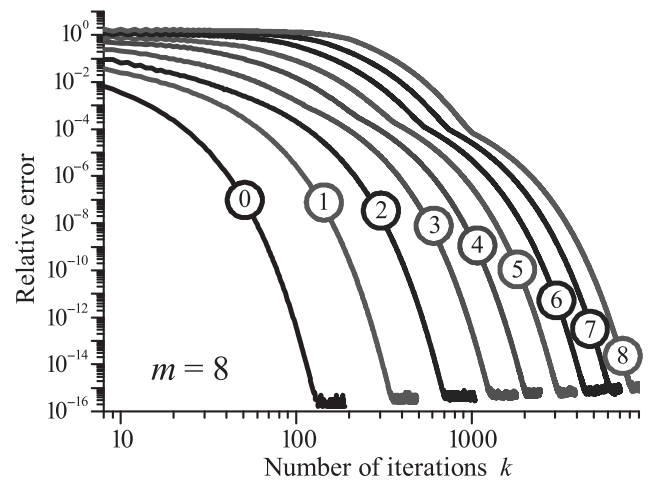


Рис. 4. Относительная ошибка определения волновых функций Δ_{Ψ} в зависимости от числа итераций k для потенциала (8). Цифрами обозначены номера состояний (0 — основное)

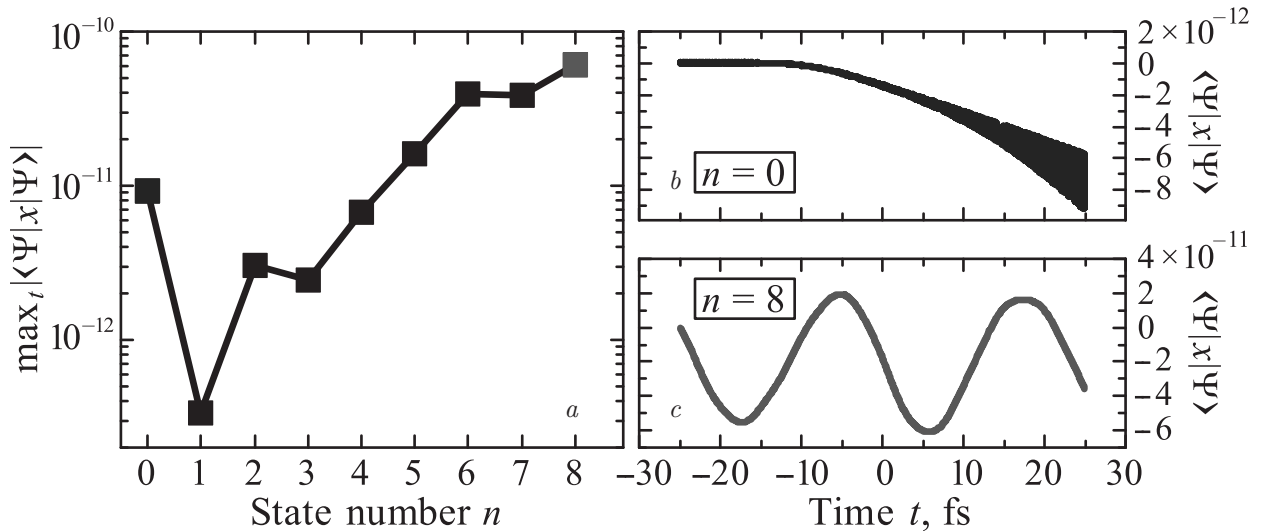


Рис. 5. *a* — Зависимость от номера n связанного состояния потенциала (8) максимального по модулю артефактного отклонения от нуля средней координаты электрона за 50 фс, полученной при численном интегрировании нестационарного уравнения Шредингера (1) в отсутствие внешнего поля ($\hat{\mathcal{H}} = 0$) с начальным условием $\Psi(x, t = -\infty) = \Psi_n(x)$. *b, c* — Примеры артефактных зависимостей средней координаты электрона от времени для $n = 0$ и $n = 8$ соответственно

$\sim 10^3$ и достигается при $m \approx 8$. Таким образом, степень полинома Чебышева $m = 8$ является оптимальной с точки зрения практической реализации степенного алгоритма решения стационарного уравнения Шредингера (2).

Теперь применим степенной алгоритм с найденным «оптимальным» значением $m = 8$ к потенциалу $U(x)$, для которого отсутствует аналитическое решение уравнения (2):

$$U(x) = -\frac{A}{\sqrt{x^2 + B^2}} \exp\left[-\left(\frac{x}{C}\right)^{16}\right]. \quad (8)$$

Первый из сомножителей здесь соответствует квазикулоновскому потенциалу с бесконечным числом уровней [2], тогда как второй делает их число конечным. Чтобы получить достаточно большое количество связанных состояний, мы зафиксировали константу $C = 512$. Далее мы подобрали значения констант $A = 1.13$ и $B = 0.827$ таким образом, чтобы энергия основного состояния соответствовала потенциалу ионизации атома гелия. В полученном потенциале мы нашли девять связанных состояний. Волновые функции основного $\Psi_0(x)$ и некоторых возбужденных $\Psi_1(x)$, $\Psi_6(x)$ и $\Psi_7(x)$ состояний представлены на рис. 3 в линейном (*a, c*) и полупологарифмическом (*b, d*) масштабах соответственно. Энергии этих состояний равны $E_0 = -24.61$ эВ, $E_1 = -9.84$ эВ, $E_6 = -1.20$ эВ и $E_7 = -0.92$ эВ. В согласии с известными аналитическими решениями [15] вне ямы волновые функции $\Psi_n(x)$ убывают пропорционально $\exp(-|x|\sqrt{-2E_n})$ вплоть до «шумов», связанных с ошибками округления (рис. 3*b, d*).

Исследуем сходимость степенного алгоритма для состояний из дискретного спектра с различным квантовым числом n . Для этого рассмотрим рис. 4, на котором представлены зависимости относительной ошибки $\Delta\Psi$ от номера итерации k . При $n = 0$ значение $\Delta\Psi = 10^{-15}$ достигается за $k \approx 125$ итераций, что соответствует времени выполнения программы 4 с, при $n = 1$ — за $k \approx 340$ итераций и 11 с, а при $n = 8$ значение k возрастает до ~ 8000 и время счета увеличивается до ~ 4 мин (на рабочей станции с процессорами Intel® Xeon® E5-2630).

Мы подставили полученные $\Psi_n(x)$ в качестве начальных условий нестационарного уравнения Шредингера (1) с $\hat{\mathcal{H}} = 0$, которое было численно проинтегрировано согласно методике, описанной в работе [16]. Полученное при моделировании среднее значение $\langle\Psi|\hat{x}|\Psi\rangle$ оператора $\hat{x}$ координаты электрона за 50 фс изменяется по модулю на $\leq 10^{-10}$ для всех найденных волновых функций $\Psi_n(x)$, см. рис. 5. Такая величина средней координаты электрона на 6–7 порядков меньше значения $\langle\Psi|\hat{x}|\Psi\rangle$, достигаемого в одномерной квантовой системе под действием импульса с интенсивностью $\sim 1\text{--}100$ ТВт/см² [16]. Это свидетельствует о том, что степенной алгоритм поиска собственных состояний одномерной системы обеспечивает точность определения $|\Psi_n\rangle$, заведомо достаточную для квантовомеханического моделирования эволюции одномерной системы под действием интенсивного ультракороткого импульса.

Итак, мы применили степенной алгоритм, использующий операторные полиномы Чебышева, для определения волновых функций $\Psi_n(x)$ и уровней

энергий E_n связанных состояний одномерных потенциалов с точностью, достаточной для их применения в качестве начальных условий $\Psi(x, t = -\infty) = \Psi_n(x)$ нестационарного уравнения Шредингера. Установлено, что с ростом степени полинома m сходимость степенного метода улучшается: число необходимых для достижения заданной точности итераций k быстро уменьшается. Однако число операций km вычисления гамильтониана уменьшается гораздо медленнее, практически стремясь к постоянному значению при $m \geq 8$. Таким образом, применение в степенном методе поиска связанных состояний полиномов Чебышева со степенью выше восьмой представляется избыточным.

Финансирование. Исследование выполнено при поддержке Российского научного фонда (грант № 24-19-00461), <https://rscf.ru/project/24-19-0046/>. Работа Д. Е. Шипило поддержана стипендией Президента РФ молодым ученым и аспирантам (СП-3450.2022.2). Работа И. А. Николаевой, Н. Р. Врублевской и П. Я. Илюшина поддержана стипендиями Фонда развития теоретической физики и математики «БАЗИС» (21-2-10-55-1, 23-2-9-34-1 и 23-2-1-40-1).

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Eckart, Phys. Rev. **35**, 1303 (1930).
2. J. Javanainen, J. H. Eberly, and Q. Su, Phys. Rev. A **38**, 3430 (1988).
3. Е. А. Волкова, А. М. Попов, ЖЭТФ **106**, 735 (1994).
4. A. Popov, O. Tikhonova, and E. Volkova, J. Phys. B **32**, 3331 (1999).
5. M. Kolesik, J. M. Brown, A. Teleki, P. Jakobsen, J. V. Moloney, and E. M. Wright, Optica **1**, 323 (2014).
6. A. Bogatskaya, E. Volkova, and A. Popov, Europhys. Lett. **116**, 14003 (2016).
7. J. Cooley, Math. Comp. **15**, 363 (1961).
8. J. F. Van der Maelen Uría, S. García-Granda, and A. Menéndez-Velázquez, Amer. J. Phys. **64**, 3 (1996).
9. R. Kosloff and H. Tal-Ezer, Chem. Phys. Lett. **127**, 223 (1986).
10. M. Feit, J. Fleck, Jr., and A. Steiger, J. Comput. Phys. **47**, 412 (1982).
11. Р. П. Федоренко. *Введение в вычислительную физику: Учебное пособие для вузов*, под ред. А. И. Лобанова, Издательский дом «Интеллект», Долгопрудный (2008).
12. X. Antoine, A. Arnold, C. Besse, M. Ehrhardt, and A. Schädle, Commun. Comput. Phys. **4**, 729 (2008).
13. X. Antoine, C. Besse, M. Ehrhardt, and P. Klein, *Modeling Boundary Conditions for Solving Stationary Schrödinger Equations*, Preprint 10/04 of the Chairs of Applied Mathematics & Numerical Analysis and Optimization and Approximation, University of Wuppertal, February (2010).
14. M. Nurhuda and A. Rouf, Phys. Rev. E **96**, 033302 (2017).
15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика: Нерелятивистская теория*, Наука, Москва (1989).
16. Н. Врублевская, Д. Шипило, И. Николаева, Н. Панов, О. Косарева, Письма в ЖЭТФ **117**, 400 (2023).

НАГРЕВ МОЛЕКУЛЯРНОГО ОБЛАКА ПЕРВИЧНОЙ ЧЕРНОЙ ДЫРОЙ

А. Н. Мелихов *, Е. В. Михеева **

*Астрокосмический центр Физического института им. П. Н. Лебедева
Российской академии наук
117997, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 17 апреля 2024 г.,
после переработки 19 июля 2024 г.
Принята к публикации 22 июля 2024 г.

Рассмотрен нагрев молекулярного облака фотонами, излученными первичной черной дырой (ПЧД), расположенной внутри облака. Для графитовых и силикатных пылинок построена зависимость температуры пыли как функции расстояния до ПЧД, а также спектр излучения пылинок. Полученный спектр сравнивается с чувствительностью космической обсерватории «Миллиметрон» для различных значений концентрации и размера пылинок и разных масс ПЧД.

DOI: 10.31857/S0044451024110051

1. ВВЕДЕНИЕ

Межзвездная пыль является одной из компонент межзвездной среды (МЗС). Она присутствует во многих астрономических объектах, таких как Солнечная система [1], кометы и метеороиды [2], звездные атмосферы [3], молодые звездные объекты [4], протозвездные и протопланетные диски [5], отражательные туманности [6], остатки сверхновых [7], молекулярные облака [8, 9], облака МЗС [10], галактики [11] и активные ядра галактик [12], в том числе те из них, которые находятся на больших красных смещениях [13].

Анализ наблюдательных данных может дать информацию как об источнике излучения, так и о среде между объектом и наблюдателем. На данный момент известно, что пыль является основным источником непрозрачности в молекулярных облаках и областях звездообразования, а также служит материалом для образования протопланетных дисков и планет. Она поглощает излучение, нагревается и переизлучает тепловую энергию в инфракрасном диапазоне, тем самым перерабатывая большую часть ультрафиолетового излучения звезд в собственное инфракрасное излучение.

Межзвездная пыль является сложной субстанцией и различается по размерам, физической структуре и химическому составу отдельных пылинок. Наиболее конкретную информацию о составе пыли можно получить из наблюдения отдельных особенностей спектров типа широких линий (полос) поглощения или излучения пыли в инфракрасном диапазоне. Детали поглощения в инфракрасных спектрах вблизи определенных длин волн связаны с возбуждением колебательных степеней свободы отдельных межатомных связей в молекулах, которые составляют пылинки [14].

Существует ряд свидетельств, которые указывают на то, что в состав межзвездной пыли входят силикатные и углеродные пылинки, а также полициклические ароматические углеводороды (ПАУ).

На наличие силикатных частиц указывает, например, полоса поглощения около 9.7 мкм, обнаруженная при исследовании межзвездной пыли вдоль луча зрения в направлении центра Галактики с помощью инфракрасной космической обсерватории ISO (*Infrared Space Observatory*) [15], а также сильная полоса поглощения вблизи 18 мкм и особенности спектра, обусловленные льдом, которые присутствуют в спектре объекта Беклина – Нойгебауэра — яркого инфракрасного источника в молекулярном облаке ОМС-1 [16].

Графитовые частицы ответственны за избыточное поглощение на длине волны около 2175 Å [17]. Это следует из лабораторных экспериментов с уг-

* E-mail: melikhov94@inbox.ru

** E-mail: helen@asc.rssi.ru

леродными частицами, в которых также наблюдалась сильная полоса поглощения вблизи этой длины волны [14].

На наличие частиц ПАУ в составе межзвездной пыли указывают особенности в спектрах инфракрасного излучения спиральных галактик вблизи 3.3, 6.2, 7.7, 8.6, 11.3 и 12.7 мкм, которые связаны с колебательными переходами в молекулах ПАУ [18].

Одной из самых успешных моделей пыли является модель MRN (модель Матиса – Румпла – Нордсика) [19], в которой пыль состоит из силикатных и графитовых частиц сферической формы со степенным распределением по размерам, $n(a) \propto a^{-3.5}$. Данная модель хорошо согласуется с кривой межзвездного поглощения [20].

Пылинки обмениваются энергией с окружающей средой в результате поглощения и переизлучения фотонов, столкновений, воздействия космических лучей и экзотермических реакций на их поверхности, таких как образование молекул водорода [21]. Равновесная (стационарная) температура пыли в первую очередь определяется радиационными процессами в диффузных областях межзвездной среды, причем в плотных молекулярных облаках ($n > 10^5 \text{ см}^{-3}$) и в так называемом коронарном газе с $T \geq 10^5 \text{ K}$ важную роль в энергетике пылинок могут играть столкновения с газом. Фотоны могут выбивать электроны из пылинки в результате фотоэффекта, вследствие чего она становится положительно заряженной, однако большая часть падающей энергии рассеивается на колебательных модах внутри твердого тела, т.е. энергия переходит в нагрев пылинки, который уравнивается охлаждением в результате ее теплового излучения. Поэтому для пылинок, как и для всяких термодинамических равновесных систем, выполняется закон Кирхгофа [14, 21, 22].

Характеристикой поглощения межзвездной пыли служит эффективность поглощения:

$$Q(\lambda) = \frac{C_{abs}}{\sigma_d}, \quad (1)$$

где C_{abs} — коэффициент поглощения, $\sigma_d = \pi a^2$ — геометрическое сечение пылинки, a — радиус пылинки. Эта характеристика показывает какую долю излучения поглощает пылинка, а в масштабах всего молекулярного облака — долю излучения, которую поглощает молекулярное облако.

В Галактике пыль распределена крайне неоднородно и имеет иерархическую структуру («скопления внутри скоплений»). Масштаб неоднородностей варьируется от 10^{-4} пк (размеры Солнечной систе-

мы) до 10^3 пк (размеры спиральных рукавов). Молекулярные облака представляют собой пики в распределении плотности в масштабах, соответствующих наблюдаемым концентрациям межзвездного газа и пыли [23]. Межзвездные облака одинакового размера и массы могут иметь совершенно разную морфологическую структуру.

Пыль в межзвездной среде нагревается преимущественно ультрафиолетовым излучением от звезд. Проблема переноса этого излучения в молекулярных облаках на данный момент является хорошо изученной. Однако нагрев пыли такими объектами, как первичные черные дыры (ПЧД), которым в последнее время уделяют все больше внимания, до сих пор не рассматривался.

ПЧД — черные дыры (ЧД), которые могли образоваться на ранних стадиях эволюции Вселенной. Принципиальная возможность их формирования впервые была рассмотрена более 50 лет назад [24, 25], и интерес к ним постоянно растет. Основным механизмом образования ПЧД является гравитационный коллапс неоднородности вещества, если ее контраст плотности $\delta \equiv \delta\rho/\rho \sim 1$ [24, 25]. Среди конкретных реализаций этого процесса, например, образование ПЧД во время инфляции [26–29], на материально-доминированной стадии [30–34], такие процессы рассматривались также в модифицированных теориях гравитации [35], на фазовых переходах [36–38], в результате коллапса доменных стенок [39–45], в результате столкновения пузырей [46–48] и др. Примерная связь между массой ПЧД и моментом ее формирования выглядит следующим образом:

$$M \sim \frac{c^3 t}{G} \simeq 5 \cdot 10^{-19} \left(\frac{t}{10^{-23} \text{ c}} \right) M_\odot, \quad (2)$$

где c — скорость света, G — гравитационная постоянная, $M_\odot$ — масса Солнца. Из этого выражения следует что, если ПЧД возникла в планковское время ($\sim 10^{-43} \text{ c}$), она будет иметь планковскую массу ($\sim 10^{-5} \text{ г}$). Если ПЧД возникла в момент $t = 1 \text{ c}$, то ее масса $M = 10^5 M_\odot$ сравнима с массами сверхмассивных черных дыр.

Детектирование гравитационных волн от сливающихся ЧД обсерваторией LIGO (*Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory*) в 2015 году [49] усилило интерес к ПЧД, что привело к значительному росту числа работ по этой теме. На данный момент обсерватория LIGO зарегистрировала порядка 100 событий, сопровождающихся излучением гравитационных волн [50].

В ходе анализа данных обнаружилось, что, во-первых, собственный момент вращения сливающихся ЧД оказался близок к нулю, что довольно трудно объясняется для астрофизических ЧД, но вполне логично для ПЧД, и, во-вторых, массы этих ЧД значительно больше, чем это предполагалось для объектов, являющихся финальной стадией эволюции массивных звезд (см., например, обзор [51] и анализ, проведенный в [52]).

Космологические свойства ПЧД сходны с космологическими свойствами «холодной» темной материи, что делает их естественным кандидатом в темную материю (ТМ). Впервые эта идея была высказана в ранних исследованиях ПЧД [53] и в последующем многократно обсуждалась в литературе (см., например, [54–61]). Отметим, что вопрос о том, что является физическим носителем ТМ, до сих пор не решен. Многолетние попытки зарегистрировать частицы ТМ на данный момент не привели к положительному результату [62]. Стерильные нейтрино с массой близкой к 3 эВ, в пользу существования которых были получены обнадеживающие результаты [63, 64], не могут полностью решить проблему ТМ. Таким образом, отсутствие экспериментально подтвержденного кандидата в частицы ТМ укрепляет статус других вариантов, таких как ПЧД.

В работе [65] к ЧД были применены законы термодинамики. В частности, было установлено, что площадь поверхности ЧД и поверхностная гравитация являются аналогом энтропии и температуры, соответственно. Кроме того, ЧД могут быть источником теплового излучения [66]. При этом температура излучения T определяется выражением:

$$T = \frac{\hbar c^3}{8\pi k_B G M}, \quad (3)$$

где $\hbar$ — постоянная Планка, k_B — постоянная Больцмана, M — масса ЧД.

Поток фотонов от испарения одной ЧД определяется выражением:

$$\frac{dN_\gamma}{dt dE} = \frac{\Gamma}{2\pi\hbar} \left[\exp\left(E/k_B T\right) - 1 \right]^{-1}, \quad (4)$$

где E — энергия фотона, Γ — «серый» фактор, который при $GME/\hbar c^3 \ll 1$ в зависимости от спина излучаемых частиц s выражается следующим образом [67]:

$$\Gamma \sim \begin{cases} 16G^2 M^2 E^2 / \hbar^2 c^6, & s = 0, \\ 2G^2 M^2 E^2 / \hbar^2 c^6, & s = 1/2, \\ 64G^4 M^4 E^4 / 3\hbar^4 c^{12}, & s = 1, \\ 256G^6 M^6 E^6 / 45\hbar^6 c^{18}, & s = 2. \end{cases} \quad (5)$$

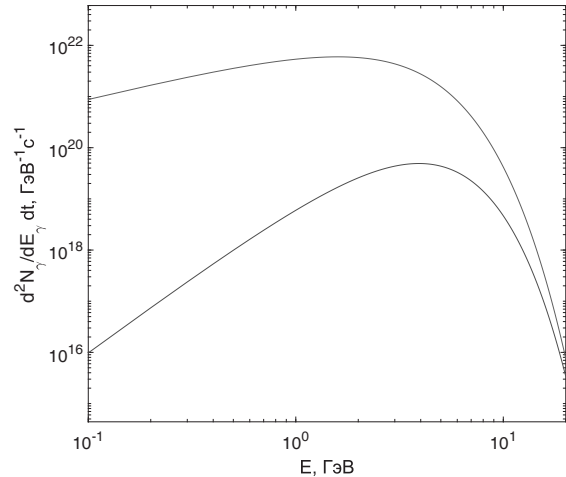


Рис. 1. Поток фотонов, излученных ПЧД с массой $M = 10^{13}$ г (синяя линия), в зависимости от их энергии E по сравнению с излучением абсолютно черного тела (красная линия)

При $GME/\hbar c^3 \gg 1$ выражение для Γ имеет вид

$$\Gamma \sim \frac{27G^2 M^2 E^2}{\hbar^2 c^6}, \quad (6)$$

что соответствует излучению абсолютно черного тела [67]. Рисунок 1 иллюстрирует отличие потока фотонов ($s = 1$), излученных ПЧД с массой $M = 10^{13}$ г, от излучения абсолютно черного тела, характеризуемого потоком с Γ согласно (6).

Как видно из (3) и (4), высокая интенсивность излучения характерна для ЧД с малыми массами. Однако, несмотря на то, что испарение ПЧД завершается мощной вспышкой высокоэнергичного излучения, во время которой энергии частиц могут достигать нескольких сотен ТэВ, на сегодняшний день нет экспериментального подтверждения существования ПЧД.

На данный момент ПЧД с начальной массой меньше $\sim 10^{15}$ г уже испарились, однако последствия их существования могут быть обнаружены по влиянию на различные космологические процессы, например, на первичный нуклеосинтез [68] и бариогенезис [69–72]. Испаряющиеся ПЧД также могут быть дополнительными источниками нейтрино [72, 73], гравитино [74] и других частиц [75, 76].

Испаряющиеся ПЧД могут давать вклад в галактический [77] и внегалактический фоны гамма-излучения [78]; их привлекают для объяснения частиц антиматерии в космических лучах [79], также такие ПЧД могут быть источниками аннигиляционной линии излучения из центра Галактики [80] и быть причиной некоторых короткопериодических гамма-всплесков [81].

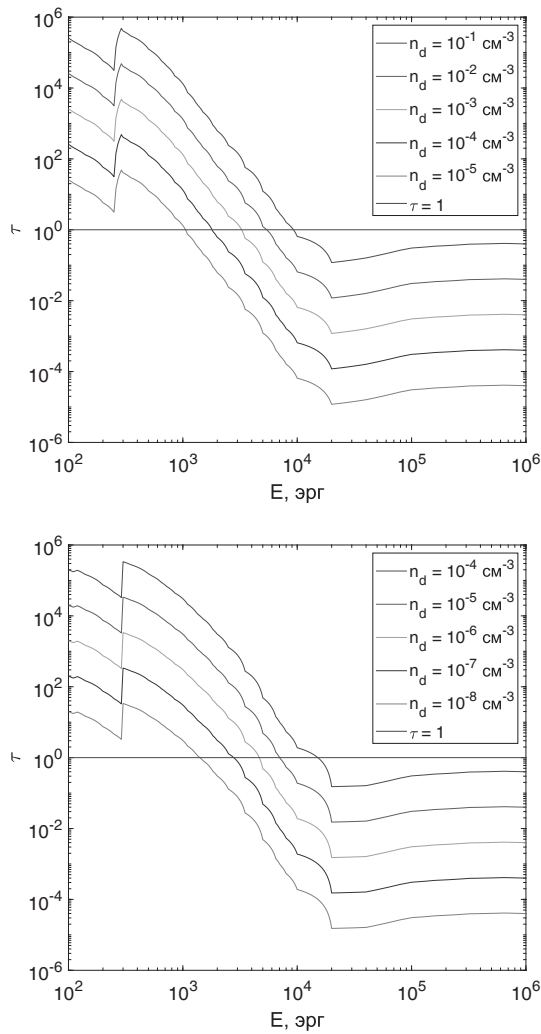


Рис. 2. Зависимость оптической толщины как функции энергии при облучении графитовых пылинок фотонами, излученными ПЧД. Данные представлены для молекулярного облака с радиусом 5 пк, состоящего из пылинок с размером $a = 0.01$ мкм (сверху) и $a = 0.1$ мкм (снизу). Цветными линиями показаны концентрации пылинок. Черной горизонтальной линией выделена оптическая толщина $\tau = 1$

ПЧД больших масс могут оказывать влияние на крупномасштабную структуру Вселенной [82–86], быть зародышами сверхмассивных ЧД [87–90], быть так называемыми массивными астрофизическими компактными объектами гало (англ. *MAssive Compact Halo Objects*, *MACHOs*) и одним из источников дополнительного рентгеновского фона вследствие аккреции на ПЧД окружающего вещества [91].

На сегодняшний день нет убедительных доказательств существования ПЧД. Тем не менее, изучение упомянутых эффектов позволяет наложить

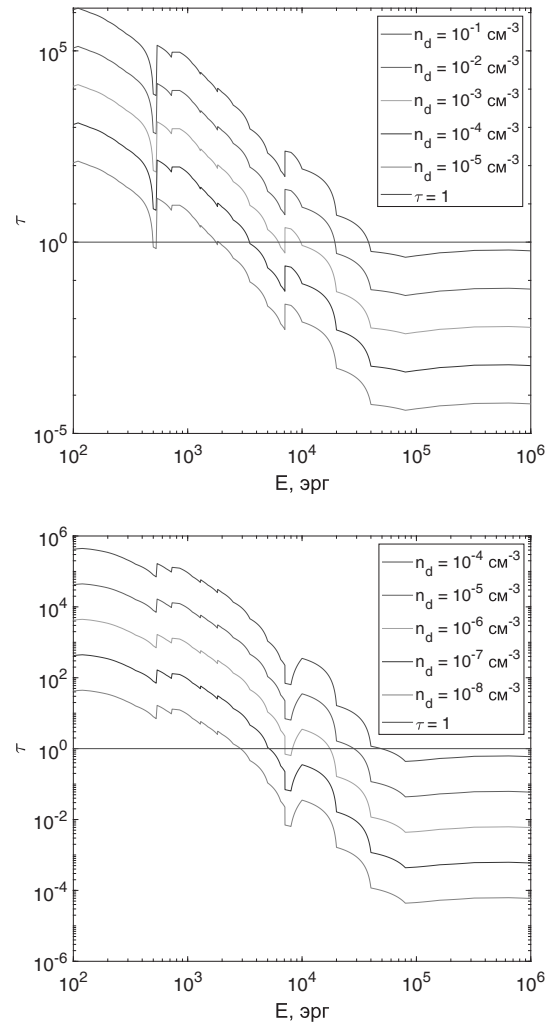


Рис. 3. Зависимость оптической толщины как функции энергии при облучении силикатных пылинок фотонами, излученными ПЧД. Данные представлены для молекулярного облака с радиусом 5 пк, состоящего из пылинок с размером $a = 0.01$ мкм (сверху) и $a = 0.1$ мкм (снизу). Цветными линиями показаны концентрации пылинок. Черной горизонтальной линией выделена оптическая толщина $\tau = 1$

ограничения на количество ПЧД¹⁾ и, тем самым, на космологические модели, которые их порождают. На данный момент найдены ограничения на космологическую плотность ПЧД как уже испарившихся на данный момент, так и довольно крупных — вплоть до $M \sim 10^{50}$ г. Для поиска ограничений были задействованы различные физические эффекты. Различают ограничения, обусловленные испарением

¹⁾ Ограничения на количество ПЧД определяются при помощи величины $f \equiv \Omega_{PCH}/\Omega_{DM}$, т. е. для относительного вклада ПЧД в ТМ.

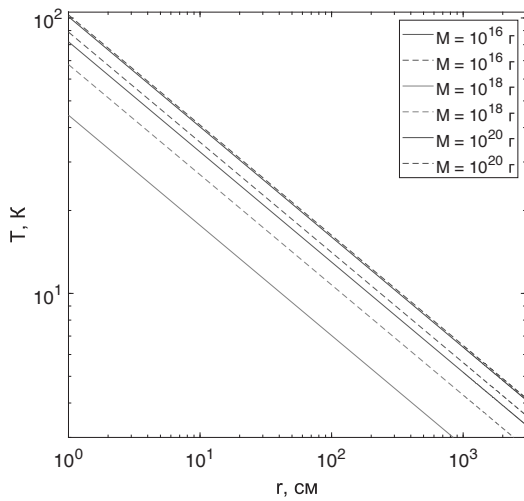


Рис. 4. Зависимость температуры графитовых (сплошные линии) и силикатных (пунктирные линии) пылинок от расстояния до ПЧД с массами $M = 10^{16}$ г, $M = 10^{18}$ г и $M = 10^{20}$ г (см. легенду). График приведен для пылинок с размером $a = 0.01$ мкм

ЧД (что может давать вклад во внегалактический фон гамма-излучения, поток позитронов и аннигиляционную линию из центра Галактики), линзированием, гравитационными волнами, различными динамическими эффектами (такими как, например, широкие двойные системы, звездные скопления, динамическое трение гало и др.), аккрецией, искажениями реликтового излучения и крупномасштабной структуры (вытекающие из требования, чтобы различные космологические структуры не формировались раньше наблюдаемых), подробнее — см. обзор [92]. Также ограничения на количество ПЧД по взаимодействию компонент излучения Хокинга с МЗС были получены в работах [93–95].

В данной работе рассматривается нагрев пыли фотонами, излученными ПЧД вследствие их испарения, в сферически-симметричном молекулярном облаке, а также рассчитывается зависимость температуры пыли от расстояния до ПЧД и спектр излучения такого облака.

2. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ ПЫЛИ КАК ФУНКЦИИ РАССТОЯНИЯ ДО ПЧД

Наибольшее количество ПЧД можно ожидать в центральной части Галактики из-за ее большей плотности. Поэтому в качестве резервуара для ПЧД будем рассматривать молекулярные облака, расположенные в Центральной Молекулярной Зоне Га-

лактики (ЦМЗ). Рассмотрим диапазон масс ПЧД от 10^{16} до 10^{20} г.

Предположим, что молекулярное облако является сферически-симметричным с радиусом 5 пк. В центре облака находится ПЧД с массой M , которая излучает рентгеновские и гамма-фотоны согласно ур. (4). Тепловую структуру облака определяет находящаяся внутри него межзвездная пыль, которая поглощает, рассеивает и переизлучает в непрерывном спектре. Предполагается также, что облако состоит из пылинок одного размера, и их температура зависит от радиуса (от расстояния до ПЧД). Поскольку рентгеновское и гамма-излучение слабо взаимодействует с межзвездной пылью²⁾, будем учитывать только поглощение, пренебрегая рассеянием. Кроме того, эффективность рассеяния для рассматриваемого диапазона энергий до сих пор неизвестна.

Спектральная светимость одной пылинки равна

$$L_{gr} = 4\pi a^2 Q(\lambda) B_\lambda(T_d), \quad (7)$$

где $B_\lambda(T_d)$ — функция Планка. Также предполагается, что поглощение энергии пылью носит непрерывный характер, т.е. корпускулярные свойства излучения пренебрегаются. В этом случае температура пыли находится из условия лучистого равновесия:

$$\pi a^2 \int u_\lambda c Q(\lambda) d\lambda = \int L_{gr} d\lambda, \quad (8)$$

где u_λ — плотность энергии поля излучения.

Это уравнение можно переписать следующим образом:

$$\frac{L_{PBH}(M)}{4\pi r^2} = 4\pi \int Q(\lambda) B_\lambda(T_d) d\lambda, \quad (9)$$

где $L_{PBH}(M)$ — светимость ПЧД с массой M , которая определяется следующим выражением:

$$L_{PBH}(M) = \int_0^E Q(E) E \frac{\Gamma}{2\pi\hbar} \left(e^{\frac{E}{k_B T}} - 1 \right)^{-1} dE. \quad (10)$$

Интегрирование ведется до $E = 10^6$ эВ (см. сноску 2).

²⁾ Межзвездная пыль эффективнее всего поглощает излучение в видимом и ультрафиолетовом диапазонах [20], в то время как ПЧД обладают высокой интенсивностью в рентгеновском и гамма-диапазонах (с энергиями фотонов ~ 1 кэВ–100 МэВ). Пылинки поглощают такое излучение слабо. Поглощение пылью фотонов в данном диапазоне энергий изучено слабо. На данный момент имеется работы, в которых рассматривается поглощение пылью фотонами с энергией до 10 кэВ (см., например, [99]), или — до 1 МэВ [100]. Фотоны с такими энергиями излучают ПЧД с массами до $\sim 10^{18}$ г и до $\sim 10^{16}$ г соответственно.

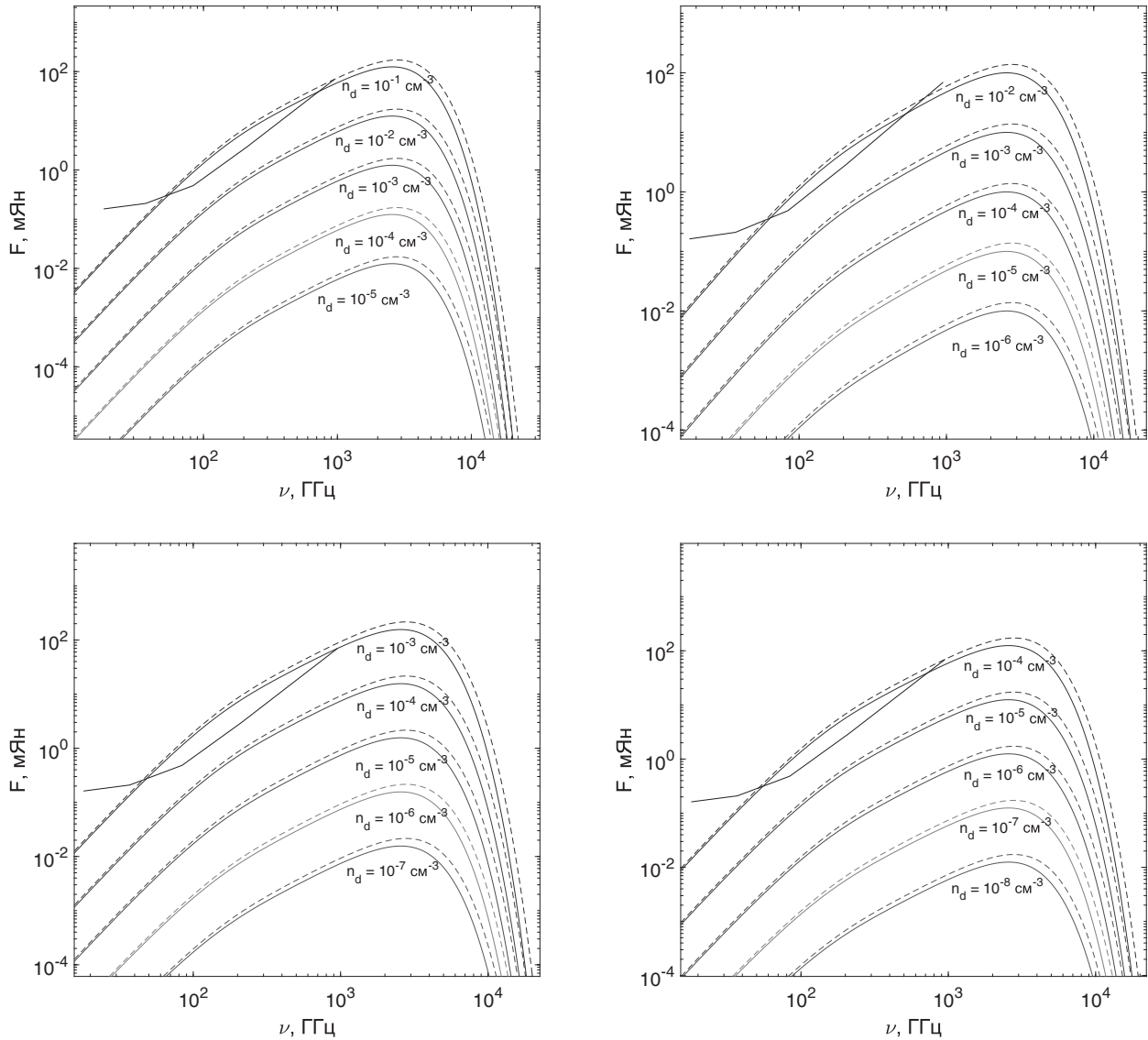


Рис. 5. Спектры излучения пылинок, нагреваемых ПЧД с массой $M = 10^{16}$ г для различных значений концентраций пыли в молекулярном облаке. Размеры пылинок $a = 0.01$ мкм (сверху слева), $a = 0.02$ мкм (сверху справа), $a = 0.05$ мкм (снизу слева), $a = 0.1$ мкм (снизу справа). Сплошными цветными линиями обозначены спектры графитовых, пунктирными цветными линиями — силикатных пылинок. Черной линией показана кривая чувствительности космической обсерватории «Миллиметрон» в режиме интерферометра, построенная на базе «Миллиметрон» — ALMA с использованием разработанного в АКЦ ФИАН калькулятора чувствительности (см. millimetron.radiastron.ru). Ширина полосы пропускания приемника «Миллиметрона» принималась равной 4 ГГц, время интегрирования 15–120 с

Уравнение (8) выполняется только в предположении, что пыль нагревается и излучает непрерывно, и что для всех пылинок одного размера устанавливается одна и та же равновесная температура. Это предположение может быть справедливо только для крупных частиц ($a \geq 0.01$ мкм). Между тем известно, что пылинки различных размеров по-разному реагируют на поглощение в зависимости от отношения энергии фотона и тепловой энергии пылин-

ки [96–98]. При этом малые частицы имеют малую теплоемкость, поэтому при поглощении небольших порций энергии температура пылинки резко возрастает. Таким образом, для таких частиц характерно скачкообразное изменение температуры, т. е. тепловая эволюция пылинки является стохастической. Между скачками температуры большинство мелких частиц охлаждаются до температуры реликтового излучения. Пылинка излучает, когда ее температура

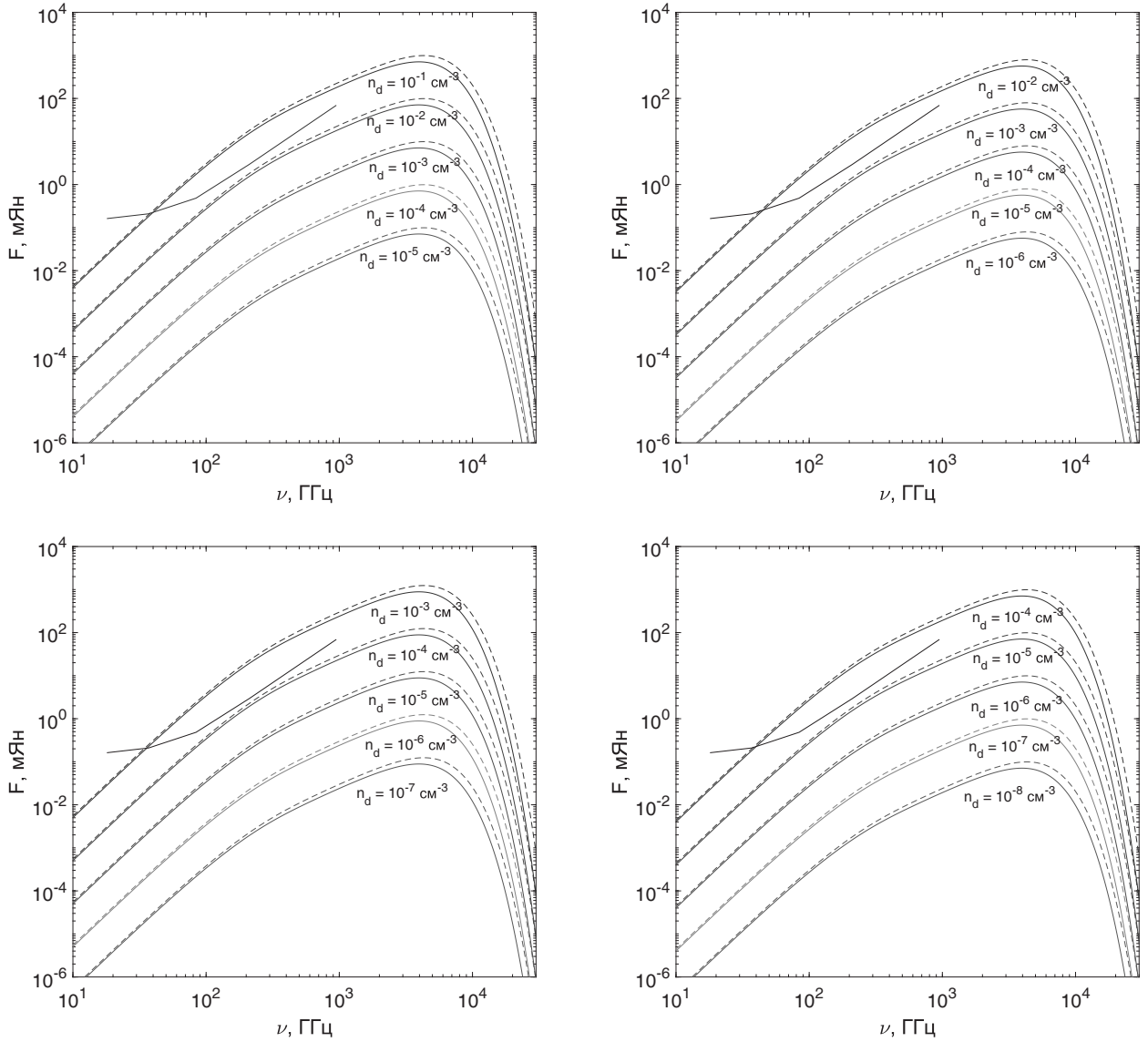


Рис. 6. То же, что на рис. 5, но для $M = 10^{17}$ г

T выше равновесной [14]. Стохастический режим нагрева и излучения пыли реализуется, если энергия фотона больше или сравнима с энергией пылинки. Поэтому мы будем рассматривать достаточно крупные пылинки ($a \geq 0.01$ мкм).

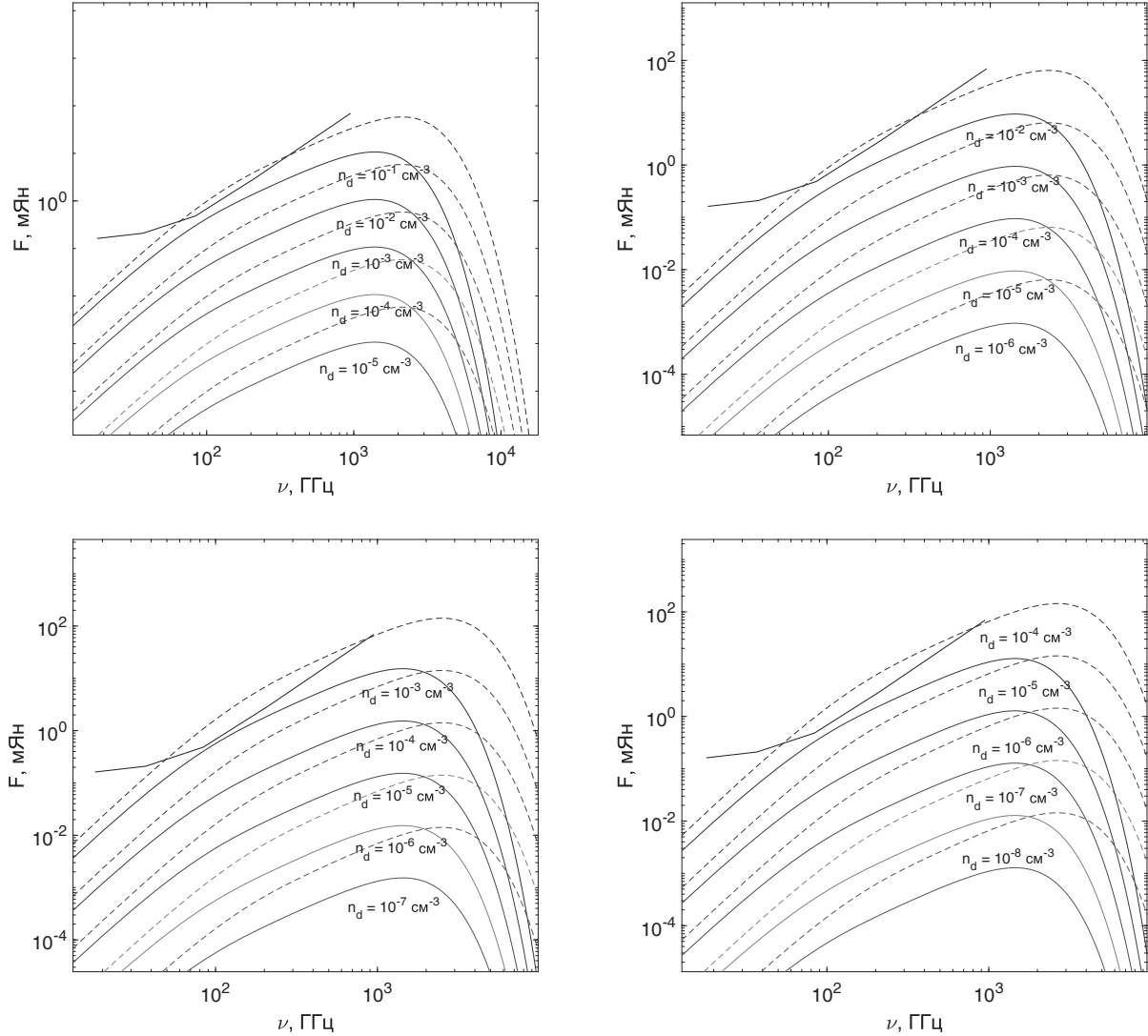
Эффективность поглощения для рентгеновских и гамма-фотонов была взята в [100] (табл. 5.1 для графитовых и табл. 5.2 для силикатных пылинок³⁾). Вычисления проводились для пылинок с размерами $a = 0.01, 0.02, 0.05$ и 0.1 мкм. Для фотонов видимого

и ультрафиолетового излучения будем использовать следующее приближение [22]:

$$Q(\lambda) = \begin{cases} 1, & \lambda \leq 2\pi a, \\ 2\pi a/\lambda, & \lambda > 2\pi a. \end{cases} \quad (11)$$

В ЦМЗ Галактики содержится наибольшая концентрация молекулярного газа высокой плотности [101]. Общая масса молекулярного газа в ЦМЗ составляет $3_{-1}^{+2} \cdot 10^7 M_\odot$ [102], причем 10% от этой массы сосредоточена в молекулярном облаке Sgr B2 [103], расположенном в 100 пк от центра Млечного Пути. Остальная часть молекулярного газа сосредоточена между десятками гигантских молекулярных облаков, масса которых на 1–2 порядка ниже [104].

³⁾ Для полученных в [94,95] ограничений на фракцию ПЧД в темной материи важно, как функция $Q(\lambda)$ зависит от длины волны. Если вместо Q , рассмотренного в [22], использовать то, что было описано в [100], то кривая ограничений поднимается, и ограничения исчезают.

Рис. 7. То же, что на рис. 5, но для $M = 10^{18}$ г

Различными методами было установлено, что средние концентрации газа в молекулярных облаках ЦМЗ составляют от $\sim 10^4$ см^{-3} до $\gtrsim 10^5$ см^{-3} [105–112]. Наблюдения в линиях CS некоторых молекулярных облаков свидетельствуют о том, что самые высокие концентрации в них могут колебаться от 10^5 см^{-3} до 10^6 см^{-3} [113, 114]. Анализ данных, полученных при наблюдении в линиях HC_3N , показал, что еще большую концентрацию газа можно обнаружить в облаке Sgr B2. В этом облаке средняя концентрация газа составляет 10^5 см^{-3} , а в ядре она превышает 10^7 см^{-3} [115]. Подобный анализ был проведен для молекулярного облака M-0.02-0.07. Он показал, что в нем присутствуют области с пониженной ($\sim 10^3$ см^{-3}) и повышенной ($\sim 10^5$ см^{-3}) концентрациями [116].

Таким образом, концентрация газа в молекулярных облаках ЦМЗ находится в диапазоне от 10^3 см^{-3} до 10^7 см^{-3} . Учитывая, что масса пыли составляет примерно 1% от массы газа [14, 22], получаем, что концентрация пыли варьируется от $n_d = 10^{-5}$ см^{-3} до $n_d = 10^{-1}$ см^{-3} , если облако состоит из пылинок с размером $a = 0.01$ мкм, от $n_d = 10^{-6}$ см^{-3} до $n_d = 10^{-2}$ см^{-3} — с размером $a = 0.02$ мкм, от $n_d = 10^{-7}$ см^{-3} до $n_d = 10^{-3}$ см^{-3} — с размером $a = 0.05$ мкм и от $n_d = 10^{-8}$ см^{-3} до $n_d = 10^{-4}$ см^{-3} — с размером $a = 0.1$ мкм. Эти значения будут использованы в дальнейших расчетах.

Можно оценить величину оптической толщины

$$\tau(E) = \int_0^r \pi a^2 n_d Q(E) dr', \quad (12)$$

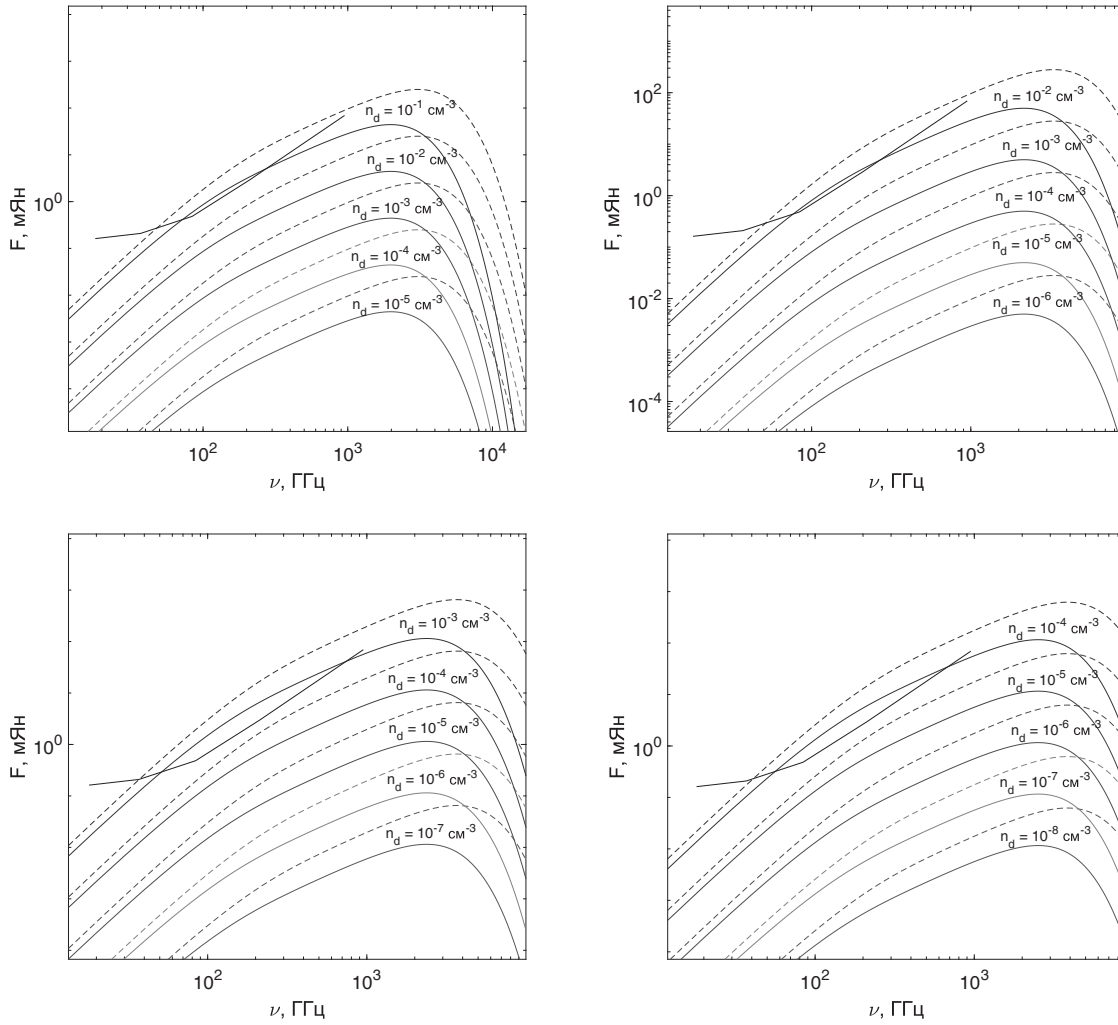


Рис. 8. То же, что на рис. 5, но для $M = 10^{19}$ г

для описанных выше значений параметров. На рис. 2 и 3 приведены графики зависимости оптической толщины от энергии для графитовых и силикатных пылинок с различными размерами и концентрациями пыли в молекулярном облаке. Несмотря на то, что фотоны, излученные ПЧД с данными массами, плохо взаимодействуют с пылинками, на границе молекулярного облака размером 5 пк при некоторых концентрациях пыли и энергиях фотонов среда становится оптически толстой.

Из уравнения (9) получаем зависимость температуры пылинок от расстояния до ПЧД:

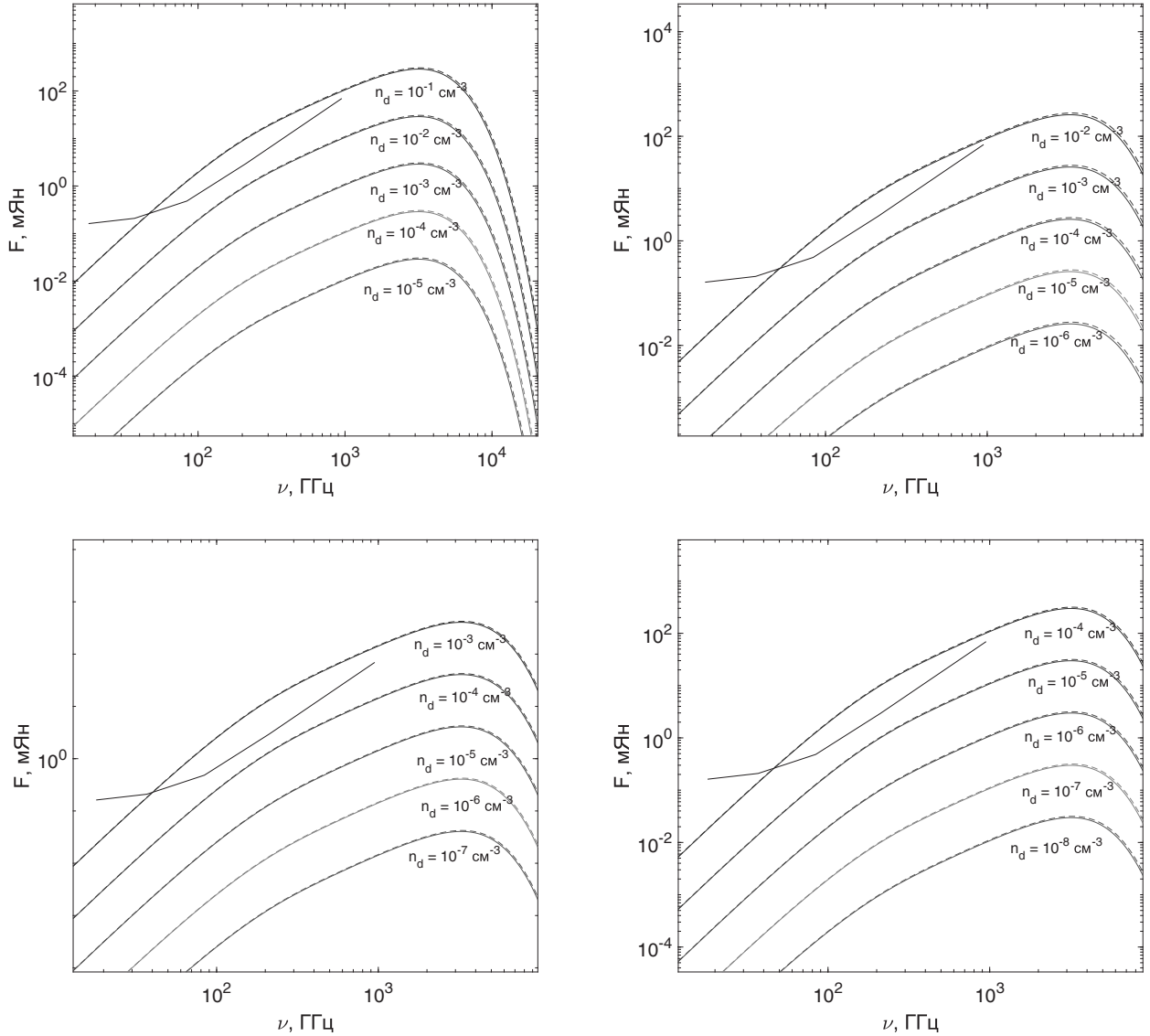
$$T(r) = CL_{PCH}^{1/5}(M)r^{-2/5}, \quad (13)$$

где C — некоторая константа.

Рисунок 4 иллюстрирует зависимости температуры графитовых и силикатных пылинок от расстояния до ПЧД с массами 10^{16} г, 10^{18} г и 10^{20} г. Как видно из графика, температура пыли резко падает с расстоянием до ПЧД. Пылинки нагреваются до температуры $T_d \geq 3$ К в сферическом слое радиусом $r \lesssim 10^3$ см. Поскольку в этом случае температура слабо зависит от размера пылинки, мы приводим только этот график и не приводим графики для пылинок с размерами 0.02, 0.05 и 0.1 мкм.

3. СПЕКТР ИЗЛУЧЕНИЯ МОЛЕКУЛЯРНОГО ОБЛАКА

Поток инфракрасного излучения от молекулярного облака, нагреваемого ПЧД с массой M , опре-

Рис. 9. То же, что на рис. 5, но для $M = 10^{20}$ г

деляется следующим образом:

$$F_{ir} = \int_0^r n_d L_{gr} dr', \quad (14)$$

где r — расстояние от ПЧД, на котором нагрев пыли наиболее существен. Спектры излучения графитовых и силикатных пылинок, нагреваемых ПЧД с различными массами, при различных концентрациях и размерах пылинок представлен на рис. 5–9. На полученные спектры наложены данные по чувствительности обсерватории «Миллиметрон». Как видно из рисунков, имеется принципиальная возможность зарегистрировать нагрев пыли излучением Хокинга, если концентрация пыли в облаке лежит

в диапазоне от $n_d = 10^{-4} \text{ см}^{-3}$ до $n_d = 10^{-1} \text{ см}^{-3}$ (при этом размер индивидуальных пылинок в облаке варьируется от 0.1 до 0.01 мкм, соответственно). В остальных случаях кривые спектров находятся ниже кривой чувствительности «Миллиметрона». Данный важный вывод ограничен применимостью рассмотренных модельных ограничений (включая предположение, что излучение ПЧД является единственным источником нагрева пыли), однако способен объяснить наличие очень компактных «горячих» пятен на карте распределения температуры молекулярного облака (в будущих наблюдениях).

Вид спектров и наложенной кривой чувствительности планируемой космической обсерватории

«Миллиметр» на приведенных рис. 5–9 на первый взгляд очень похожи. Однако спектральные потоки для частиц разных размеров (и разных концентраций вследствие того, что массовая доля пыли в облаке фиксирована) существенно различаются. Также конкретный вид спектра чувствителен к температуре пылинок как функции расстояния до ПЧД, при этом температура пыли зависит от эффективности поглощения как функции энергии фотонов излучения Хоккинга.

Заметим, что аккреция вещества на ПЧД не будет влиять на ее эволюцию во время нахождения внутри молекулярного облака, поскольку время его жизни сильно ограничено. Так, в работе [117] был проведен расчет времени жизни молекулярных облаков на основе крупномасштабной динамики МЗС в Галактике. В этой модели время жизни молекулярного облака зависит от расстояния до центра Галактики и определяется как

$$\tau = |\tau_{\kappa}^{-1} + \tau_{\Omega_P}^{-1} + \tau_{ff,g}^{-1} + \tau_{cc}^{-1} - \tau_{\beta}^{-1}|^{-1}, \quad (15)$$

где τ_{κ} — вклад эциклических возмущений, τ_{Ω_P} — вклад пересечения спиральных рукавов межзвездной среды, $\tau_{ff,g}$ — вклад коллапса межзвездного облака, τ_{cc} — вклад столкновения «облако-облако», τ_{β} — вклад галактического сдвига, т. е. масштаб времени, на котором облако разрывается дифференциальным вращением. Согласно этой модели в Млечном Пути на расстояниях 4–10 кпк от центра Галактики время жизни молекулярного облака составляет от 20 до 60 млн. лет.

В работе [118] данная модель была применена к ЦМЗ Галактики. В результате время жизни облаков на расстоянии $\sim 45 - 120$ пк от центра Галактики составляет от 1.4 до 3.9 млн. лет. При этом в эволюции межзвездных облаков преобладает влияние гравитационного коллапса. На других масштабах ЦМЗ доминирует вклад галактического сдвига, при этом время жизни межзвездных облаков находится в диапазоне от 3 до 9 млн. лет. Таким образом, время жизни молекулярного облака много меньше времени жизни ПЧД, рассматриваемых в данной работе масс.

4. ВЫВОДЫ

В работе рассмотрен процесс нагрева пыли фотонами от находящейся в молекулярном облаке ПЧД с массами $M = 10^{16} - 10^{20}$ г. В предположении, что пылинки равномерно распределены в сферически симметричном облаке и имеют размеры $a = 0.01, 0.02, 0.05$ и 0.1 мкм, была рассчитана

температура пыли в зависимости от расстояния до ПЧД. Из полученных графиков следует, что непосредственно рядом с ПЧД пылинки нагреваются до температуры $T \lesssim 10^2$ К, а с увеличением расстояния температура резко падает. Таким образом, ПЧД может нагреть только сферический слой молекулярного облака, радиус r которого не более 10^3 см. Помимо этого в работе были построены спектры излучения нагреваемых ПЧД пылинок и показано, как вид спектров зависит от концентрации пыли в молекулярном облаке и от размеров пылинок. На полученные спектры были наложены графики чувствительности планируемой космической обсерватории «Миллиметр» в режиме интерферометра и показано, что при наличии в облаке ПЧД имеется возможность ее зарегистрировать, если концентрация пыли в облаке лежит в диапазоне от $n_d = 10^{-4}$ см $^{-3}$ до $n_d = 10^{-1}$ см $^{-3}$ (при этом размер индивидуальных пылинок в облаке варьируется от 0.1 до 0.01 мкм, соответственно).

Благодарности. Авторы благодарны рецензенту, вопросы которого позволили прояснить некоторые положения статьи.

Финансирование. Работа была поддержана Российским научным фондом (грант No 24-22-00146).

ЛИТЕРАТУРА

1. P. Hoppe, J. Leitner, E. Gröner, K. K. Marhas, B. S. Meyer, and S. Amari, *Astrophys. J.* **719**, 1370 (2010).
2. M. Küppers, I. Bertini, S. Fornasier, P. J. Gutierrez, S. F. Hviid et al., *Nature* **437**, 987 (2005).
3. P. M. Harvey, T. Henning, Y. Liu, F. Ménard, C. Pinte et al., *Astrophys. J.* **755**, 67 (2012).
4. L. D. Keller, G. C. Sloan, W. J. Forrest, S. Ayala, P. D'Alessio et al., *Astrophys. J.* **684**, 411 (2008).
5. D. M. Watson, J. M. Leisenring, E. Furlan, C. J. Bohac, B. Sargent et al., *Astrophys. J. Suppl.* **180**, 84 (2009).
6. P. Castellanos, S. Casassus, C. Dickinson, M. Vidal, R. Paladini et al., *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **411**, 1137 (2011).
7. J. Rho, W. T. Reach, A. Tappe, U. Hwang, J. D. Slavin et al., *Astrophys. J.* **700**, 579 (2009).
8. H. Martel, A. Urban, and N. J. Evans II, *Astrophys. J.* **757**, 59 (2012).

9. T. S. Rice, A. A. Goodman, and E. A. Bergin, *Astrophys. J.* **822**, 52 (2016).
10. S. Zhukovska, H. P. Gail, and M. Tieloff, *Astron. Astrophys.* **479**, 453 (2008).
11. L. Dunne, H. L. Gomez, E. da Cunha, S. Charlot, S. Dye et al., *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **417**, 1510 (2011).
12. M. Haas, S. A. H. Müller, R. Chini, K. Meisenheimer, U. Klaas et al., *Astron. Astrophys.* **354**, 453 (2000).
13. E. Dwek, F. Galliano, and A. P. Jones, *Astrophys. J.* **662**, 927 (2007).
14. Н. Г. Бочкарев, *Основы физики межзвездной среды*, М.: Изд-во МГУ (1991).
15. F. Kemper, W. J. Vriend, and A. G. G. M. Tielens, *Astrophys. J.* **609**, 826 (2004).
16. E. L. Gibb, D. C. B. Whittet, A. C. A. Boogert, and A. G. G. M. Tielens, *Astrophys. J.* **151**, 35 (2004).
17. T. P. Stecher and B. Donn, *Astrophys. J.* **142**, 1681 (1965).
18. D. Cesarsky, J. Lequeux, A. Abergel, M. Perault, E. Palazzi, S. Madden, and D. Tran, *Astron. Astrophys.* **315**, L305 (1996).
19. J. S. Mathis, W. Ruml, and K. H. Nordsieck, *Astron. Astrophys.* **128**, 212 (1983).
20. B. T. Draine and H. M. Lee, *Astrophys. J.* **285**, 89 (1984).
21. B. T. Draine, *Physics of the Interstellar and Intergalactic Medium*, Princeton University Press (2011).
22. A. Tielens, *The Physics and Chemistry of the Interstellar Medium*, Cambridge University Press (1993).
23. B. G. Elmegreen, *Astrophys. J.* **564**, 773 (2002).
24. Я. Б. Зельдович, И. Д. Новиков, *Астрон. Журнал* **43**, 758 (1966) [Ya. B. Zel'dovich and I. D. Novikov, *Sov. Astron.* **10**, 602 (1966)].
25. S. W. Hawking, *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **152**, 75 (1971).
26. S. Clesse and J. García-Bellido, *Phys. Rev. D* **92**, 023524 (2015).
27. K. Inomata, M. Kawasaki, K. Mukaida, Y. Tada, and T. T. Yanagida, *Phys. Rev. D* **93**, 043504 (2017).
28. J. García-Bellido and E. R. Morales, *Physics of the Dark Universe* **18**, 47 (2017).
29. J. M. Ezquiaga, J. García-Bellido, and E. R. Morales, *Phys. Lett. B* **776**, 345 (2018).
30. M. Khlopov and A. Polnarev, *Phys. Lett. B* **97**, 383 (1980).
31. A. Polnarev and M. Khlopov, *Sov. Phys. Usp.* **28**, 213 (1985).
32. A. M. Green, A. R. Liddle, and A. Riotto, *Phys. Rev. D* **56**, 7559 (1997).
33. T. Harada, C. Yoo, K. Kohri, K. Nakao, and S. Jhingan, *Astrophys. J.* **833**, 61 (2016).
34. B. Carr, T. Tenkanen, and V. Vaskonen, *Phys. Rev. D* **96**, 063507 (2017).
35. J. D. Barrow and B. J. Carr, *Phys. Rev. D* **54**, 3920 (1996).
36. M. Crawford and D. N. Schramm, *Nature* **298**, 538 (1982).
37. H. Kodama, M. Sasaki, and K. Sato, *Progress of Theoretical Physics* **68**, 1979 (1982).
38. K. Jedamzik, *Phys. Rev. D* **55**, 5871 (1997).
39. С. Г. Рубин, А. С. Сахаров, М. Ю. Хлопов, *ЖЭТФ* **119**, 1067 (2001) [S. G. Rubin, A. S. Sakharov, and M. Yu. Khlopov, *J. Exp. Theor. Phys.* **92**, 921 (2001)].
40. J. Garriga, A. Vilenkin, and J. Zhang, *J. Exp. Theor. Phys.* **02**, 064 (2016).
41. H. Deng, J. Garriga, and A. Vilenkin, *J. Cosmol. Astropart. Phys.* **1704**, 050 (2017).
42. H. Deng and A. Vilenkin, *J. Exp. Theor. Phys.* **12**, 044 (2017).
43. V. I. Dokuchaev, Yu. N. Eroshenko, and S. G. Rubin, *Grav. Cosmol.* **11**, 99 (2005).
44. A. Kusenko, M. Sasaki, S. Sugiyama, M. Takada, V. Takhistov, and E. Vitagliano, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 181304 (2020).
45. J. Liu, Z.-K. Guo, and R.-G. Cai, *Phys. Rev. D* **101**, 023513 (2020).
46. S. W. Hawking, I. G. Moss, and J. M. Stewart, *Phys. Rev. D* **26**, 2681 (1982).
47. I. G. Moss, *Phys. Rev. D* **50**, 676 (1994).
48. N. Kitajima and F. Takahashi, *J. Cosmol. Astropart. Phys.* **11**, 060 (2020).
49. B. Abbott et al., *Phys. Rev. Lett.* **116**, 061102 (2016).
50. B. Abbott et al., *Phys. Rev. X* **13**, 041039 (2023).

51. R. A. Remillard and J. E. McClintock, *Ann. Rev. Astron. Astrophys.* **44**, 49 (2006).
52. G. Hütsi, T. Koivisto, M. Raidal, V. Vaskonen, and H. Veermäe, *Eur. Phys. J. C* **81**, 999 (2021).
53. G. F. Chapline, *Nature* **253**, 251 (1975).
54. S. Clesse and J. García-Bellido, *Physics of the Dark Universe* **15**, 142 (2017).
55. P. Ivanov, P. Naselsky, and I. Novikov, *Phys. Rev. D* **50**, 7173 (1994).
56. B. C. Lacki and J. F. Beacom, *Astrophys. J. Lett.* **720**, L67 (2010).
57. K. M. Belotsky, A. E. Dmitriev, E. A. Esipova, V. A. Gani, A. V. Grobov et al., *Mod. Phys. Lett. A* **29**, 1440005 (2014).
58. P. H. Frampton, *Mod. Phys. Lett. A* **31**, 1650093 (2016).
59. A. Kashlinsky, *Astrophys. J. Lett.* **823**, L25 (2016).
60. S. Clesse and J. García-Bellido, *Physics of the Dark Universe* **22**, 137 (2018).
61. J. R. Espinosa, D. Racco, and A. Riotto, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 121301 (2018).
62. А. Б. Александров, А.Б. Дашкина, Н.С. Коновалова, Н.М. Окатьева и др., *Успехи Физ. Наук* **191**, 905 (2021). English version: A. B. Aleksandrov, A. B. Dashkina, N. S. Konovalova, N. M. Okat'eva et al., *Phys. Usp.* **64**, 861 (2021).
63. A. P. Serebrov, R. M. Samoilov, V. G. Ivochkin, A. K. Fomin et al., *Phys. Rev. D* **104**, 032003 (2021).
64. V. V. Barinov, B. T. Cleveland, S. N. Danshin, H. Ejiri et al., *Phys. Rev. Lett.* **128**, 232501 (2022).
65. J. D. Bekenstein, *Phys. Rev. D* **7**, 2333 (1973).
66. S. W. Hawking, *Commun. Math. Phys.* **43**, 199 (1975).
67. Jane H. MacGibbon and B. R. Webber, *Phys. Rev. D* **41**, 3052 (1990).
68. B. J. Carr, K. Kohri, Y. Sendouda, and J. Yokoyama, *Phys. Rev. D* **81**, 104119 (2010).
69. N. Upadhyay, P. Das Gupta, and R. P. Saxena, *Phys. Rev. D* **60**, 063513 (1999).
70. J. D. Barrow, E. J. Copeland, E. W. Kolb, and A. R. Liddle, *Phys. Rev. D* **43**, 984 (1991).
71. M. S. Turner, *Phys. Lett. B* **89**, 155 (1979).
72. E. V. Bugaev, M. G. Elbakidze, and K. V. Konishchev, *Phys. Atom. Nucl.* **66**, 476 (2003).
73. E. V. Bugaev, and K. V. Konishchev, *Phys. Rev. D* **66**, 084004 (2002).
74. M. Y. Khlopov, A. Barrau, and J. Grain, *Class. Quant. Grav.* **23**, 1875 (2006).
75. A. M. Green, *Phys. Rev. D* **60**, 063516 (1999).
76. M. Lemoine, *Phys. Lett. B* **481**, 333 (2000).
77. R. Lehoucq, M. Cassé, J.-M. Casandjian, and I. Grenier, *Astron. Astrophys.* **502**, 37 (2009).
78. D. N. Page and S. W. Hawking, *Astrophys. J.* **206**, 1 (1976).
79. A. Barrau, *Astropart. Phys.* **12**, 269 (2000).
80. P. N. Okele and M. J. Rees, *Astron. Astrophys.* **81**, 263 (1980).
81. D. B. Cline, D. A. Sanders, and W. Hong, *Astrophys. J.* **486**, 169 (1997).
82. P. Mészáros, *Astron. Astrophys.* **38**, 5 (1975).
83. B. J. Carr, *Astron. Astrophys.* **56**, 377 (1977).
84. K. Freese, R. Price, and D. N. Schramm, *Astrophys. J.* **275**, 405 (1983).
85. B. J. Carr and J. Silk, *Astrophys. J.* **268**, 1 (1983).
86. N. Afshordi, P. McDonald, and D. N. Spergel, *Astrophys. J. Lett.* **594**, L71 (2003).
87. B. J. Carr and M. J. Rees, *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **206**, 801 (1984).
88. N. Düchting, *Phys. Rev. D* **70**, 064015 (2004).
89. M. Y. Khlopov, S. G. Rubin, and A. S. Sakharov, *Astropart. Phys.* **23**, 265 (2005).
90. R. Bean and J. Magueijo, *Phys. Rev. D* **66**, 063505 (2002).
91. M. Ricotti, J. P. Ostriker, and K. J. Mack, *Astrophys. J.* **680**, 829 (2008).
92. B. Carr, K. Kohri, Y. Sendouda, and J. Yokoyama, *Rep. Prog. Phys.* **84**, 116902 (2021).
93. H. Kim, *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **504**, 5475 (2021).
94. А. Н. Мелихов, Е. В. Михеева, *Астрон. Журнал* **99**, 382 (2022) [A. N. Melikhov and E. V. Mikheeva, *Astron. Rep.* **66**, 387 (2022)].
95. A.N. Melikhov and E.V. Mikheeva, *Phys. Rev D* **107**, 063535 (2023).

96. E. Kruegel, *The physics and chemistry of the interstellar medium*, Bristol: The Institute of Physics, IoP Series in astronomy and astrophysics, (2003).
97. W. W. Duley, *Astrophys. and Space Sci.* **23**, 43 (1973).
98. B. T. Draine and A. Li, *Astrophys. J.* **551**, 807 (2001).
99. L. R. Corrales, J. García, J. Wilms, and F. Baganoff, *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **458**, 1345 (2016).
100. E. Dwek and R. Smith, *Astrophys. J.* **459**, 686 (1996).
101. K. Ferrière, W. Gillard, and P. Jean, *Astron. Astrophys.* **467**, 611 (2007).
102. G. Dahmen, S. Huttemeister, T. L. Wilson, and R. Mauersberger, *Astron. Astrophys.* **331**, 959 (1998).
103. M. A. Gordon, U. Berkemann, P. G. Mezger, R. Zylka, C. G. T. Haslam, E. Kreysa et al., *Astron. Astrophys.* **280**, 208 (1993).
104. S. N. Longmore, J. M. D. Kruijssen, J. Bally, J. Ott, L. Testi, J. Rathborne et al., *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **433**, L15 (2013).
105. J. Bally, A. A. Stark, R. W. Wilson, and C. Henkel, *Astrophys. J.* **324**, 223 (1988).
106. M. Tsuboi, T. Handa, and N. Ukita, *Astrophys. J. S.* **120**, 1 (1999).
107. J. M. Jackson, N. Geis, R. Genzel, A. I. Harris, S. Madden, A. Poglitsch et al., *Astrophys. J.* **402**, 173 (1993).
108. M. Nagai, K. Tanaka, K. Kamegai, and T. Oka, *Publications of the Astronomical Society of Japan* **59**, 25 (2007).
109. P. A. Jones, M. G. Burton, M. R. Cunningham, M. A. Requena-Torres, K. M. Menten, P. Schilke et al., *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **419**, 2961 (2012).
110. P. A. Jones, M. G. Burton, M. R. Cunningham, N. F. H. Tothill, and A. J. Walsh, *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **443**, 221 (2013).
111. R. Güsten and C. Henkel, *Astron. Astrophys.* **125**, 136 (1983).
112. R. Zylka, R. Güsten, C. Henkel, and W. Batrla, *AAPS* **96**, 525 (1992).
113. E. Serabyn and R. Güsten, *Astron. Astrophys.* **242**, 376 (1991).
114. E. Serabyn, J. H. Lacy, and J. M. Achtermann, *Astrophys. J.* **395**, 166 (1992).
115. D. C. Lis and P. F. Goldsmith, *Astrophys. J.* **369**, 157 (1991).
116. C. M. Walmsley, R. Güsten, P. Angerhofer, E. Churchwell, and L. Mundy, *Astron. Astrophys.* **155**, 129 (1986).
117. S. M. R. Jeffreson and J. M. D. Kruijssen, *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **476**, 3688 (2018).
118. S. M. R. Jeffreson, J. M. D. Kruijssen, M. R. Krumholz, and S. N. Longmore, *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **478**, 3380 (2018).

ПРЕЦИЗИОННОЕ ИЗМЕРЕНИЕ ГРАВИТАЦИОННОГО СМЕЩЕНИЯ ЧАСТОТЫ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ СИГНАЛОВ

В. Н. Руденко^{a}, А. В. Белоненко^a, А. В. Гусев^a, Ф. С. Гурин^a, В. В. Кулагин^a,
С. М. Попов^a, Г. Д. Манучарян^{a,b}, М. В. Захваткин^c, А. В. Коваленко^d*

^a Государственный астрономический институт им. П. К. Штернберга,
Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119992, Москва, Россия

^b Московский государственный технический университет им. Н. Э. Баумана
105005, Москва, Россия

^c Институт прикладной математики им. М. В. Келдыша Российской академии наук
125047, Москва, Россия

^d Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 августа 2024 г.,
после переработки 12 сентября 2024 г.
Принята к публикации 12 сентября 2024 г.

Коммуникационные радиосигналы между орбитальным космическим аппаратом (КА) и наземной станцией слежения (НСС) испытывают смещение частоты пропорционально позиционной разности их гравитационных потенциалов. Эффект составляет экспериментальную базу общей теории относительности (ОТО) как один из аспектов принципа эквивалентности Эйнштейна (ПЭЭ). В статье представлены результаты прецизионного измерения эффекта с помощью стандартов частоты, размещенных на КА и НСС. Использовались данные специальных «гравитационных сеансов» радиосвязи, накопленные во время миссии космического радиотелескопа «РадиоАстрон» в период 2015–2019 гг. Скрупулезный анализ этих данных позволяет утверждать соответствие теории и эксперимента с высокой точностью: параметр нарушения (отклонение от ОТО) составил $1.57 \pm 3.96 \cdot 10^{-5}$.

DOI: 10.31857/S0044451024110063

1. ВВЕДЕНИЕ

Значимым недавним достижением экспериментальной астрономии явилась успешная реализация проекта космического радиотелескопа (КРТ), «РадиоАстрон» со спутником Спектр-Р, несущим параболическую антенну с диаметром ≈ 10 метров, которая вместе с наземными антеннами образовывала интерферометр с рекордной длиной базы ≈ 350000 км. Это вместе с микроволновыми стандартами частоты на спутнике и наземных станциях привело к порядковому повышению углового разрешения радиоинтерферометрических измерений [1]. Всего за время существования КРТ, с 2011 по 2019 годы, на

этом инструменте было выполнено до десяти различных астрономических программ, отчеты о которых хранятся в АКЦ ФИАН, а результаты опубликованы в многочисленных статьях научного коллектива группы «РадиоАстрон». Работа в качестве космического радиоинтерферометра была главной целью миссии «РадиоАстрон». Однако уже в стадии проектирования рассматривались другие возможные приложения уникального космического инструмента к фундаментальным физическим проблемам. Так, внимание было привлечено к использованию космического интерферометра со стандартами частоты для тестирования релятивистских эффектов ОТО, в частности, к прецизионному измерению гравитационного смещения частоты электромагнитных сигналов — эффекту, составляющему экспериментальную базу ОТО и представляющему одну из форм принципа эквивалентности Эйнштейна [2].

* E-mail: valentin.rudenko@gmail.com

Анализ и схемы такого типа гравитационных измерений в рамках миссии «РадиоАстрон» содержатся в работе [3].

Реальный выполненный эксперимент состоял в измерении и сравнении частот бортового и наземного стандартов в процессе орбитальной эволюции спутника Спектр-Р. Использовались водородные стандарты, производимые отечественной компанией «Время-Ч»¹⁾, стабильность которых в терминах дисперсии Аллана составляла $\Delta f/f = 1 \cdot 10^{-14}$ при времени усреднения $\sim 10^2$ с.

Напомним, что идея космического эксперимента по измерению гравитационного красного смещения («redshift эффект») впервые была материализована в миссии «Gravity-Probe A» (1976 г.), в которой Н-стандарт был поднят на высоту 10^4 км баллистической ракетой. В апогее траектории его частота сравнивалась с аналогичным наземным мазером. Информация о частотных вариациях передавалась коммуникационными радиосигналами. Для онлайн компенсации доминирующего эффекта Доплера первого порядка была разработана специальная техника, комбинирующая однопутевые (1w) сигналы, синхронизированные по бортовому стандарту, и двухпутевые (или петлевые) (2w) с опорой на наземный стандарт. В дальнейшем подобная техника применялась во многих космических запусках. Результатом эксперимента GP-A стало подтверждение ОТО с точностью сотых долей процента ($\approx 1.4 \cdot 10^{-4}$) [4, 5]. Этот результат удерживался на протяжении почти 40 лет. Недавно появились сообщения группы навигационных спутников «Galileo» об ужесточении этой границы до уровня $\approx 3 \cdot 10^{-5}$ [6, 7].

Сравним условия РА измерений с экспериментами GP-A и Galileo. Принципиальные отличия следующие. Первый, представлял однократное измерение без возможности повторений и накопления данных. Второй, выполнялся с крайне малой орбитальной модуляцией «RedShift» эффекта. При этом, оба проводились в ближней околоземной зоне с более чем на порядок меньшим радиусом, чем апогей орбиты РА. Последнее принципиально важно для тестирования такого аспекта ПЭЭ как его позиционная инвариантность.

В миссии «РадиоАстрон» космический аппарат Спектр-Р двигался по вытянутой орбите с большим эксцентриситетом $e \approx 0.9$, с плавающим периодом 7-9 суток (влияние Луны), с апогеем $\approx 3.5 \cdot 10^5$ км; Расчетная величина относительного гравитационного

сдвига частоты между наземным и бортовым стандартами в намеченных для измерений точках (циклограмма) лежала в диапазоне $(5.3 - 6.8) \cdot 10^{-10}$, что демонстрирует заметную модуляцию сдвига по орбите. Для сравнения отметим, что у двух спутников Galileo, обеспечивших результаты работ [6, 7], орбитальная модуляция сдвига была на порядок меньше (≤ 0.1). В целом орбитальные (кинематические) параметры КРТ «РадиоАстрон» были удобны для исследования «RedShift» эффекта.

Имеется, однако, обстоятельство, затрудняющее выполнение такого эксперимента по типу GP-A. Разработанная в [4, 5] техника компенсации эффекта Доплера первого порядка, требует одновременной работы КРТ в обоих режимах — однопутевом 1w и двухпутевом 2w. На практике в миссии «РадиоАстрон», как и в большинстве других космических проектов, такой возможности не предусматривалось. Для сохранения «онлайн» компенсации доминирующего эффекта Доплера первого порядка пришлось обратиться к операционной моде со сменой режимов. Это значительно усложнило процедуру фильтрации гравитационного сдвига и оценки ошибок измерения. В работе [4, 5] ставился вопрос не только о точности измерения гравитационного сдвига, но также о соответствии измеренного значения предсказанию ОТО (что важно для селекции конкурирующих теорий релятивистской гравитации). Это обстоятельство формализовано введением «параметра отклонения» ε :

$$\frac{\Delta f_{grav}}{f} = \frac{\Delta U}{c^2} (1 + \varepsilon), \quad (1)$$

где $\Delta f_{grav}/f$ — измеренный частотный гравитационный сдвиг, ΔU — разность гравитационных потенциалов в точках посылки и приема сигнала, c — скорость света, ε — параметр нарушения (отклонения) теории.

По результатам эксперимента GP-A оценка ε оказывается на уровне $\varepsilon \sim 10^{-4}$. Таким образом, для более надежного подтверждения ОТО интерес представляют эксперименты (измерения), которые дают меньшие значения ε . К настоящему времени имеются работы, анализирующие измерения, проведенные «РадиоАстрон». В работе [8] без онлайн компенсации Доплера первого порядка, только на основе однопутевых данных, получено $\delta\varepsilon \approx 0.016$. В работе [9] с онлайн компенсацией, но без оптимального объединения серий, найдено $\delta\varepsilon \approx 3 \cdot 10^{-4}$. Оба результата хуже, чем у GP-A. Авторы работы [11] обращают внимание на границу Рао–Крамера для оценки точности измерений гравитационного сдви-

¹⁾ <https://www.vremya-ch.com/index.php/projects-ru/spaceapplications-ru/vch-1010-ru/index.html>

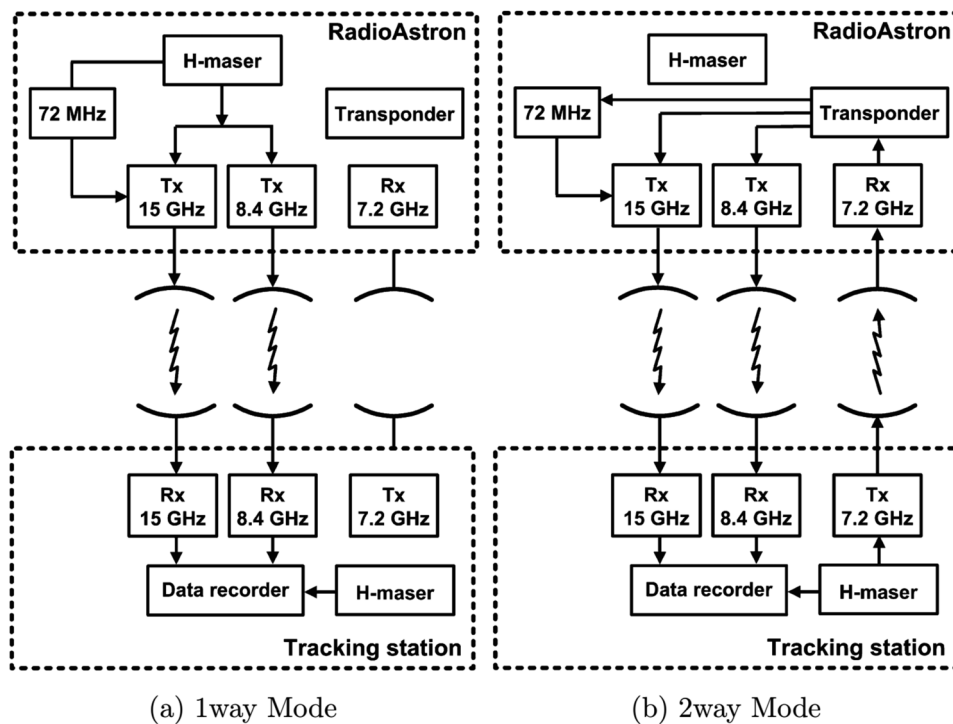


Рис. 1. Режимы работы радиолиний КА «РадиоАстрон»: а — однопутевой, содержит гравитационный и доплеровский сдвиги частоты; б — двухпутевой, содержит удвоенный доплеровский сдвиг и не содержит гравитационного. Пояснения: H-maser — водородный стандарт частоты, Data recorder — записывающее устройство, Tx — передатчик, Rx — приемник, Transponder — ретранслятор, Tracking station — наземная станция слежения (НСС)

га, но иллюстрируют это только на частных примерах, не приводя результатов совокупного анализа всех сеансов.

В настоящей статье представлен анализ совокупности гравитационных сеансов миссии «РадиоАстрон» с учетом накопленного опыта обработки гравитационных данных российской группой, работавшей в составе международной коллаборации. Анализ выполнен в рамках принципа максимального правдоподобия (Likelihood principle) с минимальным использованием априорной информации. Методика и сама обработка данных, включая алгоритмы, неоднократно и детально описаны в публикациях авторской группы, приведенных в списке литературы. Наглядная блок-схема (диаграмма) последовательных шагов обработки содержится, например, в недавней статье [9]. Кроме оптимальной фильтрации полезной информации из фона многочисленных физических шумов в отдельных сеансах, выполнена также процедура оптимального объединения совокупности измерительных данных. Результат демонстрирует ужесточение границы параметра нарушения (отклонения) ε , понижая ее до уровня $\sim 10^{-5}$.

2. СТРАТЕГИЯ ИЗМЕРЕНИЙ

Основные каналы радиосвязи КРТ «РадиоАстрон» имели частоты 8.4 ГГц и 15 ГГц. Для специализированных гравитационных сеансов научная информация поступала на 8.4 ГГц. Канал 15 ГГц преимущественно использовался для калибровочных измерений. Как было отмечено во введении, для сохранения «онлайн» компенсации доминирующего доплеровского сдвига первого порядка пришлось обратиться к операционной моде со сменой режимов синхронизации (см. рис. 1). В результате непрерывная запись коммуникационного сигнала превращается в кусочную, состоящую из отрезков с опорой на бортовой (1w) или наземный (2w) стандарты (см. рис. 2). При этом, чтобы получить желаемую фильтрационную наблюдаемую $\Delta f/f = (f_{1w} - 0.5f_{2w})/f$ [4], содержащую оба режима в один и тот же фиксированный момент времени, нужно выполнить интерполяцию частотных данных режима 2w на область между двумя соседними кусками (зона существования режима 1w), при этом следует учесть ошибку интерполяции. Отметим здесь, что работа в режиме

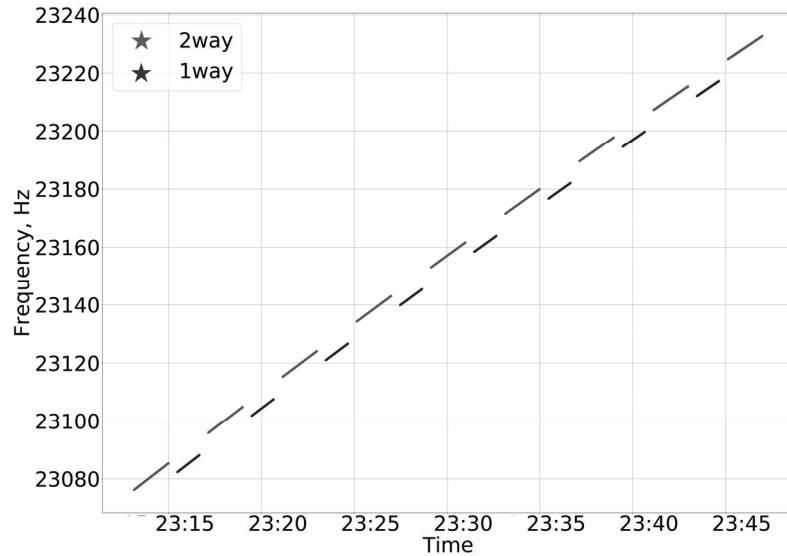


Рис. 2. Сеанс raks17bo (2016-12-15 23:00), чередование зон режимов синхронизации 2w (красный) и 1w (синий); взаимный сдвиг треков обусловлен наличием гравитационного смещения в данных 1w

2w имела техническую особенность. Сигнал с НСС посылается на начальной частоте 7.2075 ГГц, которая принимается на борту КА с поправкой за счет эффекта Доплера. После гетеродинирования на транспондере сигнал отражается вниз на НСС на частоте 8.4 ГГц. Новое наземное гетеродинирование транслирует сигнал в частотный диапазон ≈ 6 МГц с последующей оцифровкой на 32 МГц и 2-х битным квантованием по амплитуде. Для оценки несущей частоты сигнала и ее эволюции при движении КА использовался известный итеративный алгоритм «остановки фазы», разработанный в европейском институте дальней космической связи JIVE, который содержит поэтапное сужение полосы фильтра, начиная с 2 кГц [10]. Запись в режиме 1w длилась 80 с, в режиме 2w — 120 с.

Данные, где SNR принятого сигнала было менее 10^3 , исключались из обработки. Алгоритм также более подробно описан в статье [11]. Типичная длительность гравитационного сеанса на практике составляла ≈ 40 мин. Для записи ключевого компенсационного алгоритма введем (определим) расстройки посылаемых сигналов. Относительное смещение частоты в однопутевом режиме есть

$$\Delta f_{1w}/f_{8.4} = (f_{1w} - f_{8.4})/f_{8.4},$$

где f_{1w} — измеренная частота в режиме 1w, $f_{8.4}$ — номинальная частота. Относительное смещение частоты в двухпутевом режиме с учетом коррекции на эффект Доплера равно

$$\Delta f_{2w}/f_{8.4} = (f_{2w} - F_0 f_{up})/(F_0 f_{up}),$$

где $F_0 = 8.4/7.2075$, — нормирующий коэффициент, f_{up} — частота в момент отправки сигнала с НСС на КА. В итоге ключевое уравнение компенсационной схемы (GP-A) запишется как

$$\begin{aligned} \frac{\Delta f_{1w}}{f_{8.4}} - \frac{1}{2} \frac{\Delta f_{2w}}{f_{8.4}} = & (1 + \varepsilon) \frac{\Delta U}{c^2} + \frac{\Delta f_{dop2}}{f} + \\ & + \frac{\Delta f_{Moon}}{f} + \frac{\Delta f_{Sun}}{f} + \\ & + \frac{\Delta f_{nonsph}}{f} + \frac{\Delta f_{Atmosph}}{f} + \Delta h + o\left(\frac{v}{c}\right)^3, \quad (2) \end{aligned}$$

где $\Delta U/c^2$ — гравитационный сдвиг,

$$\frac{\Delta f_{dop2}}{f} = -\frac{|\mathbf{v}_e - \mathbf{v}_s|^2}{2c^2} + \frac{(\mathbf{D} \cdot \mathbf{a}_e)}{c^2}$$

— релятивистский эффект Доплера, $\Delta f_{Moon}/f$ — влияние приливного потенциала Луны, $\Delta f_{Sun}/f$ — влияние приливного потенциала Солнца, $\Delta f_{nonsph}/f$ — влияние несферичности Земли, $\Delta f_{Atmosph}/f$ — атмосферный сдвиг (включая ионосферу и тропосферу [12]), а также фликкер шумы мерцания и др. [13], Δh — эффект отстройки (несовпадения частот) стандартов частоты на КА и НСС. Анализ показал, что для измерения ε с точностью лучше 10^{-4} , нужно учитывать все эффекты с относительным вкладом больше 10^{-14} . Ниже обсуждается влияние каждого из эффектов, приведенных в основной компенсационной схеме (2).

Для измерения параметра нарушения с точностью не хуже 10^{-5} необходимо учитывать ре-

лятивистский эффект Доплера второго порядка. Для этой цели были использованы формулы из работы [14]:

$$\frac{\Delta f_{dop2}}{f} = -\frac{|\mathbf{v}_e - \mathbf{v}_s|^2}{2c^2} + \frac{(\mathbf{D} \cdot \mathbf{a}_e)}{c^2} \quad (3)$$

$\mathbf{v}_e$ — скорость НСС, $\mathbf{v}_s$ — скорость КА, $\mathbf{D}$ — вектор расстояния от НСС до КА, $\mathbf{a}_e$ — ускорение НСС.

Замечание. Все параметры в (3) должны быть приведены в единую систему координат ЕМЕ2000. Векторы состояния КА предоставляются ИПМ им. Келдыша в системе ЕМЕ2000, векторы состояния пущинской станции необходимо было перевести из системы ITRF (International Terrestrial Reference Frame) в систему ЕМЕ2000 — это было сделано с использованием модели вращения Земли, принятой в резолюции IAU (International Astronomical Union) и реализованной в библиотеке SOFA [15].

Оказалось также, что релятивистский эффект Доплера имеет наибольшую величину на расстояниях до 90000 км, достигая $1.8 \cdot 10^{-10}$, что сравнимо с величиной гравитационного сдвига. Ошибка компенсации релятивистского эффекта Доплера ограничена $2 \cdot 10^{-16}$ и вызвана ошибкой восстановления скорости ≈ 3 мм/с и положения ≈ 300 м КА [16]. Для оценки теоретического гравитационного сдвига частоты $\Delta U/c^2$ использовалась формула, учитывающая поправку на несферичность Земли:

$$\frac{\Delta f_{grav}}{f} = \frac{\Delta U}{c^2} - \frac{GM_E R_E^2 J_2}{2r_s^3 c^2} \left(1 - \frac{3z_s^2}{r_s^2}\right) \quad (4)$$

$\Delta U/c^2$ — разность ньютоновских потенциалов НСС и КА, M_E — масса Земли, R_E — радиус Земли, J_2 — квадрупольный момент, z_s — координата космического аппарата в геоцентрической системе координат, r_s — геоцентрический радиус-вектор космического аппарата, G — гравитационная постоянная. Эффекты, связанные с приливным потенциалом Луны и Солнца, ранее подробно рассмотрены в статье [17], вклад ионосферы и тропосферы обсуждался в статье [12], вклад фликкер-шумов в работе [13]. Порядковый вклад каждого из эффектов представлен в табл. 1 и на рис. 3.

Заканчивая описание стратегии измерений, подчеркнем еще раз, что в гравитационных сеансах информационный сигнал записывался постоянно, но с перескоками между операционными модами 1w и 2w. Во время первичной обработки мы разделяли сигнал на отдельные интервалы с постоянным режимом работы. С учетом циклограмм сеанса удалялось нестационарное начало каждого

Таблица 1. Остаточные эффекты после применения основной компенсационной схемы

Эффекты тонкой компенсации		
Эффект	макс. величина	ошибка
Грав. сдвиг, $\Delta U/c^2$	$6.8 \cdot 10^{-10}$	$< 10^{-15}$
Рел. Доплер эффект, v^2/c^2	$1.8 \cdot 10^{-10}$	$< 10^{-16}$
Грав. вклад Луны	$6 \cdot 10^{-13}$	$< 10^{-16}$
Грав. вклад Солнца	$< 1 \cdot 10^{-14}$	$< 10^{-16}$
$\Delta U/c^2$, квадрупольный момент	$< 2 \cdot 10^{-15}$	$< 10^{-16}$
$\Delta f_{Ion}/f$ — ионосферный сдвиг частоты	$< 2 \cdot 10^{-14}$	$< 10^{-16}$
$\Delta f_{Trop}/f$ — тропосферный сдвиг	$< 1 \cdot 10^{-15}$	$< 10^{-16}$
Фликкер шумы мерцания	$< 1 \cdot 10^{-12}$	$< 10^{-14}$

интервала 1w или 2w, где происходил захват частоты. Далее с помощью цифрового спектрометра оценивалась частота принятого сигнала (см. детали в работе [11]). После основной компенсационной схемы 2 (Доплер первого порядка) проводилась более тонкая компенсация остаточных эффектов, порядковый вклад которых представлен в табл. 1 и на рис. 3.

В табл. 1 и на рис. 3 приведены результаты анализа случайных и систематических ошибок со ссылками в тексте на работы, в которых этот анализ представлен детально. Напомним, что влияние фликкер эффектов рассмотрено в статьях [9,13]. Погрешность интерполяции в измерительной моде со сменой режимов синхронизации рассчитывалась в полиномиальной аппроксимации (scipy.interpolate) с предварительным моделированием сигнала и основных помех [9]. В результате ошибка используемой интерполяции не превысила 10^{-4} Гц.

3. ОБЪЕДИНЕНИЕ СЕАНСОВ

Нашей целью на финальном этапе являлась оценка параметра нарушения ε по совокупности проведенных гравитационных сеансов, соответствующая критерию максимального правдоподобия (maximum likelihood criterion). Совокупность данных измерений можно описывать как случайный

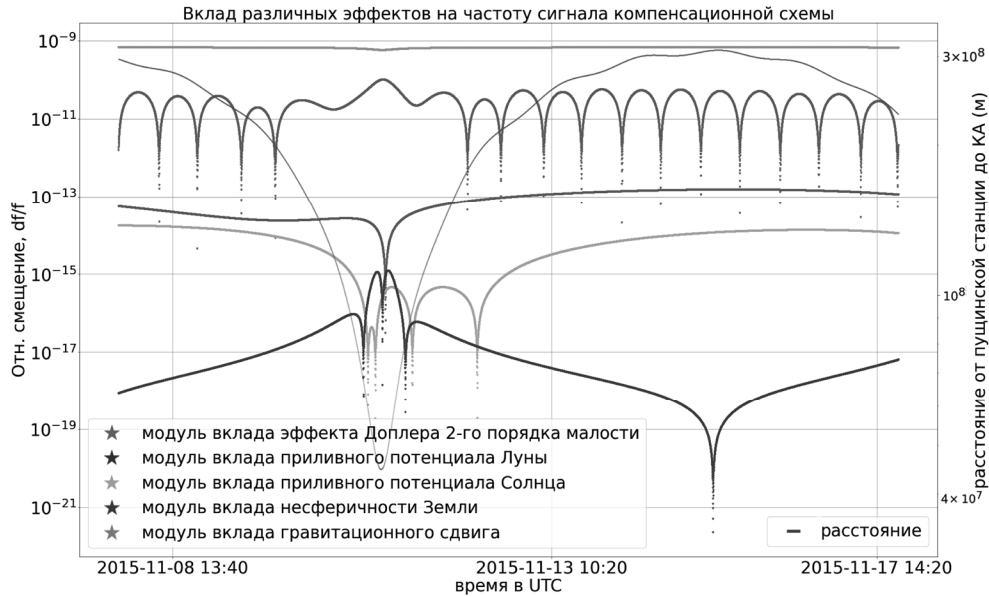


Рис. 3. График зависимости от времени модуля всех рассчитанных эффектов (левая шкала), а также расстояние между Пушинской станцией слежения и космическим аппаратом (правая шкала). Построено по данным реконструированной орбиты

процесс, представленный дискретным вектором

$$\epsilon = \|\epsilon_1, \epsilon_2, \dots, \epsilon_k\|^T,$$

элементы которого ϵ_k — оценки параметра ϵ в каждом отдельном сеансе.

При достаточно большом числе сеансов $k \gg 1$ (в реальном эксперименте $k \approx 40$) и весьма большом отношении сигнал-шум: ($\text{SNR} \approx (10^5 \div 10^6)$) распределение параметра ϵ можно считать гауссовым и его оценку в сеансе k записывать как $\epsilon_k = \epsilon \pm \Delta\epsilon_k$, где $\Delta\epsilon_k$ — гауссовы случайные величины с параметрами $\langle \Delta\epsilon_k \rangle = 0$, такими что $\langle \epsilon_k \epsilon_i \rangle = \sigma_k^2$ при $k = i$ и 0 при $k \neq i$ ($\langle \dots \rangle$ обозначает статистическое усреднение). При условии независимых измерений в отдельных сеансах и некоррелированности их шумов логарифм интегрального отношения правдоподобия векторного процесса ϵ (для совокупности всех сеансов) разбивается на сумму отдельных логарифмов ϵ_k для каждого сеанса, т. е. имеют место следующие соотношения:

$$\begin{aligned} \ln \Lambda(\hat{\epsilon}|\epsilon) &= \sum_{k=1}^m \ln \Lambda(\epsilon_k|\epsilon), \\ \ln \Lambda(\epsilon_k|\epsilon) &= \frac{\epsilon_k \epsilon - \epsilon^2/2}{\sigma_k^2}. \end{aligned} \quad (5)$$

Максимально правдоподобная интегральная оценка неизвестного параметра ϵ при объединении всех се-

ансов является решением уравнения на экстремум

$$\frac{\partial \ln \Lambda(\hat{\epsilon}|\epsilon)}{\partial \epsilon} = 0, \quad (6)$$

отсюда, используя равенства (5), можно найти формулу оптимальной оценки ϵ :

$$\epsilon_{opt} = \frac{\sum_{k=1}^m \frac{1}{\sigma_k^2} \epsilon_k}{\sum_{k=1}^m \frac{1}{\sigma_k^2}}, \quad (7)$$

где ϵ_k — оценка параметра нарушения в отдельном сеансе, σ_k — дисперсия в отдельном сеансе, ϵ_{opt} — оптимальная оценка ϵ , m — число сеансов.

Это ключевой «алгоритм объединения», дающий оптимальную несмещенную и эффективную (минимальную) оценку параметра нарушения ϵ по совокупности измерительных сеансов. Дисперсия величины $\hat{\epsilon}_{opt}$ находится с помощью информационной матрицы Фишера (из формул оценки ее параметров), а именно,

$$\sigma_{\epsilon_{opt}}^2 = - \left[\left\langle \frac{\partial^2 \ln \Lambda(\hat{\epsilon}|\epsilon)}{\partial \epsilon^2} \right\rangle \right]^{-1} = \left[\sum_{k=1}^m \frac{1}{\sigma_k^2} \right]^{-1}. \quad (8)$$

Учитывая (7) и (8), можно записать интегральную оценку $\hat{\epsilon}$ в виде суммы вкладов каждого сеанса с их весовыми множителями γ_k :

$$\hat{\epsilon} = \sum_{k=1}^m \gamma_k \epsilon_k, \quad \gamma_k = \left(\frac{\sigma_{min}}{\sigma_k} \right)^2, \quad (9)$$

где m — число сеансов, σ_{min} — минимальное значение σ . Видно, что влияние сеансов с большой дисперсией подавляется.

4. ОБРАБОТКА ДАННЫХ

Обработка данных состояла из нескольких последовательных этапов. На первом этапе (предварительная фильтрация) из записи сеанса удалялись первые 7 с каждого куска синхронизации 1w или 2w, где происходил «захват» сигнала и SNR был небольшим ($< 10^3$).

Далее селектировались сеансы, на которых захват частоты после переключения режима выполнялся более 15 с, что сокращало длительность синхронизированного режима 1w и ухудшало потенциальную точность детектирования частоты сигнала ($> 10^{-4}$ Гц), таких сеансов оказалось 17, и они исключались из дальнейшей обработки. После этапа предварительной фильтрации обработка шла по схеме, описанной в разд. 2 настоящей статьи. В первую очередь мы компенсировали тренд, вызванный эффектом Доплера первого порядка (см. рис. 2 — наклон графика), с помощью компенсационной схемы 2, остаточные эффекты после применения компенсационной схемы представлены на графиках на рис. 3. Укажем, что поправки несферичности Земли и приливного потенциала Солнца минимум на порядок меньше точности используемых стандартов частоты, поэтому эти эффекты можно было не учитывать. Другие эффекты — приливной потенциал Луны, релятивистский эффект Доплера — существенны и вносят значительный вклад в итоговую ошибку всего эксперимента. Компенсация этих факторов была проведена с использованием реконструированной орбиты КА (баллистическая группа ИПМ РАН).

Важным шагом понижения систематической ошибки в оценке ε является компенсация эффекта расстройки (несовпадения частот) бортового и наземного стандартов частоты (член Δh в уравнении (2)). Для этой цели использовались данные калибровочных сеансов, проводившихся параллельно с гравитационными. Подробное описание концепции калибровочных сеансов и результаты вычисления отстройки представлены в статье [19]. Компенсация отстройки проводилась с помощью интерполяции измеренных значений в калибровочных сеансах на дату проведения гравитационного сеанса, после чего ошибка отстройки вычиталась по аналогии с другими эффектами. Для неболь-

Таблица 2. Измерения параметра нарушения ε и σ_k^2 в гравитационных сеансах

Сеанс	Дата	$\varepsilon_k \cdot 10^{-5}$	σ_k^2	ε_{weight}
raks17az	16-09-30	4.5	0.000494	1.41 e-5
raks17bl	16-12-06	6	0.003112	2.98 e-6
raks17bm	16-12-06	4.8	0.002928	2.54 e-6
raks17bo	16-12-15	4	0.002664	2.32 e-6
raks17br	17-03-12	2.1	0.000977	3.32 e-6
raks17bs	17-03-13	1.2	0.001410	1.34 e-6
raks17bt	17-03-26	3.2	0.000752	6.58 e-6
raks17bv	17-03-29	1.7	0.0029319	8.97 e-7
raks17aw	16-09-29	40	0.631962	2.45 e-7
raks17ay	16-09-29	30	0.002486	1.29 e-7
raks17bi	16-11-26	63	0.000251	1.03 e-4
raks17bk	16-12-05	34	4111	-3.05 e-8
raks17bn	16-12-14	174	0.001939	-2.78 e-5
raks17bu	17-03-29	1032	0.004340	1.10 e-4

шой части гравитационных сеансов (менее 10 %) отстройка осталась неизвестной, и эти сеансы были исключены из обработки. К ним добавились такие, которые имели помехи, вызванные приемной аппаратурой, отсутствием корректных баллистических данных, нелинейным изменением частоты сигнала. В общей сложности на втором этапе были исключены из обработки 9 сеансов. В итоге число сеансов, прошедших все критерии отбора, составило 14. Их данные отражены в табл. 2.

Используя данные, полученные после обработки всех (табл. 2) гравитационных сеансов в соответствии со стратегией измерений, мы можем найти нормировочный коэффициент α :

$$\alpha = \left(\sum_{k=1}^m \frac{1}{\sigma_k^2} \right)^{-1} = 0.0001547. \quad (10)$$

Далее, согласно формуле (7), можем найти ε_{opt} по совокупности измерений с учетом весового множителя. Таким образом, совокупная оценка равна $\varepsilon_{opt} = 1.57 \cdot 10^{-5}$.

Объединяя выборочные дисперсии и находя интервальную оценку в соответствии с распределением χ^2 (см. [18]), получим

$$\frac{m_k - 1}{\chi^2(1 - \gamma)(m_k - 1)} \hat{\sigma}_k^2 \leq \sigma_k^2 \leq \frac{m_k - 1}{\chi^2(1 + \gamma)(m_k - 1)} \hat{\sigma}_k^2, \quad (11)$$

$$\gamma = 0.95, \quad \sigma_k^2 = 3.96 \cdot 10^{-5}.$$

В рамках минимаксного подхода опираемся только на правую часть оценки. В итоге по совокупности всех сеансов мы получаем финальный результат:

$$\varepsilon_{opt} = (1.57 \pm 3.96) \cdot 10^{-5}. \quad (12)$$

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выражение (12) демонстрирует основной результат гравитационных сеансов, проведенных с КРТ «РадиоАстрон». Соответствие экспериментальных данных измерения эффекта «RedShift» формуле ОТО подтверждено с повышенной точностью $\approx 4 \cdot 10^{-5}$ по сравнению с классическим уровнем первого космического эксперимента GP-A: $1.4 \cdot 10^{-4}$ [5]. Актуальность такого подтверждения связана с тем, что «RedShift» эффект является составной частью Эйнштейновского принципа эквивалентности (ПЭЭ), представляющего экспериментальную базу ОТО [2]. В частности, универсальность «RedShift» в любой зоне пространства-времени гарантирует его позиционную инвариантность. Нарушение такой универсальности означает отказ от ОТО. В этом аспекте важно, что гравитационные измерения с «РадиоАстрон» впервые содержали сеансы на весьма далеких расстояниях от Земли. Другие известные орбитальные измерения «RedShift» выполнялись в близкой околоземной зоне с радиусом ≈ 20000 км, включая спутники Galileo. Измерения с последними проводились независимо французской и немецкой группами; отчеты в работах [6, 7] дали разброс по параметру нарушения в пределах от $(2.48 \div 4.5) \cdot 10^{-5}$ с ошибкой в 1σ . Таким образом, новый результат «РадиоАстрон» вполне согласуется с данными Galileo (проект GREAT). Интерес к дальнейшему повышению точности измерений «RedShift» эффекта продиктован его связью с (ПЭЭ), поскольку любое нарушение (ПЭЭ) открывает возможность поиска «новой физики». Оценка роли гравитационных измерений с RA для селекции альтернативных теорий релятивистской гравитации на текущий момент затруднительна. В литературе, в основном, рассматривались redshifts на космологических масштабах, (см., например, [21]). На основе измерений в Солнечной системе, в принципе, вероятно тоже можно сформулировать рецепты для подобного отбора, но это потребует серьезных дополнительных исследований. Что касается мотивации улучшения точности измерений «RedShift» и его практических приложений, то, кроме эвристического значения углубленной проверки ПЭЭ, очевидна навигационная по-

требность все более точного вычисления (прогноза) траекторий КА, особенно в дальнем космосе [22], куда закладывается величина «RedShift» при радиолокационном контроле траектории (соответствующая поправка вводилась баллистической группой ИПМ РАН при обслуживании миссии RA). Проекты более точных «RedShift» измерений, в частности, можно найти в работах [2, 6, 7, 20].

Благодарности. Авторы выражают признательность руководству группы «РадиоАстрон» в АКЦ ФИАН М. В. Попову и Ю. Ю. Ковалеву за постоянную поддержку в работе с гравитационными измерениями и их обработкой, а также директору ГАИШ МГУ А. М. Черепашуку за внимание к теме и создание благоприятных условий работы для большей части соавторов.

ЛИТЕРАТУРА

1. N. S. Kardashev, V. V. Khartov, V. V. Abramov et al., *Astron. Rep.* **57**, 153 (2013).
2. C. M. Will, *Living Rev. Relativity* **17**, 4 (2014).
3. A. V. Biriukov, D. A. Litvinov, and V. N. Rudenko, *Astron. Rep.* **58**, 783 (2014).
4. R. F. C. Vessot and M. W. Levine. *General Relativity and Gravitation* **10**, 181, (1979).
5. R. F. C. Vessot, M. W. Levine, and E. M. Mattison, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 20 (1980).
6. P. Delva, N. Puchades, E. Schonemann et al., *Phys. Rev. Lett.* **121**, 231101 (2018).
7. S. Herrmann, F. Finke, M. Lulf et al., *Phys. Rev. Lett.* **121** 231102 (2018).
8. N. V. Nunes, N. Bartel, M. V. Zakhvatkin et al., *Advances in Space Research*, **65**, 790 (2020).
9. N. V. Nunes, N. Bartel, A. Belonenko et al., *Class. Quantum Grav.* **40**, 175005 (2023).
10. G. Molera Calves, Ph. D. Dissertation, Aalto University, Pub. No 42 (2012).
11. A. V. Belonenko, A. V. Gusev, and V. N. Rudenko, *Gravitation and Cosmology*, **27**, 383 (2021).
12. A. V. Belonenko, S. M. Popov, V. N. Rudenko et al., *Grav. and cosmology*, **26**, 128 (2020).
13. А. В. Гусев, Д. А. Литвинов, В. Н. Руденко, *ЖЭТФ* **150**, 937 (2016) [A. V. Gusev, D. A. Litvinov, and V. N. Rudenko, *J. Exp. Theor. Phys.* **123**, 814 (2016)].

14. M. V. Sazhin et al., *Astron. Rep.* **54**, 959 (2010).
15. IAU SOFA Board, IAU SOFA Software Collection Issue 2021-01-25 <http://www.iausofa.org>
16. M. V. Zakhvatkin, A. S. Andrianov, V. Y. Avdeev et al., *Advances in Space Research*, **65**, 798 (2021).
17. A. V. Belonenko, F. S. Gurin, V. N. Rudenko et al., *Пространство, время и фундаментальные взаимодействия*. **3–4**, 3 (2023).
18. B. R. Levin, *Teoreticheskie Osnovy Statisticheskij radiotekhniki*, **1**, 353 (1989).
19. D. A. Litvinov, V. N. Rudenko, A. V. Alakoz et al., *Phys. Lett. A* **382**, 2192 (2018).
20. D. Litvinov and S. Pilipenko, *Class. Quant. Grav.* **38**, 135010 (2021).
21. D. Rosselli, F. Marulli, A. Veropalumbo, *Astron. Astrophys.* **669**, (2023).
22. P. C. Brandt, E. A. Provornikova, A. Cocoros et al., *Acta Astronautica* **199**, 364 (2022).

ФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ДИБОРИДА ЦИРКОНИЯ ПРИ ТЕМПЕРАТУРЕ 2500–5000 К

С. В. Онуфриев^{а*}, А. И. Савватимский^{а,б**}

^а Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия

^б Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 июня 2024 г.,
после переработки 30 июня 2024 г.

Принята к публикации 1 июля 2024 г.

Представлены результаты измерения свойств диборида циркония ZrB_2 в интервале температур 2500–5000 К: энтальпии, теплоты плавления, теплоемкости, удельного электросопротивления. Данные для жидкой фазы получены впервые. Исследование выполнено методом нагрева импульсом тока микросекундной длительности — методом «взрыва проводников» Лебедева на пластинках спеченного ZrB_2 . Измеренная температура начала плавления диборида, 3400–3440 К, согласуется с фазовой диаграммой В–Zr. Установлено, что при 3000 К теплоемкость $C_p = 2$ Дж/г·К в два раза больше экстраполированных низкотемпературных справочных данных, а в жидкой фазе наблюдается монотонное снижение C_p от 2 до 1.5 Дж/г·К (при 5000 К). Для объяснения расхождений используется гипотеза об определяющей роли дефектов Френкеля в области плавления быстро нагреваемого вещества.

DOI: 10.31857/S0044451024110075

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время активно исследуются сверхвысокотемпературные материалы, имеющие температуру плавления 3300 К и выше, работоспособные при температурах до 2000–2300 К [1]. Эти материалы находят применение в ракетно-космической технике и ядерной энергетике. К веществам, обладающим такими свойствами, относятся карбиды, нитриды, бориды металлов, среди которых бориды циркония и гафния считаются наиболее стойкими к окислению. Диборид циркония ZrB_2 — химическое соединение с молярной массой 112.846 г/моль, имеющее высокую электро- и теплопроводность, высокую температуру плавления (примерно 3500 К) и обладающее высокой прочностью, твердостью и химической стойкостью. Борид циркония ZrB_2 является одним из самых легких соединений (расчетная плот-

ность 6.09 г/см³), используемых в качестве тепловой защиты в авиации и космонавтике. Также известно, что из-за высокого сечения захвата нейтронов бориды используются в ядерной технике в качестве материалов регулирующих стержней и для защиты от ядерных излучений [2]. Благодаря стойкости в расплавах металлов и высокой теплопроводности диборид циркония используется для изготовления накопечников термопар в сталелитейном производстве.

Однако, несмотря на востребованность диборида циркония, его свойства при высоких температурах изучены недостаточно. До сих пор отсутствуют достоверные экспериментальные сведения об энтальпии, теплоемкости C_p и электросопротивлении твердой фазы ZrB_2 при температурах, близких к температуре плавления, для которых имеются только оценочные данные. Более того, в литературе полностью отсутствуют экспериментальные данные о физических свойствах ZrB_2 в жидком состоянии. Для получения указанных сведений нами выполнен эксперимент при быстром (микросекундном) нагреве пластинок борида ZrB_2 импульсом электрического тока.

* E-mail: s-onufriev@yandex.ru

** E-mail: savvatimskiy.alexander@gmail.com

Исследование высокотемпературных свойств тугоплавких и сверхтугоплавких веществ с температурами плавления более 3000 К целесообразно проводить импульсными методами токового или лазерного нагрева. Эти методы позволяют исследовать твердую фазу, область плавления и жидкую фазу с временами нагрева от единиц микросекунд до сотен миллисекунд. При этом, на наш взгляд, предпочтительным является метод нагрева импульсом тока, так как здесь обеспечивается объемный нагрев, который, в отличие от поверхностного лазерного нагрева, при соблюдении определенных условий может быть однородным, что обеспечивает однородное состояние вещества. Наиболее удобным, не требующим введения поправки на потери тепла излучением является метод нагрева импульсом тока микросекундной длительности.

Это так называемый «взрывной» метод нагрева проводников [3], у истоков создания которого стоял Сергей Владимирович Лебедев (1913–1990).

Авторы фактически продолжают подобные экспериментальные работы с применением этого метода на новом уровне: с применением цифровой техники регистрации быстротекущих процессов.

Метод позволяет получить однородное состояние проводника в ходе нагрева при определенных соотношениях между толщиной проводника (обычно десятки–сотни микрометров), его электропроводностью, плотностью тока и временем нагрева [4,5]. При малом времени нагрева сохраняется модель черного тела — цилиндрическая [5] или клиновидная [6] в твердой и жидкой фазах, что позволяет измерить излучательную способность и истинную температуру вещества.

Здесь необходимо отметить, что температура T_m плавления вещества одинакова как для стационарного нагрева, так и для быстрого микросекундного нагрева. Это подтверждается во многих наших экспериментах как для металлов, так и для карбидов. Однако в некоторых работах [7] утверждалось, что при быстром нагреве может происходить «перегрев» металла, с увеличением его температуры плавления на «сотни градусов». Наш прямой эксперимент [8] с быстрым микросекундным нагревом танталовой фольги (в виде модели черного тела) показал, что температура плавления тантала остается равной ее стационарному значению. В то же время установлено, что при длительности нагрева в единицы микросекунд разность температур между поверхностью плавящегося образца и его сердцевиной составляет около 20 К [6]. Эта разность выравнивается по сечению проводника за время примерно 0.2 мкс.

Вместе с тем изучение полиморфных переходов показывает, что измеренная температура перехода зависит от его характера: в случае мартенситного перехода, например α – β -перехода в цирконии, его температура и введенная энергия остаются такими же, как и при стационарном нагреве [4]. В случае медленного диффузионного перехода, например для никрома Х20Н80, температура перехода смещалась на 1000 К выше стационарного значения [9].

Помимо этих эффектов, при быстром токовом нагреве обнаружены аномально высокий рост теплоемкости и повышенная электронная эмиссия металлов перед плавлением [3]. Предположительно, причиной аномального роста теплоемкости может быть появление в объеме вещества за короткое время перед плавлением парных дефектов Френкеля — междоузельный атом + вакансии, которые вносят свой вклад в разрушение решетки при плавлении [3]. Для образования такого парного дефекта в металле необходима энергия, значительно большая, чем для образования вакансии, что должно привести к дополнительному росту теплоемкости по сравнению со стационарным нагревом, когда в основном образуются вакансии. Аномальный рост теплоемкости вблизи начала плавления твердой фазы наблюдается также и в случае нагрева графита [10] и карбидов [11]. Перестройка решетки вызывает перестройку электронной подсистемы, что может служить причиной аномального роста электронной эмиссии в этой области состояний.

Сверхтугоплавкая керамика, к которой относится диборид циркония, изготавливается тремя основными способами: 1) методом прессования и спекания порошков; 2) методом напыления, например магнетронного напыления; 3) методом осаждения из реагирующей газовой фазы. В последнее время развивается также метод золь–гель [12]. От способа изготовления зависит размер зерен, пористость керамики и выбор толщины исследуемых образцов. Первым методом обычно получают керамику с размером зерен в десятки микрометров, что приводит к необходимости использования сравнительно массивных образцов толщиной в сотни микрометров. Вторым методом позволяет получать образцы с размером зерен в десятые доли микрометров, что дает возможность исследовать пленочные образцы толщиной в единицы микрометров. Третий метод также позволяет получать пленочные покрытия с малым размером зерен. Очень малый размер зерен дает технология золь–гель.

В настоящей работе исследованы спеченные образцы диборида циркония толщиной 100–120 мкм.

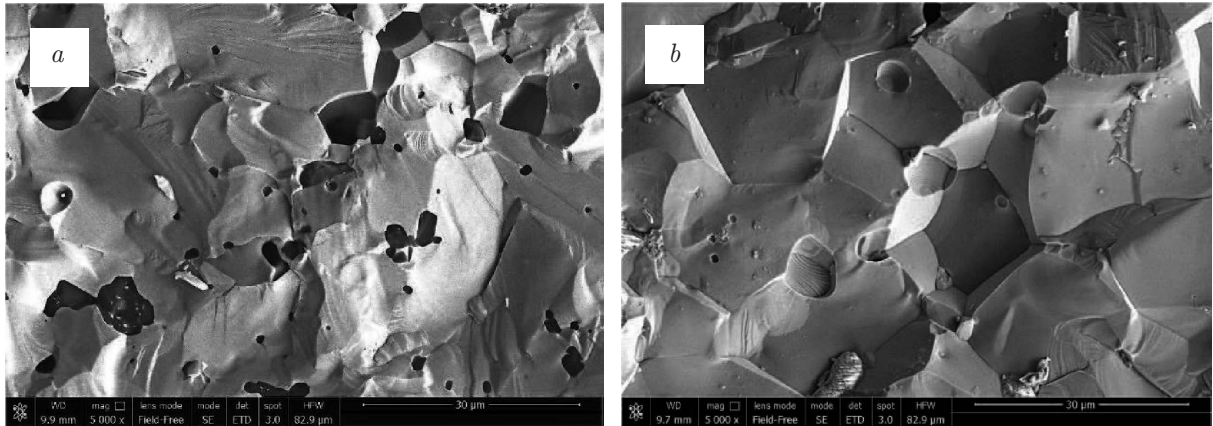


Рис. 1. *a* — Микроструктура образца № 1. *b* — Микроструктура образца № 2

2. МЕТОД ИЗМЕРЕНИЙ И УСТАНОВКА

Метод измерений и описание установки, включая описание быстродействующего пирометра, представлены в ряде публикаций [4, 13–15]. Импульс тока, нагревающий образец, формируется при разряде батареи высоковольтных конденсаторов через последовательно соединенные балластное сопротивление и образец. С помощью цифрового осциллографа регистрируются ток I через образец, напряжение u на образце и сигнал пирометра U_p .

Здесь мы приведем соотношения, необходимые для расчета следующих определяемых в эксперименте величин.

1) Энергия джоулева нагрева, рассеянная в образце (энтальпия),

$$E(t) = \frac{1}{m} \int_0^t I(t) U(t) dt \approx \frac{1}{m} \sum_0^k I(t_i) U(t_i) \delta t, \quad (1)$$

где m — масса образца, $U(t_i) = u(t_i) - u_{ind}(t_i)$ — падение напряжения на активном сопротивлении образца, $u_{ind}(t_i)$ — индуктивная составляющая напряжения на образце, $k = t/\delta t$, где δt — период дискретизации цифрового осциллографа. При стандартном значении $\delta t = 2$ нс и развертке осциллографа 20 мкс число точек на развертку составит $k = 10^4$.

2) Температура образца [14]

$$T(t) = \frac{C_2}{\lambda \ln \left[\frac{U_0 \varepsilon_{\lambda n} \tau_{\lambda}}{U_p(t) \varepsilon_{\lambda n}^0 \tau_{\lambda}} \left(\exp \left(\frac{C_2}{\lambda T_0} \right) - 1 \right) + 1 \right]}, \quad (2)$$

где C_2 — постоянная в формуле Планка, U_0 и $U_p(t)$ — сигнал пирометра при калибровке и сигнал от образца, $\varepsilon_{\lambda n}$ и $\varepsilon_{\lambda n}^0$ — нормальные спектральные излучательные способности поверхности образца и вольфрамовой ленты лампы СИ-10-300, $\tau_{\lambda} = \prod \tau_{i\lambda}$ — суммарный коэффициент пропускания верхней пла-

стины ячейки ($\tau_{1\lambda}$, см. ниже) и защитного стекла ($\tau_{2\lambda}$) — элементов, которые удаляются во время калибровки пирометра, $\tau_{\lambda}^0 \approx 0.92$ — коэффициент пропускания окна температурной лампы, $T_0 = 2515$ К — температура вольфрамовой ленты лампы СИ-10-300, при которой проводится калибровка пирометра. Коэффициенты пропускания $\tau_{i\lambda}$ измерялись с помощью спектрофотометра Shimadzu UV-240 на длине волны пирометра 856 нм.

3) Удельная изобарная теплоемкость [15]

$$C_p(T) = \frac{E(T(t_i + n\tau)) - E(T(t_i))}{T(t_i + n\tau) - T(t_i)}, \quad (3)$$

где $E(T(t))$ — энергия джоулева нагрева (1), t_i и $t_i + n\tau$ — начало и конец i -го интервала времени, n — заданное число точек. Обычно берется 150 точек, что соответствует интервалу температур 150–250 К. Полученное значение C_p относится к средней температуре интервала

$$T_{ref} = [T(t_i + n\tau) + T(t_i)]/2.$$

4) Удельное электросопротивление, отнесенное к исходным размерам образца,

$$\rho(T) = R(T) \frac{S_0}{L_0}, \quad (4)$$

где R — активное сопротивление образца, S_0 и L_0 — исходные площадь поперечного сечения и длина образца.

Погрешности этих величин составляют 7–10 % для энергии в зависимости от однородности и качества образцов (для металлов эта погрешность равна 5 %), 15 % для теплоты плавления, 80–100 К для температуры 4000 К без учета погрешности излучательной способности, 20 % (для твердой фазы) и 30 % (для жидкой фазы) для теплоемкости, 7–10 % для удельного электросопротивления. Погрешность измерения температуры, учитывающая

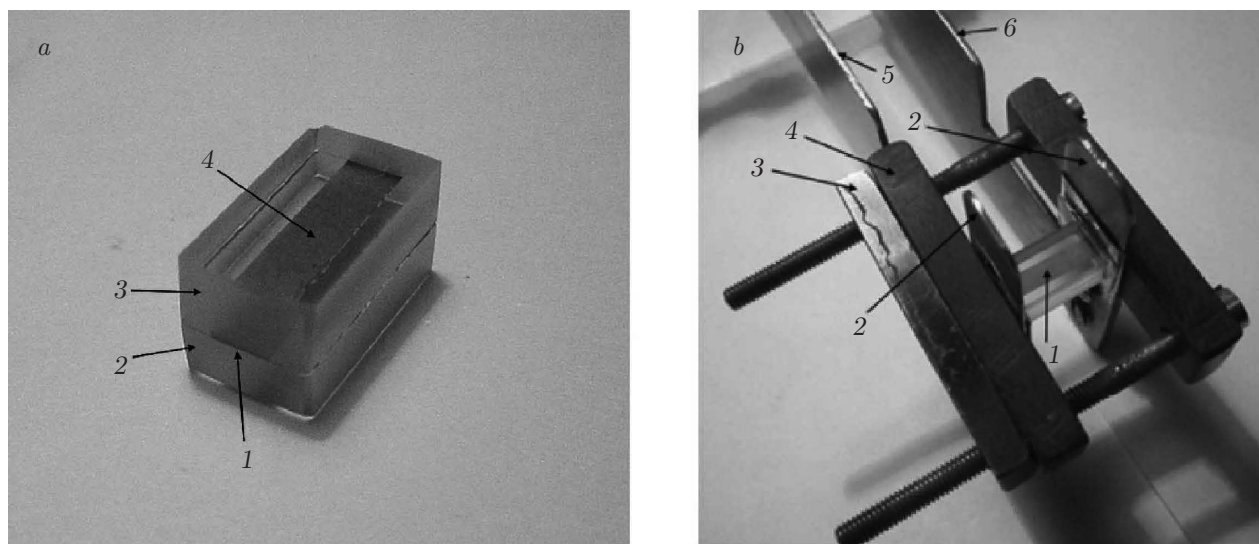


Рис. 2. *a* — Ячейка из кварцевого стекла с образцом ZrB_2 : 1 — торец пластинки ZrB_2 (шлифовка заподлицо с торцами кварцевых стекол); 2 — нижняя пластина (толщина 3.3 мм); 3 — верхняя пластина (толщина 4 мм); 4 — пластинка ZrB_2 шириной 4 мм. *b* — Ячейка с образцом зажата в токоподводах: 1 — образец диборида внутри кварцевой ячейки; 2 — латунные токоподводы; 3 — стальная пластина; 4 — пластина текстолита; 5, 6 — латунные электроды

погрешность излучательной способности, выражается формулой

$$\frac{\delta T}{T} = \frac{\lambda T}{C_2} \frac{\delta \varepsilon_{\lambda n}}{\varepsilon_{\lambda n}},$$

где обозначения такие же, как в формуле (2).

3. ОБРАЗЦЫ

Были исследованы образцы ZrB_2 двух разных изготовителей — образец № 1 и образец № 2. В табл. 1 указаны основные характеристики исходных заготовок, из которых изготавливали образцы.

Эти заготовки разрезали с помощью электроэрозионной резки на пластины $0.5 \times (3-4) \times 15 \text{ мм}^3$, которые затем шлифовали алмазными пастами до размера $(0.1-0.12) \times (3-4) \times 15 \text{ мм}^3$.

Анализ микроструктуры поверхностей изломов образцов № 1 и № 2, а также оценка элементного состава этой поверхности для образца № 1 методом EDS (energy dispersive spectroscopy) проводились на растровом электронном микроскопе Nova NanoSem 650 с использованием детектора вторичных электронов, кольцевого детектора обратно-рассеянных электронов и системы энерго-дисперсионного анализа EDAX. Характерный вид микроструктуры излома образцов представлен на рис. 1.

Поверхность излома образца № 1 (рис. 1а) имеет преимущественно транскристаллитный характер и сложена из плотно прилегающих друг к другу зерен размерами 5–20 мкм. На поверхности излома при-

сутствуют включения (темного цвета) и полости, образовавшиеся, видимо, из-за выкрашивания некоторой части этих включений. Их размеры колеблются от субмикронных до микронных, объемное содержание темных включений ограничено (3–3.5 %). Оценка содержания химических элементов как во включениях, так и при сканировании по площадям $100 \times 50 \text{ мкм}^2$ приведена в табл. 2. Примесные элементы Fe, Co и Mg сосредоточены преимущественно в темных включениях, и их концентрации сильно колеблются. Однако можно оценить приблизительное суммарное содержание этих элементов, которое составляет менее 0.15 мас. %. Алюминий и вольфрам в малых количествах стабильно фиксируются на всей поверхности излома.

Согласно табл. 2, массовая доля ZrB_2 в образце № 1 (оценка по площади) составила 98.7 %. Для этих участков отношение $\text{B}/\text{Zr} \approx 2.72$, для темных включений $\text{B}/\text{Zr} \approx 17.1$, т.е. образец содержал ZrB_2 и, возможно, свободный бор, ZrB_{12} и бориды примесных металлов.

Поверхность излома образца № 2 (рис. 1б) имеет смешанный характер — зернограничный и внутризеренный. На поверхности наблюдаются плотно прилегающие друг к другу зерна с линейными размерами 5–30 мкм, а также отдельные включения субмикронных и микронных размеров. В табл. 3 приведена массовая доля примесей в образце № 2 согласно сертификату изготовителя. Доля ZrB_2 составляет 99.898 мас. %.

Таблица 1. Сведения о заготовках для изготовления образцов

Номер образца	Исходная заготовка диск	Чистота материала, мас. %	Плотность, г/см ³	Пористость*, %
1	диаметр 85 мм толщина 16 мм, метод спекания	98 ZrB ₂	5.607	7.9
2	диаметр 50 мм толщина 3 мм, метод спекания	He менее 99.5 ZrB ₂	5.858	3.8

Примечание.* — плотность ZrB₂ 6.09 г/см³ [16].

Таблица 2. Содержание элементов в образце № 1

Элемент	Область 100 × 500 мкм ²		Темное включение	
	Мас. %	Ат. %	Мас. %	Ат. %
B	24.03	72.61	63.67	93.01
Al	0.41	0.50	1.42	0.83
W	0.90	0.16	1.23	0.11
Zr	74.65	26.73	31.38	5.43
Fe	—	—	0.50	0.14
Co	—	—	1.80	0.48

Рентгенофазовый анализ образца № 2 показал, что он состоит из 99.3% гексагонального ZrB₂ и 0.7% моноклинного ZrO₂ и содержит 66.3 ат. % бора, 33.3 ат. % Zr и 0.4 ат. % кислорода. Таким образом, этот образец имеет более высокую чистоту, меньшую пористость и стехиометрический состав (B/Zr = 1.99) по сравнению с образцом № 1.

По данным справочников диборид циркония (хрупкий при комнатной и более высокой температуре материал) становится пластичным при $T > 1400$ К. Для того чтобы в токоподводах зажать с торцов тонкую пластинку диборида (ток пропускается вдоль образца), ее предварительно клеивали в ячейку, состоящую из двух стеклянных пластин $(3.3-4) \times 8 \times 15$ мм³, вид которой показан на рис. 2а. Ячейка размещалась между токоподводами высоковольтной установки и зажималась через медные и индиевые прокладки (рис. 2б). Температура измерялась на плоской поверхности образца сквозь верхнее кварцевое стекло, пропускание которого учитывалось. Для склейки использовался клей Böhle ультрафиолетового отверждения.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

На рис. 3 показан типичный вид осциллограмм (развертка 10 мкс), полученных в эксперименте с ZrB₂.

На осциллограммах отсутствуют резкие изломы, скачки, что свидетельствует о том, что нагрев об-

Таблица 3. Массовая доля примесей в образце № 2

Mg	Al	Si	Ca	Ti	Cr
0.0055	0.0012	0.0026	0.0066	0.0059	0.0043
Mn	Fe	Co	Ni	Hf	W
0.002	0.027	0.0029	0.004	0.0064	0.034

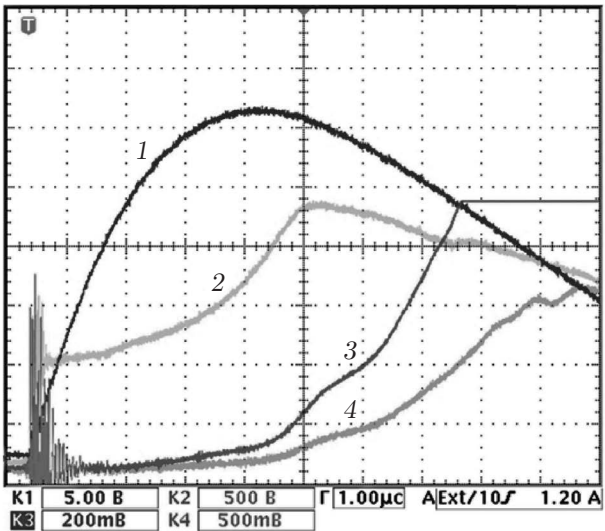


Рис. 3. Осциллограммы: 1 — ток I (максимальное значение 29 кА); 2 — напряжение на образце u ; 3 — сигнал $U_p(t)$ пирометра; 4 — сигнал пирометра при низкой чувствительности. Используется запись сигнала пирометра на двух каналах для расширения динамического диапазона пирометра [17]

разца в твердой фазе, его плавление и нагрев жидкой фазы происходили без разрушения образца или ячейки. Это говорит о том, что конструкция ячейки и способ нагрева (объемный нагрев) позволяют проводить эксперименты с хрупкими образцами, и косвенно свидетельствует об однородности нагрева. Играть роль также высокая термостойкость образцов ZrB_2 , обусловленная их высокой теплопроводностью [1].

На осциллограммах 3, 4 между 5-й и 7-й микросекундами от начала развертки наблюдается наклонное «плато плавления»: в какой-то момент времени скорость изменения сигнала пирометра падает, хотя энергия продолжает выделяться в образце. Естественно определить этот момент как начало плавления образца. После того как образец полностью расплавится, скорость роста температуры уже жидкой фазы возрастает. Таким образом, появляется площадка плавления, которая позволяет определить температуры начала и окончания плавления.

На рис. 4 показаны термограммы нагрева образцов № 1 и № 2 с определением температур фазового перехода — плавления. Термограммы рассчитаны по формуле (2).

Для определения точек начала и окончания плавления участки термограммы в окрестности плавления и саму область плавления аппроксимируют прямыми и находят точки пересечения биссектрис образовавшихся углов с термограммой, как это показано на рис. 4. Эти особые точки термограммы равноудалены от прямых, аппроксимирующих соседние участки термограммы, относящиеся к разным фазам. Эти точки принимаются в качестве точек начала и окончания плавления.

Для образца № 1 и образца № 2 температуры начала плавления соответственно 3440 и 3400 К (и отдельно окончания плавления 3720 и 3750 К) согласуются в пределах погрешности измерений.

С помощью пирометра регистрируется яркостная температура поверхности образца на длине волны $\lambda = 856$ нм. Для определения истинной температуры и построения термограмм (рис. 4) необходимо знать нормальную излучательную способность $\varepsilon_{\lambda n}$. Как известно, $\varepsilon_{\lambda n}$ изменяется с изменением длины волны и ростом температуры и зависит от состава и состояния поверхности образца. Обычно используются литературные данные. Для ZrB_2 такие данные приведены в [18–24]. В работе [18] исследовали массивные образцы ZrB_2 с высокой пористостью примерно 24 % (плотность 4.5 г/см^3), полученные методом холодного прессования. Измерение нормальной излучательной способности на длине волны 650 нм

показало, что она линейно убывает от 0.76 до 0.68 с ростом температуры от 1300 до 1900 К. Исследования на спеченном компактном образце диборида циркония, содержащем 3 % вольфрама и 8 % кислорода, были выполнены в работе [19], результаты которой качественно противоречат результатам работы [18]: в [19] излучательная способность на той же длине волны с ростом температуры от 1604 до 2480 К не снижается, как в [18], а растет от 0.72 до 0.84. В [19] для нашей длины волны 856 нм в том же интервале температур величина $\varepsilon_{\lambda n}$ растет от 0.61 до 0.77.

Ряд исследований был выполнен на порошковых образцах ZrB_2 , нанесенных на нагреваемый металлический проводник. В работе [20] исследовали излучательную способность ZrB_2 в виде покрытия на танталовом стержне. Было установлено, что для $\lambda = 655$ нм в интервале температур 900–1700 К она постоянна и равна 0.7. О чистоте материала покрытия и его пористости сведения в [20] отсутствуют. Учитывая погрешности измерений, можно считать, что данные работ [18] и [20] не противоречат друг другу. Результаты исследований [20, 21] представлены в [23]. Установлено, что для $\lambda = 655$ нм в интервале температур 1073–1873 К излучательная способность ZrB_2 слабо растет от 0.89 до 0.91. Причиной высоких значений излучательной способности, полученных в [21, 22], могли быть методические погрешности, рассмотренные в работе [24] — попадание излучения нагретых частей установки в измерительный тракт.

Таким образом, мы видим, что сведения об излучательной способности в основном приводятся для длин волн 650–655 нм. Они противоречивы и ограничены сравнительно невысокими температурами. Работа [19] — единственная, в которой исследования выполнены в спектральном интервале 0.4–5 мкм, покрывающем нашу длину волны 856 нм. С учетом совокупности сведений об излучательной способности в настоящей работе принято, что излучательная способность для твердой и жидкой фаз диборида на длине волны 856 нм равна 0.7. Расчет температур в настоящей работе выполнен для этой излучательной способности. Как видно из формулы (2), расчетная температура при прочих равных условиях будет падать с увеличением $\varepsilon_{\lambda n}$ и наоборот расти с уменьшением $\varepsilon_{\lambda n}$.

Эксперименты с двумя типами образцов дали примерно одинаковые результаты: повторяющиеся термограммы нагрева (рис. 4), повторяющиеся температурные зависимости энергии нагрева, рассеянной в образце (энтальпии) (рис. 5), зависимости теп-

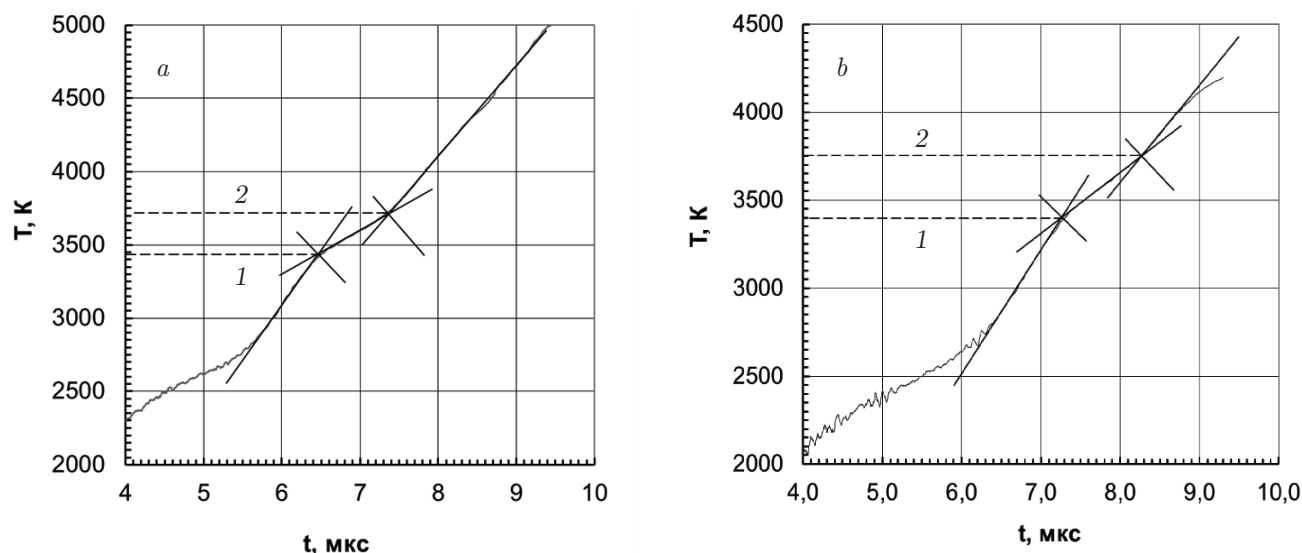


Рис. 4. *a* — Термограмма нагрева образца № 1 с определением интервала плавления: 1 и 2 — начало и окончание плавления (3440 и 3710 К). Скорость нагрева выше, чем для образца № 2. *b* — Термограмма нагрева образца № 2 с определением температурного интервала плавления: 1 и 2 — начало и окончание плавления (3400 и 3750 К)

лоемкости (рис. 6) и удельного электросопротивления (рис. 7).

Для образца № 1 данные получены в большем интервале температур, поэтому в основном анализируются температурные зависимости свойств этого типа образцов.

На рис. 5 показаны кривые изменения энергии E джоулеа нагрева, рассеянной в образце (энтальпии), от температуры. На этом графике штриховыми линиями 5, 6 обозначены найденные по рис. 4*b* температуры начала и окончания плавления ZrB_2 , а линиями 7, 8 — соответствующие энергии.

Отметим, что энергия нагрева для жидкой области ZrB_2 (выше 4000 К), измеренная в эксперименте, гораздо больше, чем расчетные значения (линии 3 и 4). Для области температур вблизи 2500 К картина обратная: эксперимент дает более низкие значения энергии нагрева.

На рис. 6 приведены температурные зависимости теплоемкости при постоянном давлении, C_p , образцов диборида циркония. Виден характерный подъем кривой $C_p(T)$ перед плавлением с 2 до 2.5 Дж/(г·К) при росте температуры от 3000 до 3300 К и резкое снижение после плавления — от 2.5 до ≈ 2 Дж/(г·К) при уменьшении температуры от 3800 до 4000 К. По мнению авторов, эти эффекты связаны с образованием дефектов Френкеля в твердой фазе перед плавлением и их исчезновением после плавления.

Отметим, что рост теплоемкости (как и ее уменьшение после плавления) по условиям измерений, рассмотренных в работе [15], нужно рассматривать только вне температурного интервала 3340–3810 К.

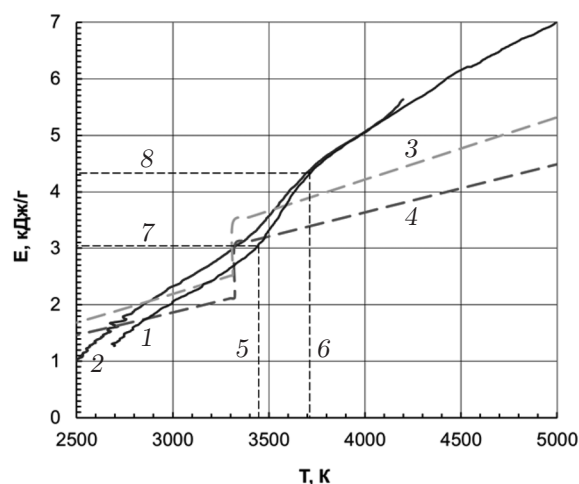


Рис. 5. Температурные зависимости удельной энергии джоулеа нагрева для образцов ZrB_2 (энтальпии): 1 — образец № 1; 2 — образец № 2; 3 — расчетные данные [25]; 4 — расчетные данные [26]; 5 и 6 — температуры начала T_{m1} и окончания T_{m2} плавления образца № 1; 7 и 8 — соответствующие этим температурам энергии. Теплота плавления $\Delta E = 1.27$ кДж/г (143 кДж/моль)

Отметим еще одну особенность теплоемкости, которая наблюдается для диборида циркония и ранее наблюдалась для карбидов: это — уменьшение C_p после плавления ниже, чем C_p твердого состояния, до плавления. Это можно объяснить, с одной стороны, тем, что исследуемые образцы до проведения эксперимента не отжигались. Следовательно, они несли в себе все исходные дефекты, в то время как после плавления большинство этих дефектов «отжигалось» в области плавления. С другой сто-

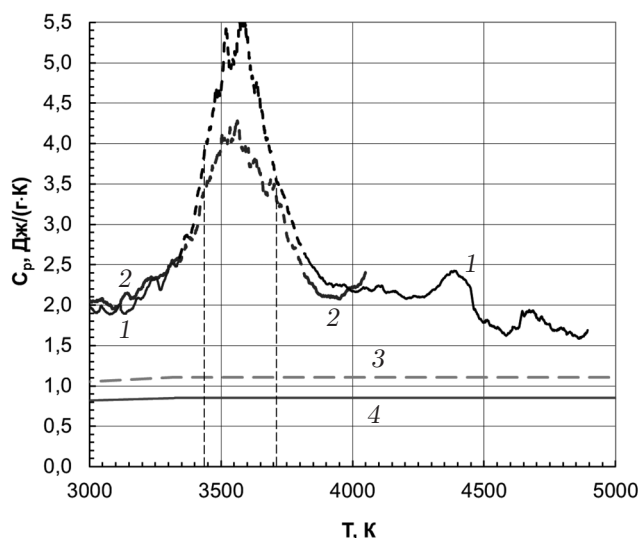


Рис. 6. Зависимости теплоемкости образцов ZrB_2 от температуры: 1 — образец № 1; 2 — образец № 2; 3 — расчетные значения [25]; 4 — расчетные значения [26]. Для образца № 1 область плавления лежит между двумя вертикальными штриховыми линиями 3440 и 3710 К. Штриховые участки кривых 1, 2 в области плавления имеют иллюстративный характер [15]

роны, за время после окончания плавления (около 2 мкс) в жидкости предположительно исчезают дефекты Френкеля.

Образец № 1 был исследован при более высокой скорости нагрева, это позволило фиксировать теплоемкость жидкой фазы при более высокой температуре.

На рис. 7 приведены температурные зависимости удельного электросопротивления диборида циркония. Штриховыми линиями 3 и 4 показаны температуры начала и окончания плавления образца № 1, а 5 и 6 — сопротивление образца в твердой фазе перед плавлением и в жидкой фазе после плавления (отнесено к исходным размерам образца).

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

5.1. Оценка давления, возникающего при импульсном нагреве

Нагрев и расширение образца в стеклянной ячейке приводит к появлению импульсного давления в образце. Для оценки этого давления пренебрежем слоем клея, отделяющим образец от пластин ячейки, и воспользуемся оценкой динамического давления P_d , возникающего при движении поршня (образца) в среде (в стекле) [11, 17, 27]:

$$P_d = zU_b, \quad (5)$$

где $z = \gamma_s c$ — волновое сопротивление среды, γ_s и c — плотность среды и скорость звука в среде, в ко-

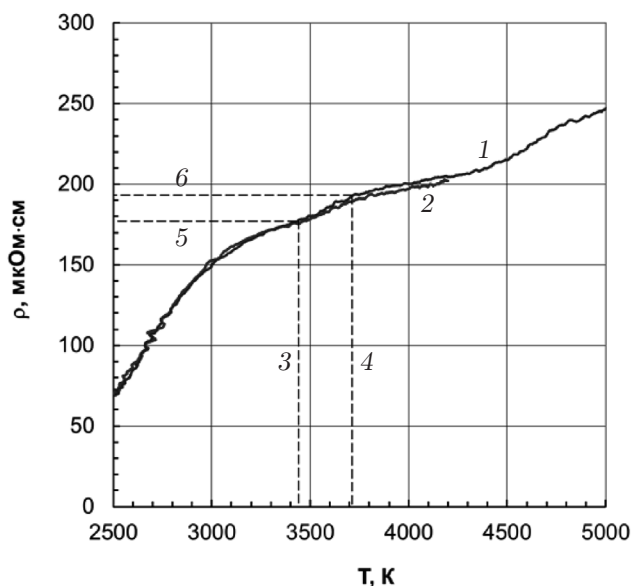


Рис. 7. Зависимости удельного электросопротивления образцов ZrB_2 от температуры. Удельное сопротивление отнесено к исходным размерам образцов: 1 — образец № 1; 2 — образец № 2. Область плавления 3–4 (3440–3710 К) выделена вертикальными штриховыми линиями

торой расширяется образец, U_b — скорость перемещения границы образец–среда при расширении образца. Расширение образца по толщине симметрично, поэтому необходимо учитывать половину этого расширения. В твердой фазе коэффициент теплового расширения ZrB_2 для интервала температур от 293 К до T_m составляет $\alpha = 8.4 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ [28]. В жидкой фазе коэффициент расширения приблизительно равен 3α . Будем считать, что при плавлении объем увеличивается примерно на 3% (как для металлов [29]) и что рост объема образца при плавлении и рост объема жидкой фазы происходят только за счет увеличения толщины образца. Тогда при нагреве образца до 5000 К за 8 мкс получим среднюю скорость движения границы 0.73 м/с и среднее давление $P_d \approx 10 \text{ МПа}$ при волновом сопротивлении кварцевого стекла $z = 1.32 \cdot 10^7 \text{ кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$ [16]. Наибольшее давление возникает при плавлении образца, во время которого граница перемещается с наибольшей скоростью $U_b \approx 2 \text{ м/с}$, что дает давление $P_d \approx 26 \text{ МПа}$ (оценки даны для бесконечно толстых кварцевых пластин). Электромагнитное давление при максимальной плотности тока $8 \cdot 10^{10} \text{ А/м}^2$, равное нулю на поверхности образца, в его середине составляет около 7 МПа [11]. В результате получаем, что давление в образце кратковременно могло достигать 30 МПа. Такой уровень давления не сказывается на величинах энтальпии и теплоемкости образца [15, 30].

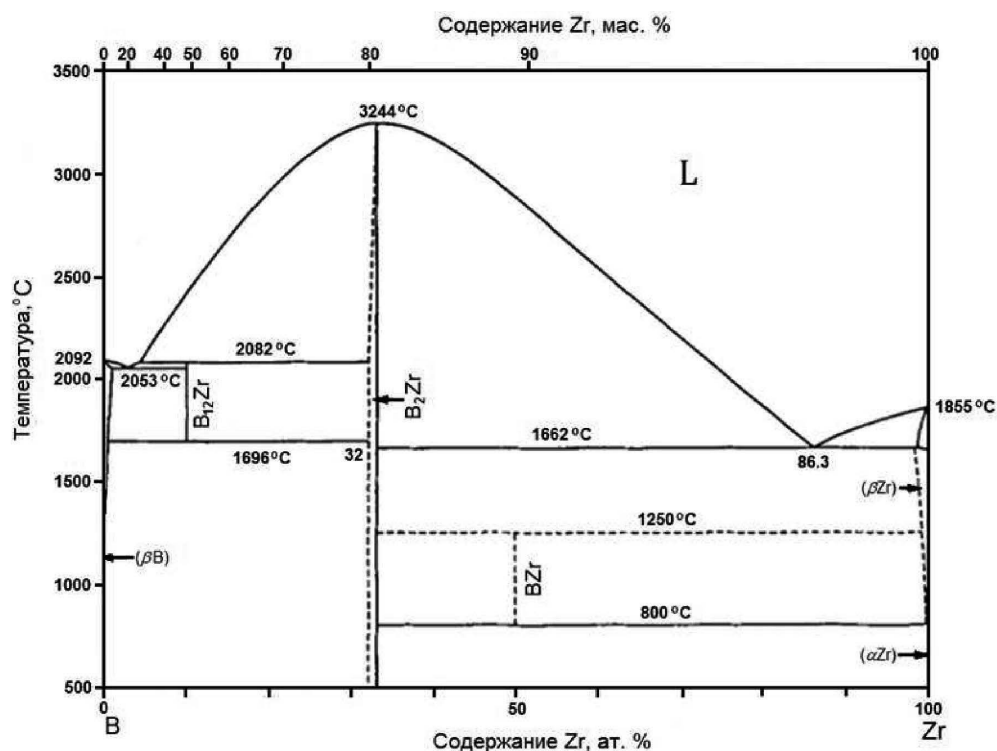


Рис. 8. Фазовая диаграмма системы B–Zr (адаптировано из работы [32])

Кварцевые пластины имели толщину 3.5 мм. Когда возмущение, вызванное расширением образца, доходит до свободной поверхности пластины, формируется волна разгрузки [31], движущаяся в обратном направлении и приводящая к снижению давления в стекле и в образце. При скорости звука в кварцевом стекле $5.9 \cdot 10^3$ м/с волна разгрузки достигнет образца через 1.2 мкс от начала нагрева, вызвав уменьшение давления в нем еще в твердой фазе. Дальнейший нагрев образца происходит в условиях действия волн разгрузки, снижающих давление.

5.2. Плавление ZrB_2

Для анализа и обсуждения результатов необходима фазовая диаграмма системы Zr–B, показанная на рис. 8 [32].

Согласно диаграмме, в системе Zr–B образуются два химических соединения: диборид циркония ZrB_2 и додекаборид ZrB_{12} . В отличие от карбида или нитрида циркония, имеющих широкую область гомогенности, соединение ZrB_2 обладает узкой областью гомогенности со значениями B/Zr, изменяющимися в пределах $2.00 \leq \text{B/Zr} \leq 2.125$ [32] (рис. 8). Причем при температурах, близких к плавлению, эта однофазная область становится еще уже, оканчиваясь конгруэнтным плавлением ZrB_2 .

Элементный анализ образца № 1 (см. табл. 2) показал, что основная масса образца содержит избы-

ток бора ($\text{B/Zr} \approx 2.72$) в отличие от образца № 2. На фазовой диаграмме этот состав смещен влево относительно стехиометрического состава ZrB_2 ($\text{B/Zr} = 2$; Zr 33.3 ат. %) и соответствует содержанию циркония 26.9 ат. %. При равновесном нагреве такой состав должен полностью расплавиться при температуре ликвидуса 3423 К на фазовой диаграмме. Полученная при импульсном нагреве образца № 1 температура начала плавления (3440 К) совпадает с температурой ликвидуса, которую дает фазовая диаграмма.

Для стехиометрического состава температура ликвидуса равна 3517 К (рис. 8). Образец № 2, имеющий такой состав, начал плавиться при 3400 К, т. е. на 117 К ниже температуры ликвидуса, что, однако, (с учетом погрешности излучательной способности) не выходит за пределы погрешности измерений. Таким образом и в этом случае температура начала плавления согласуется с фазовой диаграммой.

В равновесных условиях плавление диборида должно проходить при фиксированной температуре.

Опыт показывает (см. ниже), что при быстром нагреве импульсом тока температура плавления вещества совпадает с температурой плавления при стационарном нагреве. Однако измеренная температура поверхности образца при его плавлении возрастает на 270 К (до 3710 К) для образца № 1 и на 350 К (до 3750 К) для образца № 2 (см. рис. 4). Визу-

ально на термограммах плато плавления выглядит наклонным (см. рис. 4).

На основании экспериментального изучения этого вопроса для металлов (появление наклонной площадки плавления [4, 17, 33]) можно предположить, что в случае нагрева диборида действует тот же механизм: 1) при токовом нагреве плавление образца начинается с поверхности и распространяется в глубь образца; 2) за время плавления объема образца происходит незначительный нагрев током поверхностного жидкого слоя выше точки плавления. Жидкий слой на поверхности может иметь несколько большую температуру.

Начало плавления образца с поверхности можно объяснить повышенной дефектностью ее структуры [4]. Как известно, границы зерен также имеют повышенную дефектность. Можно предположить, что плавление внутри образца начинается по границам зерен. При этом чем крупнее будут зерна, тем больше будет различие времени плавления поверхности и всего объема образца. Для металлических образцов, у которых размер зерен мал, температура поверхности в ходе плавления повышается не более чем на 20 градусов [4]. Для спеченной керамики, как мы видим на примере ZrB_2 , этот эффект может достигать сотен градусов. Оценим время прогрева зерна в керамике ZrB_2 :

$$t = l^2/a, \quad (6)$$

где $a \approx 1.6 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ [28] — температуропроводность, $l \approx 10 \text{ мкм}$ — половина размера зерна. Получаем $t \approx 6 \text{ мкс}$, т. е. действительно необходимо большое время, сопоставимое со временем нагрева всего образца.

В реальных условиях тепловыделение идет как на границе зерен, так и внутри зерен и время прогрева сокращается примерно до 0.9 мкс (на рис. 4 это длительность площадки плавления). Используя выражение (6), оценим толщину l^* поверхностного слоя образца с повышенной температурой. Для времени плавления $t \approx 0.9 \text{ мкс}$ при той же температуропроводности получим $l^* \approx 4 \text{ мкм}$, что составляет всего 3 % от толщины образца.

Для исследований керамических образцов методом нагрева импульсом тока более предпочтительными являются образцы с минимально возможным размером зерен, что должно сократить время плавления образца и уменьшить эффект роста температуры поверхности во время его плавления. В этой связи разработка технологии золь-гель получения соединений с очень мелкой фракцией [12] — один из путей решения указанной проблемы, т. е. получения

однородного состояния при быстром микросекундном нагреве.

Причиной появления наклонного плато плавления может являться также возможное изменение излучательной способности вещества при плавлении, что требует отдельного рассмотрения.

В случае карбидов и нитридов с широкими областями гомогенности (ZrC , HfC , TaC) большой интервал плавления возможен в силу другой причины: плавление будет происходить согласно фазовой диаграмме при достижении температуры солидуса (начало интервала плавления на термограмме) и заканчиваться при температуре ликвидуса — окончании интервала плавления, например, как это имело место для ZrC [34].

Область плавления ZrB_2 видна также на зависимости введенной энергии от температуры (см. рис. 5). Теплота плавления $\Delta E = E(T_{m2}) - E(T_{m1})$, рассчитанная по зависимости $E(T)$, составила $\Delta E \approx 1.27 \text{ кДж/г}$ и $\Delta E = 1.28 \text{ кДж/г}$ (143 и 144 кДж/моль) для первого и второго образца соответственно.

На рис. 5 показаны также зависимости энтальпии от температуры [25, 26], полученные расчетным путем — экстраполяцией более низкотемпературных данных. Температура плавления в этих работах принята равной 3323 К [26] и 3313 К [25]. Наши данные по энтальпии имеют более крутую температурную зависимость, чем расчетные данные, пересекают их в области температур 2700–3700 К и расходятся с ними при более высоких температурах на величины, превышающие погрешности измерений. Расчетная теплота плавления ZrB_2 в работах [25, 26] примерно в 1.4 раза ниже и составляет $0.927 \pm 0.185 \text{ кДж/г}$ ($104.67 \pm 20.93 \text{ кДж/моль}$) [25] и 0.927 кДж/моль (104.7 кДж/моль) [26].

5.3. Теплоемкость ZrB_2

На зависимости $C_p(T)$ (см. рис. 6) видны два совпадающих пика, соответствующих плавлению двух образцов. Область плавления ZrB_2 (для образца №1) показана вертикальными штриховыми линиями, в ней расчет по формуле (3) не работает [15]. Полученные значения $C_p \approx 2 \text{ Дж/г}$ твердой и жидкой фаз вблизи области перехода примерно в два раза превышают расчетные экстраполированные данные [25, 26]. Такое расхождение может иметь ряд причин, одной из которых является предполагаемое образование дефектов Френкеля. В расчетной работе [35] получены очень большие энергии образования вакансий и дефектов Френкеля в ZrB_2 , порядка 10 эВ. Вероятно, этот фактор является основным,

дающим высокие значения C_p . Малый избыток бора в составе образца № 1 не оказывает существенного влияния на C_p — кривые для двух образцов совпадают. При анализе причин расхождения со справочными данными следует учитывать также погрешности экстраполяции расчетных значений [25, 26]. Возможно также влияние примесей.

На зависимости $C_p(T)$ (см. рис. 6) виден характерный подъем C_p перед плавлением и резкое снижение после плавления. Эти особенности в поведении теплоемкости можно качественно объяснить, используя гипотезу о преимущественном образовании дефектов Френкеля при быстром плавлении вещества [3]. При исследовании свойств металлов (W, Ta, Mo, Nb) в условиях быстрого нагрева током [3] выявили два новых эффекта: рост изобарной теплоемкости перед плавлением и рост электронной эмиссии металлов в тех же условиях нагрева и в том же интервале температур. Для объяснения этих явлений в работе [3] была выдвинута гипотеза о том, что в условиях быстрого нагрева (единицы–десятки микросекунд) наряду с медленным процессом образования вакансий основную роль играет процесс образования дефектов Френкеля (междоузельный атом + вакансия), для которого не требуется перемещения (диффузии) точечных дефектов на расстояния порядка размера зерна и который в силу этого протекает гораздо быстрее. Энергия образования дефекта Френкеля больше, чем энергия образования двух вакансий. Например, энергия образования вакансии в меди составляет 1 эВ, а дефекта Френкеля — 3 эВ.

Неравновесные явления — аномалии эмиссии и теплоемкости — были обнаружены при импульсных экспериментах только в сравнительно узкой температурной области вблизи точки плавления металлов. Например, после быстрого плавления циркония ([4], стр. 84) повышенная теплоемкость жидкого Zr снижается в диапазоне 2100–2300 К до равновесных величин. Эксперимент показывает, что эффект повышенной теплоемкости для различных веществ исчезает в жидкой области в течение 2–3 мкс после плавления.

В недавно опубликованной работе [11] отмечалось, что для всех карбидов, исследованных при быстром нагреве током, наблюдалось резкое увеличение удельной теплоемкости твердой фазы при температурах на 200–300 К меньших температуры плавления. Такой же эффект наблюдался ранее при быстром нагреве током углерода [10] и наблюдается в настоящем исследовании диборида циркония (см. рис. 6). Авторы предполагают, что указанный

эффект может быть связан с образованием парных дефектов Френкеля в условиях быстрого нагрева, так как известно, что перед плавлением концентрация дефектов в кристаллическом теле растет, а из всех известных дефектов кристалла для образования пар Френкеля требуется наименьшее время. Важным фактом является доказательство независимости температуры плавления металлов [8], карбидов [11] и углерода [36, 37] от скорости нагрева. Недавние оценки методом молекулярной динамики для карбида циркония [38] (не имеющие отношения к быстрому нагреву) при $T = 3200$ К (примерно за 200 К до начала плавления) показывают возможность роста теплоемкости вследствие образования пар Френкеля еще до плавления твердого тела. Изложенное выше базируется на физической картине поведения вещества, представленной в работе Френкеля [39].

В монографии [40] приведено выражение для оценки времени установления равновесной концентрации термических вакансий τ

$$\tau \simeq \left(\frac{L}{\delta}\right)^2 \frac{6\tau_0}{10} \exp\left(\frac{W}{k_B T}\right), \quad (7)$$

где L — характерный размер тела, δ — ширина потенциального барьера, примерно равная размеру атома, $\tau_0 \sim 10^{-13}$ с — период колебаний атома, W — энергия активации самодиффузии. Оценка [40] дала, что для $L \simeq 1$ мкм время установления порядка 10^{-2} с. В нашем случае для $L \simeq 20$ мкм (размер зерна) получим $\tau \sim 10^{-1}$ с, что много больше времени нагрева (10^{-6} – 10^{-5} с). Следовательно, образованием термических вакансий в наших условиях быстрого нагрева и плавления можно пренебречь. По нашему мнению, наиболее вероятным процессом разупорядочения решетки перед плавлением, ее «диссоциации» (термин Френкеля), является процесс образования пар Френкеля.

Отметим, что в равновесных условиях концентрация дефектов Френкеля значительно ниже концентрации вакансий вследствие более высокой энергии образования пар Френкеля. Оценим соотношение этих концентраций на примере меди.

Концентрации вакансий (дефектов Шоттки) c_S и дефектов Френкеля c_F равны [41]

$$c_S \approx \frac{n}{N} \sim \exp\left(-\frac{W_S}{k_B T}\right), \quad (8)$$

$$c_F \approx \frac{n}{\sqrt{NN^*}} \sim \exp\left(-\frac{W_F}{2k_B T}\right), \quad (9)$$

где n — число вакантных узлов решетки (для дефектов Шоттки), или число дефектов Френкеля, N —

Таблица 4. Изобарная, изохорная и электронная теплоемкости диборида циркония

Т, К	C_p , Дж/(г · К)	C_p , Дж/(моль · К)	C_v , Дж/(моль · К)	C_{el} , Дж/(моль · К)
3000	2.0	230	190	2.8
3440	2.7	300	240	—
3710	2.5	280	220	—
5000	—	—	—	4.7

общее число узлов, W_S — энергия образования вакансий, N^* — число междоузлий, W_F — энергия перемещения атома из узла решетки в междоузлие. Полагая $N^* \approx N$, для отношения этих концентраций получим

$$\frac{c_S}{c_F} \sim \exp\left(\frac{W_F - 2W_S}{2k_B T}\right). \quad (10)$$

В точке плавления меди ($T = 1356$ К, $W_F = 3$ эВ, $W_S = 1$ эВ) получим $c_S/c_F \approx 10^2$, т. е. концентрация дефектов Френкеля много меньше концентрации вакансий. При более низких температурах это отношение возрастает, т. е. концентрация дефектов Френкеля в равновесных условиях пренебрежимо мала по сравнению с концентрацией термических вакансий во всем диапазоне существования твердой фазы.

Полученные данные позволяют оценить изохорную теплоемкость C_v . Для этого воспользуемся соотношением Нернста–Линдемана для кристаллических твердых тел [42]:

$$C_v = C_p - AC_p^2 T, \quad (11)$$

где A — постоянная, которую можно оценить по формуле

$$A = \frac{1}{5C_{pm}T_m},$$

см. [42], где C_{pm} и T_m — теплоемкость в точке плавления и температура плавления. Выполним оценки для образца № 1, для которого $T_m = 3440$ К. Рост теплоемкости C_p перед плавлением и ее уменьшение после плавления затрудняют оценку в точке плавления. Для этой цели аппроксимируем $C_p(T)$ в жидкой фазе в интервале температур 3820–4890 К линейной зависимостью (в этом интервале резкое уменьшение C_p закончилось):

$$C_p [\text{Дж}/(\text{г} \cdot \text{К})] = 5.17 - 7.2 \cdot 10^{-4} T,$$

и в точке плавления получим $C_{pm} = 2.69$ Дж/(г · К), или $C_{pm} = 300$ Дж/(моль · К). Оценка C_v твердой фазы приведена в табл. 4, в которой дана также ее оценка по формуле (11) для жидкой фазы вблизи точки плавления. Основанием для оценки теплоемкости жидкой фазы по соотношению, полученному

для твердых кристаллических веществ, служит известная близость коэффициентов теплового расширения, теплоемкости, сжимаемости твердой и жидкой фаз кристаллических тел в области плавления.

Оценка электронной составляющей теплоемкости выполнена по формуле

$$C_{el} = \gamma T, \quad (12)$$

где $\gamma = 0.93 \cdot 10^{-3}$ Дж/(моль · К²) [43] — коэффициент электронной теплоемкости диборида, измеренный при температурах 1.5–18 К. Низкое значение C_{el} связано с низким значением γ у диборида циркония по сравнению с боридом других металлов IV–VI групп, для которых оно составляет единицы мДж/(моль · К²) [43].

5.4. Электросопротивление ZrB_2

Удельное электросопротивление двух типов образцов практически совпало в интервале температур 2000–4200 К (см. рис. 7). Ранее при исследовании образцов ZrC , HfC , TaC , полученных методом искрового плазменного спекания, было установлено, что зависимости $\rho(T)$ в твердой фазе имеют необычный колоколообразный вид с максимумом около $0.8T_m$ и имеют четко выраженный переход образца в жидкую фазу [11]. Было предложено объяснение: такой вид зависимости вызван дополнительным спеканием образцов в ходе эксперимента с импульсным нагревом. Для спеченных образцов ZrB_2 такие эффекты отсутствуют, область плавления ZrB_2 (для образца № 1), показанная на рис. 7 штриховыми линиями, не имеет особенностей. В области плавления сопротивление жидкой фазы составляет 192.6 мкОм · см, твердой фазы — 177.6 мкОм · см, их отношение — примерно 1.08.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом быстрого импульсного нагрева получены термограммы нагрева и измерены температурные зависимости энтальпии, теплоемкости и удельного электросопротивления диборида циркония в интервале температур 2500–5000 К. Исследования

выполнены на двух типах образцов: чистотой 98.7 с избытком бора ($B/Zr \approx 2.72$) и чистотой 99.9 стехиометрического состава ($B/Zr \approx 1.99$). Данные для жидкой фазы получены впервые. Исследование показало, что различия в составе и структуре образцов мало отразились на их свойствах. При допущении, что излучательная способность ZrB_2 равна 0.7, получена температура начала плавления диборида 3400–3440 К, что согласуется с фазовой диаграммой системы В–Zr. При плавлении образцов наблюдалось повышение температуры их поверхности на 270–350 К выше начала плавления, связанное с особенностью структуры керамики — большим размером зерна (до 20–30 мкм).

Измеренная теплота плавления ZrB_2 , равная 1.28 кДж/г (144 кДж/моль), выше оценочных данных, приведенных в справочниках. Результат измерения теплоемкости в твердой фазе (примерно 2 Дж/(г · К) при 3000 К) лежит выше справочных данных. В жидкой фазе теплоемкость ZrB_2 убывает от 2 до приблизительно 1.5 Дж/(г · К). Отмечен подъем теплоемкости перед плавлением и ее резкое снижение после плавления. Такой же эффект наблюдался ранее при быстром нагреве карбидов [11]. Предположительно, эти эффекты связаны с образованием дефектов Френкеля. Гипотеза об их определяющей роли была рассмотрена в работе [3] для объяснения эффектов, обнаруженных в экспериментах с металлами, — значительное повышение электронной эмиссии и теплоемкости перед самым плавлением быстро нагреваемого металла и быстрое уменьшение теплоемкости металла после завершения плавления.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант № 19-79-30086-П). Авторы благодарны Г.Е. Вальяно (ОИВТ РАН) за анализ микроструктуры и состава образцов.

ЛИТЕРАТУРА

1. E. Wuchina, E. Opila, M. Opeka, W. Fahrenholtz, and I. Talmy, *Electrochem. Soc. Interface* **16**, 30 (2007).
2. В. А. Палеха, А. А. Гетьман, *Бор. Свойства и применение в ядерной энергетике*, Военно-морской политехнический институт, Санкт-Петербург (2017).
3. С. В. Лебедев, А. И. Савватимский, *УФН* **144**, 215 (1984).
4. А. И. Савватимский, В. Н. Коробенко, *Высокотемпературные свойства металлов атомной энергетики (цирконий, гафний и железо при плавлении и в жидком состоянии)*, Издательский дом МЭИ, Москва (2012).
5. Г. И. Можаров, Дисс. ... канд. физ.-матем. наук, ИВТАН, Москва (1983).
6. В. Н. Коробенко, О. А. Полякова, А. И. Савватимский, *ТВТ* **43**, 39 (2005).
7. В. Я. Чеховской, В. Э. Пелецкий, *ТВТ* **47**, 371 (2009).
8. S. V. Onufriev, A. I. Savvatimskiy, and A. M. Kondratyev, *High Temp.-High Press.* **43**, 217 (2014).
9. V. N. Korobenko and A. I. Savvatimskiy, *J. Non-Crystalline Sol.* **205–208**, 672 (1996).
10. А. И. Савватимский, С. В. Онуфриев, *УФН* **190**, 1085 (2020).
11. А. И. Савватимский, С. В. Онуфриев, Н. М. Аристова, *УФН* **192**, 642 (2022).
12. Е. П. Симоненко, Дисс. ... д-ра хим. наук, ИОНХ РАН, Москва (2016).
13. А. И. Савватимский, С. В. Онуфриев, *Ядерная физика и инжиниринг* **6**, 622 (2015).
14. С. В. Онуфриев, *Изв. РАН, сер. Физическая* **82**, 430 (2018).
15. С. В. Онуфриев, А. И. Савватимский, *ТВТ* **56**, 704 (2018).
16. *Физические величины*. Справочник под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова, Энергоатомиздат, Москва (1991).
17. В. Н. Коробенко, Дисс. ... канд. физ.-матем. наук, ОИВТ РАН, Москва (2001).
18. А. Н. Винникова, В. А. Петров, А. Е. Шейндлин, *ТВТ* **8**, 1098 (1970).
19. T. R. Reithgoof and V. F. De Santis, in *Measurement of Thermal Radiation Properties of Solids*, ed. by J. C. Richmond and D. C. Wash, NASA, SP-31 (1963).
20. F. N. Morgan, *J. Appl. Phys.* **22**, 108 (1951).
21. Т. И. Серебрякова, Ю. Б. Падерно, Г. В. Самсонов, *Опт. и спектр.* **8**, 410 (1960).
22. В. С. Фоменко, Г. В. Самсонов, *Огнеупоры* **1**, 40 (1962).
23. Г. В. Самсонов, Т. И. Серебрякова, В. А. Неронов, *Бориды*, Атомиздат, Москва (1975).

24. Л. Н. Латыев, В. А. Петров, В. Я. Чеховской, Е. Н. Шестаков, *Излучательные свойства твердых материалов*, под ред. А. Е. Шейндлина, Энергия, Москва (1974).
25. H. L. Schick, *Thermodynamics of Certain Refractory Compounds*, Academic Press, New York–London, (1966), Vol. 1, 2.
26. M. W. Chase Jr., *NIST-JANAF Thermochemical Tables, Forth edition*, J. Phys. Chem. Ref. Data, Monogr. 9, 1951 (1998).
27. С. В. Онуфриев, А. И. Савватимский, ТВТ 61, 685 (2023).
28. J. W. Zimmermann, G. E. Hilmas, and W. G. Fahrenholtz, J. Am. Ceram. Soc. 91, 1405 (2008).
29. А. Уббелоде, *Плавление и кристаллическая структура*, Мир, Москва (1969).
30. S. V. Onufriev, A. I. Savvatimskiy, and S. A. Muboyadzhyan, Mater. Res. Express 6, 125554 (2019).
31. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений*, Наука, Москва (1966).
32. H. Okamoto, J. Phase Equilibria 14, 262 (1993).
33. С. В. Лебедев, А. И. Савватимский, Н. В. Степанова, ТВТ 25, 912 (1987).
34. A. I. Savvatimskiy, S. V. Onufriev, and S. A. Muboyadzhyan, J. Mater. Res. 32, 1287 (2017).
35. S. C. Middleburgh, D. C. Parfitt, P. R. Blair, and R. W. Grimesw, J. Am. Ceram. Soc. 94, 2225 (2011).
36. А. И. Савватимский, *Плавление графита и свойства жидкого углерода*, Физматкнига, Москва (2014).
37. A. I. Savvatimskiy, *Carbon at High Temperatures*. Springer Ser. in Mater. Sci. 134 (2015).
38. T. A. Mellan, A. I. Duff, and M. W. Finnis, Phys. Rev. B 98, 174116 (2018).
39. Я. И. Френкель, *Кинетическая теория жидкостей*, Наука, Ленинград (1975).
40. Л. П. Филиппов, *Измерение тепловых свойств твердых и жидких металлов при высоких температурах*, Изд-во МГУ, Москва (1967), с. 268.
41. Ч. Киттель, *Введение в физику твердого тела*, Наука, Москва (1978).
42. Д. Ш. Цагарейшвили, *Методы расчета термических и упругих свойств кристаллических неорганических веществ*, Мецниереба, Тбилиси (1977), с. 92.
43. Y. S. Tyan, L. E. Toth, and Y. A. Chang, J. Phys. Chem. Solids 30, 785 (1969).

ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД И КРОССОВЕРЫ НА КАИРСКОЙ РЕШЕТКЕ ДИПОЛЕЙ ИЗИНГА

Ю. А. Шевченко ^{a,b*}, Э. А. Лобанова ^{a,b}, И. В. Трефилов ^{a,b}, В. С. Стронгин ^{a,b},
П. А. Овчинников ^{a,b}, К. В. Неведев ^{a,b**}

^a Департамент теоретической физики и интеллектуальных технологий
Института наукоемких технологий и передовых материалов
Дальневосточного федерального университета
690922, Владивосток, Россия

^b Институт прикладной математики Дальневосточного отделения Российской академии наук
690041, Владивосток, Россия

Поступила в редакцию 31 октября 2023 г.,
после переработки 16 июля 2024 г.
Принята к публикации 19 июля 2024 г.

Методом численных расчетов Монте-Карло исследуется термодинамика систем конечного числа спинов Изинга на решетке каирского спинового льда в модели дальнедействующего диполь-дипольного взаимодействия ограниченного радиуса. Каирская решетка состоит из вершин, объединяющих три либо четыре ближайших соседних спина. В модель добавлен параметр, варьирование которого позволяет без изменения геометрии каирской решетки менять баланс энергий взаимодействия между вершинами с тремя и четырьмя ближайшими спинами. Показано, что вариативный параметр влияет на характер процесса смены фаз от ближнего порядка к беспорядку. При низких значениях этого параметра переход является кроссовером, а при его высоких значениях — фазовым переходом второго рода.

DOI: 10.31857/S0044451024110087

1. ВВЕДЕНИЕ

Искусственный спиновый лед — это группа метаматериалов, состоящих из ферромагнитных наноструктур, расположенных на немагнитной подложке в виде повторяющейся решетки таким образом, что образующаяся структура проявляет коллективные магнитные свойства, которыми не обладает отдельная частица.

Геометрия решетки может накладывать ограничения на конфигурации, из-за которых не все парные магнитные взаимодействия между островками могут быть одновременно удовлетворены. Это явление называется фрустрацией, а системы — фрустрированными. Первой экспериментально созданной структурой был квадратный спиновый лед [1–3], целью которого была имитация магнитного поведения атомной решетки пироксенов $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ и $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [4] на плоскости. Экспериментально на-

блюдают за намагниченностью наноразмерных островков на плоскости проще, чем за значением спинов в объемной атомной решетке материала. Дополнительно появилась возможность тонкой настройки геометрии решетки искусственного спинового льда и формы островка. Это позволяет подбирать удобные для эксперимента значения физических параметров, таких как магнитная восприимчивость, анизотропия, энергетические барьеры между похожими энергетическими конфигурациями и т. д. Позже были предложены новые геометрии двумерных спиновых льдов, не имеющие аналогов среди существующих материалов естественного происхождения.

Островки являются объемными объектами фиксированной высоты и с плоской поверхностью. В плоскости XY островок имеет овальную форму, что приводит к магнитной анизотропии формы вдоль длинной оси, делая поведение магнитного момента подобным изинговскому. Островок является односторонним, и в то же время магнитное поле, наводимое соседними островками, является достаточным для изменения ориентации магнитного момента. В экспериментальных работах геометрия и свой-

* E-mail: shevchenko.yuriy.a@gmail.com

** E-mail: nefedev.kv@dvfu.ru

ства наностроек подобраны таким образом, чтобы имитировать поведение спина Изинга. В рамках дипольной модели магнитное состояние наностройки может быть представлено как однодоменный наноразмерный ферромагнетик, способный взаимодействовать с другими магнитными островками посредством диполь-дипольного обмена. Ранее было показано, что модель точечных диполей хорошо описывает поведение термически активных искусственных наносистем из островков пермаллоя, например, кагоме [5], квадратного [6] и каирского [7] спиновых льдов. Далее в работе термины «спин», «диполь», и «магнитный момент» (или просто «момент») будут использоваться как синонимы.

Обычно в моделях спинового льда наностройки лежат на ребрах решетки. Вершиной называется узел решетки, расположенный на пересечении ребер. Удобно рассматривать магнитную конфигурацию системы в контексте вершин, а именно прилегающих к ним наностроек. Для решетки квадратного спинового льда в конфигурациях с минимальной энергией все вершины подчиняются правилу льда: два макроспина намагничены по направлению к вершине, два — от вершины. Отдельным классом являются вершинно-фрустрированные решетки [8, 9], в которых в силу топологических ограничений невозможно сделать так, чтобы все вершины удовлетворяли правилу льда. В результате, такие вершинно-неустойчивые структуры всегда содержат возбуждения. К ним относятся производные структуры спинового льда, такие как Brickwork [10, 11], Shakti [3, 12, 13], Tetris [14], Santa Fe [15], Saint George и другие [16], например Кагоме [3, 17–21] и Каирская [7, 22–25] (рис. 1).

Некоторые теоретические работы по спинового льду рассматривают взаимодействия только между ближайшими соседями [13, 17–19, 26], при этом для упрощения расчетов дальнедействующая энергия принимается за нуль, что не всегда оправдано. Иной подход — когда авторы представляют вершинные взаимодействия в виде модели «гантелей» или «зарядов», которые также являются короткодействующими. Диполь-дипольное взаимодействие зависит от расстояния r между диполями и в некоторых случаях может приводить к дальнедействующему упорядочению [3, 27]. Это было показано для трехмерной тетраэдрической решетки пирохлора [28, 29], где число соседей вокруг отдельно взятого диполя изменяется пропорционально r^3 , а дипольная энергия одной пары — пропорционально r^{-3} . Таким образом, суммарная энергия, наведенная дальними соседями, имеет тот же порядок и может кон-

курировать с энергией ближайших соседей. Число соседей в двумерной решетке растет гораздо медленнее, пропорционально r^2 .

2. ФИЗИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Мы рассматриваем систему магнитных моментов (точечных диполей) на каирской решетке [7, 22–25]. Схема изображена на рис. 1. Решетка состоит из неправильных пятиугольников с четырьмя сторонами длины a и одной стороной длины b . Два угла пятиугольника являются прямыми. Решетка имеет параметр периодичности $k = \sqrt{8a^2 - b^2} + b$, одинаковый по обоим осям плоскости XY . Система состоит из $N = 20L^2$ одинаковых спинов, где L — линейный размер, либо количество элементарных ячеек вдоль одной из осей. Одна элементарная ячейка состоит из 20 спинов.

Ферромагнитные наностройки расположены на всех ребрах решетки по одному островку на ребро. Островки имеют овальную форму и объем $300 \times 100 \times 2.6 \text{ нм}^3$. Длинная сторона овала направлена вдоль ребра решетки. Наностройки состоят из пермаллоя и не имеют кристаллографической оси анизотропии. На рис. 1 наностройки изображены серыми овалами на нескольких ребрах в качестве примера.

Как показано в работе [1], островки всегда являются однодоменными, благодаря небольшому раз-

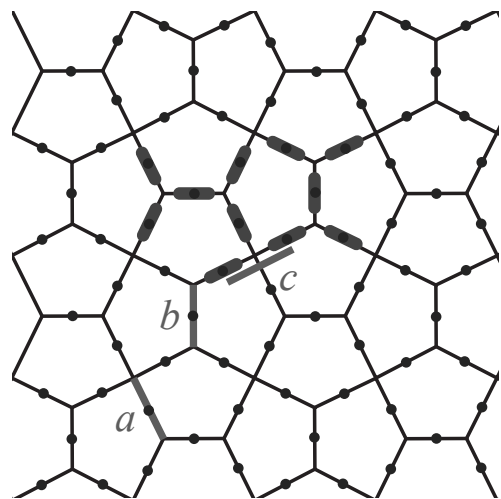


Рис. 1. Схематичное изображение каирской решетки. Синие точки — расположение точечных диполей в исследуемой модели, серые овалы — пример расположения наностроек в соответствующих работах [7, 30, 31]. Наностройки расположены на всех ребрах решетки, на рисунке приведена часть из них. Красные (жирные) линии a , b , c — параметры каирской решетки

меру и большому расстоянию между островками. Анизотропия формы обеспечивает намагниченность вдоль длинной оси. В нашей модели каждый наноостровок рассматривается как точечный магнитный диполь, подобный изинговскому, расположенный в геометрическом центре наноостровка. Под «подобным изинговскому» подразумевается возможность диполя намагничиваться только вдоль легкой оси анизотропии наноостровка.

Неравновесные термодинамические эффекты, такие как коэрцитивная сила островка и эффекты Стонера–Вольфарта [32], не рассматриваются в этой работе. Подразумевается, что все релаксационные неравновесные процессы завершены во время численных экспериментов. Оценки времени суперпарамагнитного перехода приведены в приложении.

Энергия взаимодействия между диполями i и j определяется как

$$E_{ij,dip} = s_i s_j \left(\frac{(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j)}{|\mathbf{r}_{ij}|^3} - 3 \frac{(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{|\mathbf{r}_{ij}|^5} \right), \quad (1)$$

где все векторные переменные приведены к единичной длине, а размерные коэффициенты вынесены в параметр D уравнения (2); $\mathbf{m}_i$ — момент единичной длины, направление которого для каждого диполя определено геометрией решетки. Момент имеет только два возможных противоположных направления, которые определяются дискретными переменными Изинга $s_i = \pm 1$; $\mathbf{r}_{ij}$ — радиус-вектор, нормированный на параметр решетки a так, чтобы для двух точек i и j , находящихся друг от друга на расстоянии a , выполнялось условие $|\mathbf{r}_{ij}| = 1$.

По аналогии с [7, 30, 31], в данной работе используются фиксированные значения параметров решетки $a = 472$ нм, $b = 344$ нм. Для каирской решетки есть два вида вершин, расположенных на пересечении трех, либо четырех ребер, что формирует спиновые структуры «креста» и «треугольника», подобные решетке квадратного и гексагонального спинового льда соответственно [27]. Это расширяет многообразие наблюдаемых явлений рассматриваемой модели. Все парные взаимодействия между спинами в узле решетки не могут быть одновременно удовлетворены, что приводит к эффектам фрустраций [3]. Положение островков вдоль ребер длины a задается параметром c . Увеличение c приводит к увеличению энергий парных взаимодействий в треугольных узлах решетки и уменьшению в крестах и наоборот. В случае, когда $c/a = 1$, спины расположены в середине ребра длины a . Положение спинов

на ребре b всегда фиксировано в середине. В работах [7, 30, 31] рассматривается только параметр $c = 376$ нм, хотя он может варьироваться в пределах $300 \text{ нм} < c < 644 \text{ нм}$. В крайних случаях островки будут располагаться друг к другу вплотную, что может привести к нарушению симметрии магнитных конфигураций, которое описано в [33]. Здесь мы рассмотрим влияние параметра c на термодинамические характеристики каирского дипольного спинового льда в интервале значений от $376 \text{ нм} \approx 0.797a$ до $553 \text{ нм} \approx 1.129a$.

В работе [30] было показано, что низкотемпературный фазовый переход от дальнего порядка к порядку в подрешетках происходит благодаря диполь-дипольному взаимодействию только между парами спинов, направленными вдоль вертикальных либо горизонтальных (в плоскости решетки) ребер (далее — горизонтальные и вертикальные спины). Такие ребра являются основанием пятиугольников и имеют длину b на рис. 1. Указанные спины удалены друг от друга на расстояние $d = \sqrt{2}k/2 \approx 2.448a$. Ближайшие горизонтально и вертикально направленные спины напрямую не взаимодействуют друг с другом, $E_{ij,dip} = 0$. В этой работе мы не учитываем энергии парных взаимодействий, для которых $|\mathbf{r}_{ij}| > d/a$.

В модель добавлено слабое вертикальное магнитное поле $\mathbf{H} = \{0, H_y\}$, где $H_y = 1.5 \cdot 10^{-7}$, без которого невозможно вычисление магнитной восприимчивости. Энергия системы определяется как

$$E = D \sum_{[i,j]} E_{ij,dip} - \frac{\mu_0 \mu}{k_B} \sum_i s_i (\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{H}), \quad (2)$$

где сумма $[i, j]$ взята по всем парам диполей, удаленных друг от друга на расстояние, не превышающее d . Константа H_y представлена в безразмерных величинах по аналогии с $\mathbf{m}_{y,i}$;

$$D = \mu_0 \mu^2 a^{-3} k_B^{-1}$$

— размерный коэффициент, μ_0 — магнитная постоянная, μ — намагниченность насыщения наноостровка, a — параметр решетки, описанный выше, k_B — постоянная Больцмана. Все результаты в данной работе будут представлены в единицах энергий D и единицах длины a . Представленные в единицах a значения округлены до трех знаков после запятой. Для перехода к размерной системе исчисления необходимо определить параметры μ и a с учетом геометрии магнитной системы.

В нашей модели были использованы периодические граничные условия по осям [01] и [10] с целью избавления от эффекта границ.

Для вычисления термодинамических средних значений используется канонический односпиновый алгоритм Метрополиса [34–36]. Несмотря на его простоту, он все ещё остается популярным методом статистического исследования в совершенно разных направлениях науки. Для каждой рассматриваемой в работе температуры использовалось 10^5 стабилизационных Монте-Карло шагов и 10^6 шагов для вычисления термодинамических средних. Предварительная температурная стабилизация исследуемой системы позволяет достичь термодинамического равновесия на момент начала сбора статистики. Под шагом Монте-Карло подразумевается N попыток Монте-Карло сменить знак случайного s_i . Все вычисления начинаются с одного из основных состояний решетки. Под основным состоянием понимается такой набор значений s_i , при которых можно получить минимально возможное E . При этом минимальному значению E может соответствовать несколько конфигураций s_i . Основное состояние является наиболее вероятным при $T \rightarrow 0$. Термализация системы при повышении T менее требовательна к вычислительным ресурсам, чем при понижении T .

Конфигурации основных состояний для рассматриваемой системы приведены в работах [30, 31]. Все основные состояния для модели дальнего действия делятся на две группы: с вертикально либо горизонтально направленным вектором намагниченности. Конфигурации этих групп разделены друг от друга энергетическим барьером, который не преодолим для алгоритма односпинового Метрополиса. В данной статье мы рассматриваем только группу состояний с вертикальным направлением вектора намагниченности в основном состоянии, подразумевая, что поведение другой группы идентично, так как решетка симметрична при вращении на 90° . По этой же причине в модель добавлено только магнитное поле, направленное вдоль оси Y .

3. ТЕПЛОЕМКОСТЬ КАИРСКОЙ РЕШЕТКИ

На рис. 2 показана теплоемкость каирской решетки с $N = 9860$ диполей, полученная методом Метрополиса. Теплоемкость получена как

$$C(T) = \frac{\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2}{k_B T^2 N}. \quad (3)$$

Скобки $\langle \dots \rangle$ обозначают термодинамическое усреднение по Гиббсу для заданной T . Данные показаны при $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$ разными линиями. На этом и последующих рисунках точки отображают значения по оси абсцисс, для которых выполнялись Монте-Карло вычисления. Точки последо-

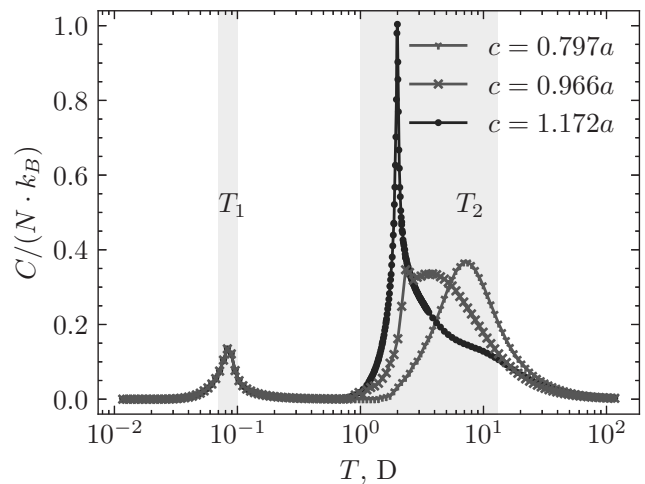


Рис. 2. Теплоемкость $N = 9860$ спинов каирского спинового льда для параметров решетки $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$. Серым цветом отмечены температурные зоны T_1 и T_2 , при которых теплоемкость испытывает низкотемпературный и высокотемпературный максимум, соответственно. Данные рассчитаны методом Метрополиса

вательно соединены линиями для улучшения визуального восприятия. Для теплоемкости $c = 0.797a$ в температурном интервале $1D < T < 3D$ алгоритм Метрополиса испытывает известную проблему критического замедления [37]. Эта проблема решена путем запуска алгоритма из различных случайных высокоэнергетических конфигураций и усреднения значений теплоемкости между запусками в заданной области температур.

Теплоемкость имеет два выраженных пика при температурах, обозначенных далее как T_1 и T_2 . Низкотемпературный пик $C(T_1)$ не зависит от c . Как показано в [30], он обусловлен исключительно парными взаимодействиями между вертикальными либо горизонтальными спинами, удаленными на расстояние d , которое зависит только от параметров решетки a и b , и не зависит от c .

Высокотемпературные максимумы теплоемкости имеют место в температурном интервале $1D < T < 12D$. В зависимости от параметра c меняется их форма от гладкого ($c = 0.797a$) до острого ($c = 1.172a$). При средних значениях ($c = 0.966a$) высокотемпературный пик $C(T_2)$ имеет сразу два явных перегиба гладкой и острой формы. Далее мы рассмотрим причины такого поведения, покажем зависимость высоты и температуры высокотемпературного пика от параметра c , проведем корреляционный анализ конфигураций в данных температурных зонах и покажем размерную зависимость высоты и температуры обоих пиков при разных c .

4. РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ

Согласно классификации фазовых переходов, в том числе Эренфеста [38], скачкообразное поведение производных статистической суммы свидетельствует о наличии фазового перехода при $N \rightarrow \infty$. Порядок производной определяет род фазового перехода. Точка скачка является (критической) температурой смены фаз. Но существуют случаи, когда фазовый переход происходит не в конкретной температурной точке, а в температурной зоне. Известные термодинамические функции не испытывают скачков, но это не значит, что таких функций не существует. Для обозначения этого эффекта мы используем общепринятый термин кроссовер (см. [39] и § 3.11 в работе [40]).

Для однозначной классификации и объяснения наблюдаемых на рис. 2 пиков теплоемкости необходимо рассмотреть модель с $N \rightarrow \infty$ взаимодействующими спинами. Решение такой задачи невозможно при использовании алгоритмов Метрополиса, так как они работают с системами конечного размера. Мы рассмотрим изменение пиков теплоемкости и критических температур при разных значениях N и экстраполируем поведение на $N \rightarrow \infty$.

На рис. 3 показаны значения $C(T_1)$ (верхний рисунок) и температуры T_1 (нижний рисунок), при которых низкотемпературный пик теплоемкости имеет максимальное значение, в зависимости от N в ин-

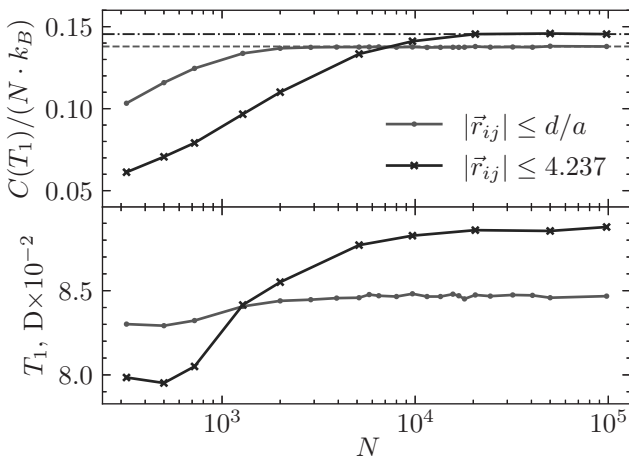


Рис. 3. Значения теплоемкости (верхний рисунок) и температуры (нижний рисунок), при которых наблюдается низкотемпературный пик теплоемкости, в зависимости от числа частиц N . Данные приведены для модели с максимальным радиусом взаимодействия d (красная линия с круглыми точками) и модели с радиусом $4.237a$ [30] (синяя линия с крестами). Для обеих моделей штриховой и штрихпунктирной линиями показаны значения пиков теплоемкости $C(T_1)/N = 0.1379$ и 0.1455 при максимальном N соответственно

тервале $320 < N < 98000$ спинов. Ввиду дискретного характера вычислений по температуре функции теплоемкости аппроксимировались кривой 15-го порядка с помощью метода наименьших квадратов с целью получения точки максимума теплоемкости с высокой точностью. На рисунке приведены данные для модели с ограниченным радиусом взаимодействия $|\mathbf{r}_{ij}| \leq d$ (красная линия с круглыми точками). Для сравнения на рисунок добавлены данные из работы [30] с увеличенным радиусом взаимодействия $|\mathbf{r}_{ij}| \leq 4.237a$ (синяя линия с крестиками). В работе [30] опубликованы данные для $N < 9680$, для точек представлена огибающая логарифмическая функция, расходящаяся при $N \rightarrow \infty$. В данной работе благодаря доступным вычислительным мощностям размер системы увеличен в 10 раз и результаты расчетов представлены до $N < 98000$.

В данном интервале обе функции $C(T_1)/N$ выходят на плато, теплоемкость при $N = 98000$ имеет значения $C(T_1)/N = 0.1379$ и 0.1455 для красной и синей линий соответственно. Эти величины обозначены штриховой и штрихпунктирной линиями на рис. 3. Поведение $C(T_1)/N$ для обоих радиусов взаимодействия качественно совпадает. Но для $|\mathbf{r}_{ij}| \leq d$ функция $C(T_1)/N$ выходит на плато при меньшем N , имеет меньшее значение и более низкую температуру T_1 .

Температура T_1 тоже выходит на плато при тех же значениях N , что и $C(T_1)$. Как было отмечено в предыдущем разделе и в статье [30], низкотемпературный пик теплоемкости обусловлен исключительно парными взаимодействиями между вертикальными либо горизонтальными спинами, взаимодействие между которыми имеет схожий характер с моделью Изинга на простой квадратной решетке. Вариант с $|\mathbf{r}_{ij}| \leq d$ подобен ферромагнитной модели Изинга с ближайшими четырьмя соседями. Вариант $|\mathbf{r}_{ij}| \leq 4.237a$ учитывает и более дальние пары, не все из которых ферромагнитные. Рисунок 3 показывает, что учет более дальних взаимодействий увеличивает длину межспиновых корреляций, влияет на абсолютное значение теплоемкости в критической точке и критическую температуру, но в целом не меняет характера фазового перехода.

На рис. 4 приведена зависимость критических температур и значений низкотемпературного пика магнитной восприимчивости от N . Восприимчивость определяется как

$$\chi(T) = \frac{\langle |\mathbf{m}|^2 \rangle - \langle |\mathbf{m}| \rangle^2}{k_B T N}, \quad (4)$$

где вектор намагниченности определяется как сум-

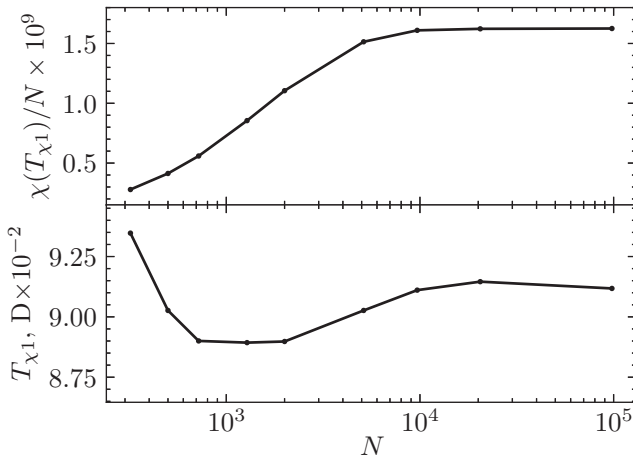


Рис. 4. Величина (верхний рисунок) низкотемпературного пика магнитной восприимчивости χ и его температурное положение (нижний рисунок) в зависимости от числа частиц N

марный вектор всех магнитных моментов системы:

$$|\mathbf{m}| = \left| \sum_j^N s_j \mathbf{m}_j \right|. \quad (5)$$

Пример $\chi(T)$ для $c = 0.797a$ опубликован в работе [30] (рис. 7). Для других рассматриваемых в данной работе значений c восприимчивость $\chi(T)$ не имеет качественных отличий. Высокое значение $T_{\chi 1}$ при малых N мы связываем с эффектом конечного размера, так как в низкотемпературном переходе участвует $1/5$ всех спинов системы [30].

Функция $\chi(T_{\chi 1})/N$ от N также выходит на плато при $N > 9680$. Но пик приходится на более высокие температуры, чем пик теплоемкости. Повышение температуры $T_{\chi 1}$ при низких значениях N обусловлено размерным эффектом.

В результате анализа магнитных конфигураций в области низкотемпературного пика установлено [30], что причиной пика является разрушение порядка между спинами, расположенными на вертикальных и горизонтальных ребрах длины b . Параметр c не влияет на положение этих спинов на ребрах решетки и не влияет на параметр решетки k . Другие спины в основном состоянии упорядочены таким образом, что для любого горизонтального либо вертикального спина i выполняется условие

$$\sum_j E_{ij, dip} = 0,$$

где в j учитываются только спины, лежащие на ребрах a . Значение любого вертикального либо горизонтального спина влияет только на энергии парных взаимодействий таких же спинов, и это упорядочение разрушается при T_1 .

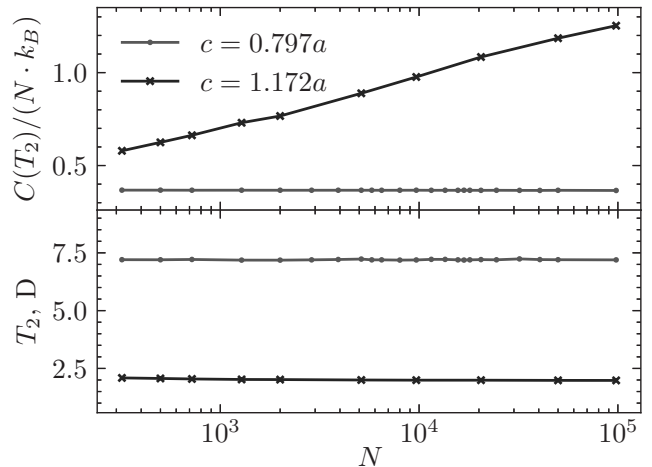


Рис. 5. Значения теплоемкости (верхний рисунок) и температуры (нижний рисунок), при которых наблюдается высокотемпературный пик теплоемкости, в зависимости от числа частиц N при параметре решетки $c = 0.797a$ и $c = 1.172a$

На рис. 5 приведен график $C(T_2)$ (верхний рисунок) и температура T_2 (нижний рисунок) в зависимости от N , меняющегося в интервале $320 < N < 98000$ спинов. Данные приведены для параметров решетки $c = 0.797a$ (красная линия с круглыми точками) и $c = 1.172a$ (синяя линия с крестами). В первом случае значение теплоемкости в пике не зависит от N и имеет значение

$$C(T_2)/N = 0.366 \pm 0.001.$$

Во втором случае $C(T_2)/N$ имеет логарифмическую зависимость от N , и в пределе при $N \rightarrow \infty$ может расходиться.

5. ЭФФЕКТ ПАРАМЕТРА РЕШЕТКИ

Как было описано выше, параметр c влияет на расстояние между двумя ближайшими коллинеарными спинами. Увеличение c приводит к увеличению энергий парных взаимодействий в треугольных узлах решетки и уменьшению в крестах. Само по себе разрушение магнитного порядка внутри крестов и треугольников требует энергетических затрат и должно приводить к двум пикам теплоемкости при температурах, пропорциональных энергиям парных взаимодействий внутри крестов и треугольников соответственно.

Как видно на рис. 2, при низких значениях c теплоемкость имеет один гладкий высокотемпературный пик. По мере увеличения c , при достижении критического значения, равного примерно $0.966a$ (456 нм), в теплоемкости появляется второй острый высокотемпературный пик, который виден на зеле-

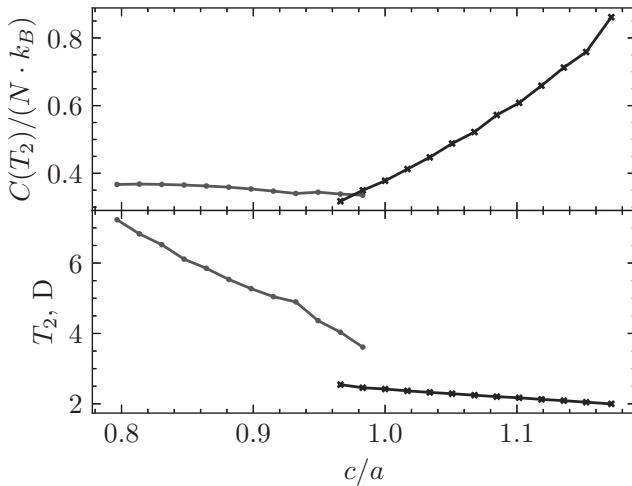


Рис. 6. Зависимость теплоемкости в высокотемпературном пике (верхний рисунок) и температуры этого пика от параметра решетки c в интервале от $0.797a$ до $1.172a$ при $N = 5120$. Красной линией с круглыми точками обозначены данные для пика-кроссовера, синей линией с крестами обозначен пик, разделяющий термодинамические фазы

ной линии с крестами на рис. 2. При дальнейшем увеличении c высота острого пика увеличивается, и гладкого — уменьшается до состояния, когда его невозможно однозначно определить.

На рис. 6 изображены значения теплоемкости и температуры двух описанных высокотемпературных пиков. Линии отмечены разными цветами, а в районе $c = 0.966a$ присутствуют одновременно два пика.

Введем параметр корреляций, который учитывает только знак перед энергией парных взаимодействий, абсолютное значение которого не зависит от параметра c :

$$G = \sum_{[i,j]} \frac{E_{i,j}}{|E_{i,j}|} / n. \quad (6)$$

Сумма $[i,j]$ учитывает только уникальные парные взаимодействия, для которых необходимо выполнить корреляционный анализ, n — количество таких пар. Определим, что параметр G_t учитывает только парные взаимодействия во всех треугольниках. Не существует такой конфигурации треугольника, в котором для всех парных взаимодействий будет $E_{ij} < 0$. В конфигурации с минимальной энергией для двух пар будет $E_{ij} < 0$ и для одной пары $E_{ij} > 0$. В конфигурации с максимальной энергией все три пары будут с $E_{ij} > 0$. Значения параметра G_t для отдельно взятого треугольника будут варьироваться от $-1/3$ в конфигурации с минимальной энергией до 1 в конфигурации с максимальной энергией.

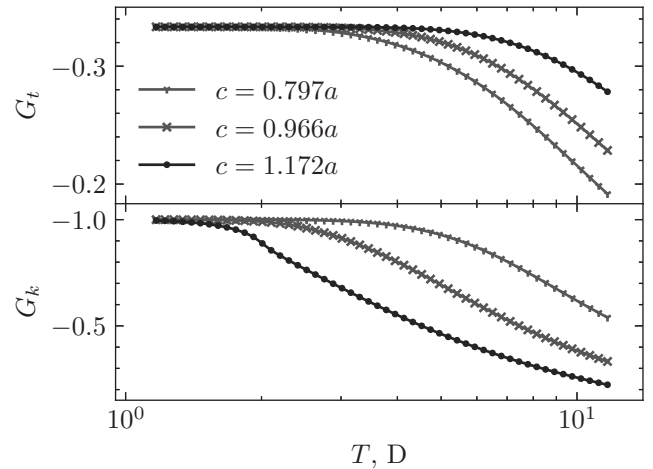


Рис. 7. Температурная зависимость корреляций внутри треугольников G_t и крестов G_k для параметров решетки $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$ и $N = 5120$ спинов

Определенный по аналогии с G_t параметр G_k учитывает только ближайшие парные взаимодействия во всех крестах, удаленных на расстояние $\sqrt{2}c$. Для креста возможно создать такую конфигурацию, в которой все четыре парных взаимодействия будут с $E_{ij} < 0$, поэтому значения параметра G_k для отдельно взятого креста будут варьироваться от -1 в конфигурации с минимальной энергией до 1 в конфигурации с максимальной энергией.

На рис. 7 представлены термодинамически усредненные по Гиббсу параметры G_t (верхняя половина) и G_k (нижняя половина) как функция температуры для параметров решетки $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$ и $N = 5120$ спинов. Представлены данные для температур, при которых теплоемкость испытывает высокотемпературный пик. Изменение значения $G(T)$ свидетельствует о влиянии соответствующей температуры на магнитное упорядочение крестов либо треугольников.

Для параметра $c = 0.797a$ уровень корреляций в треугольниках и крестах снижается при близких друг к другу температурах. Поскольку все спины, лежащие на ребрах длины a , одновременно присутствуют и в треугольниках, и в крестах, то случайные температурные флуктуации отдельных спинов решетки приводят к исчезновению магнитного упорядочения одновременно в смежных с данными спинами крестах и в треугольниках, так как энергии ближайших парных взаимодействий в крестах и треугольниках примерно равны по модулю. Такое поведение соответствует определению кроссовера, когда смена фаз от замороженного порядка к беспорядку приходится на температурную зону, а не на особую температурную точку.

При увеличении параметра s уменьшается расстояние между спинами треугольников, вследствие чего увеличивается модуль энергий парных взаимодействий внутри треугольников, что приводит к повышению температуры, необходимой для разрушения порядка. С другой стороны, увеличение параметра s приводит к увеличению расстояния между спинами крестов. Как следствие, при повышении s температура перегиба G_t повышается, а G_k понижается. При параметре $s = 1.172a$ разница в температурах становится существенной. Параметр G_k для $s = 1.172a$ испытывает перегиб в области высокотемпературного пика теплоемкости из рис. 2. В этом интервале температур параметр G_t принимает минимально возможное значение. Это значит, что магнитное упорядочение пропадает в крестах, но сохраняется во всех треугольниках. Этого можно достичь, только если температурные флуктуации будут приводить к перемагничиванию всего треугольника вместо отдельно взятого диполя. Перемагничивание треугольника имеет более высокий энергетический барьер по сравнению с перемагничиванием одного диполя. Следствием чего является острый характер высокотемпературного пика на рис. 2.

Отметим, как параметр s влияет на парные энергетические взаимодействия между спинами треугольника. Уменьшение s двигает два из трех спинов вдоль ребра решетки длины a . Третий спин треугольника остается на месте, поэтому энергии парных взаимодействий в треугольнике изменяются в разных пропорциях. Углы треугольника не равны между собой. Парные взаимодействия внутри треугольника разрушаются при разных температурах, поэтому падение $G_t(T)$ на рис. 7 не приводит к острому пику теплоемкости при соответствующей температуре. В отличие от треугольника ребра креста расположены под прямым углом друг к другу, параметр s одинаково влияет на все спины креста, все четыре энергии парных взаимодействий внутри креста равны по модулю. Это дополнительно объясняет острый характер соответствующего пика теплоемкости.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы исследовали температурное поведение теплоемкости модели подобных изинговским диполей на каирской решетке. Согласно универсальной классификации Эренфеста, фазовый переход второго рода сопровождается расходимостью вторых производных внутренних параметров системы при стремлении к бесконечности числе частиц в системе. Для рассматриваемой решетки конечного размера

наблюдаются два пика теплоемкости при постановке численных экспериментов алгоритмом Метрополиса. В работе [30] было показано, что низкотемпературный пик теплоемкости не имеет тенденции к расходимости и обусловлен исключительно переходом порядок–беспорядок между спинами, связанными только дальним диполь–дипольным взаимодействием. Другими словами, низкотемпературный пик обусловлен исчезновением/возникновением дальнего упорядочения.

Согласно классификации фазовых переходов (см. § 3 в работе [41]), системы одного класса универсальности обладают подобным набором фаз, а процесс смены фаз можно описать универсальными критическими индексами. Класс универсальности нашей системы определяют два параметра: размерность пространства и число степеней свободы одного спина. Мы показали, что параметр решетки s , не определяющий класс универсальности, при других неизменных параметрах системы может менять характер фазового перехода в данной классификации.

При низком значении параметра s система испытывает «фазовый» переход, при котором пропадает ближнее магнитное упорядочение внутри крестов и треугольников в температурной зоне, а не при определенной критической температуре. Это приводит к отсутствию сингулярности теплоемкости во всем температурном интервале при $N \rightarrow \infty$, а такой переход называется кроссовером [39, 40]. Подобный эффект происходит, например, в ультрахолодных газах Ферми, где при изменении силы взаимодействия система переходит из состояния конденсата Бозе–Эйнштейна в состояние Бардина–Купера–Шриффера [42]. Другим примером являются магнитные сплавы с магнитными примесями, в которых исследуется эффект Кондо [43], где обычная жидкая фаза Ферми (слабо связанная с примесями) переходит в «локальную» жидкую фазу Ферми, в которой электроны проводимости образуют сильно связанные спин-синглеты с электронами примесей, без наличия явного фазового перехода.

При высоком значении параметра s система испытывает фазовый переход «ближний порядок–беспорядок» в зоне высоких температур. Он характеризуется расхождением теплоемкости в определенной температурной точке при $N \rightarrow \infty$ и обусловлен исчезновением порядка в крестах.

Таким образом, мы показали существование магнитной системы, в которой изменение одного параметра решетки приводит к качественному изменению ее термодинамического поведения.

Благодарности. Авторы выражают благодарность дирекции Института наукоемких технологий и передовых материалов ДВФУ за неоценимый вклад в «развитие» суперкомпьютерного направления на Дальнем Востоке.

Финансирование. Представленные в работе результаты были получены на суперкомпьютерном вычислительном кластере Института прикладной математики ДВО РАН. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-22-00328, <https://rscf.ru/project/23-22-00328/>.

ПРИЛОЖЕНИЕ

В доказательство возможности экспериментального воспроизведения показанных в данной работе эффектов покажем, что среднее время релаксации наночастицы с рассматриваемой геометрией находится в типичных для эксперимента пределах наблюдения. Время магнитной релаксации τ суперпарамагнетика следует закону Нееля – Аррениуса

$$\tau^{-1} = f_0 \exp(-\Delta U/k_B T), \quad (7)$$

где k_B — постоянная Больцмана, T — температура, ΔU , f_0 — предэкспоненциальный множитель или частотный фактор, который для наночастиц пермаллоя составляет 10^{12} с^{-1} [5, 44, 45]. Поведение наночастицы, подобное изинговскому, достигается за счет анизотропии формы при условии отсутствия других источников магнитной анизотропии (пермаллой).

Рассмотрим время релаксации отдельно взятой наночастицы без влияния внешних полей. Тогда $\Delta U = KV$, где V — объем частицы, K — плотность энергии магнитной анизотропии. Анизотропия формы вдоль оси $d \in \{x, y, z\}$ определяется как [46]

$$K_d = \frac{1}{2} \mu_0 N_d M^2,$$

где μ_0 — магнитная постоянная, M — остаточная намагниченность материала, N — размагничивающий фактор.

При комнатной температуре $T = 290 \text{ К}$ для объемного пермаллоя $M = 800 \text{ кА/м}$ [7], но для пленки толщиной 2.6 нм $M = 100 \text{ кА/м}$ [5].

Методика определения N_d приведена в работе [47] для эллипсоидов и в [48] уточнена для призм. $N_d = 0.14036$ по направлению вдоль длинной стороны призмы.

Величина энергетического барьера, вызванного анизотропией формы без влияния других сил, составит $\Delta U = 6.87 \cdot 10^{-20} \text{ Дж}$, или 0.43 эВ , что соответствует $\tau = 2.89 \cdot 10^{-5} \text{ с}$.

Учтем среднюю энергию диполь-дипольного взаимодействия из результатов моделирования Монте-Карло:

$$\Delta U = KV + \langle E \rangle / N,$$

где E определена формулой (2), а значение $\langle E \rangle$ взято по модулю. Получим $\langle E \rangle / N = 8.09 \cdot 10^{-21} \text{ Дж}$, или 0.05 эВ , что соответствует $\tau = 2.18 \cdot 10^{-4} \text{ с}$.

При понижении T увеличивается M пермаллоя и, как следствие, увеличивается ΔU , что приведет к стремительному увеличению τ . Оценка зависимости M от T для наночастицы является предметом дополнительных исследований и выходит за рамки данной статьи. Для примера при $T = 250 \text{ К}$ и $M = 120 \text{ кА/м}$ получим $\tau = 38 \text{ с}$.

Представленные оценки имеют порядки секунд и соответствуют эксперименту [49] (рис. 4b).

ЛИТЕРАТУРА

1. R. F. Wang, C. Nisoli, R. S. Freitas et al., *Nature* **439**, 303 (2006).
2. C. Nisoli, R. Moessner, P. Schiffer, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 1473 (2013)
3. Y. Shevchenko, A. Makarov, and K. Nefedev, *Phys. Lett. A* **381**, 428 (2017).
4. Y. Shevchenko, K. Nefedev, and Y. Okabe, *Phys. Rev. E* **95**, 052132 (2017).
5. A. Farhan, P. M. Derlet, A. Kleibert et al., *Nature Phys.* **9**, 375 (2013).
6. A. Han, P. M. Derlet, A. Kleibert et al., *Phys. Rev. Lett.* **111**, 057204 (2013).
7. M. Saccone, K. Hofhuis, Y. Huang et al., *Phys. Rev. Mater.* **3**, 104402 (2019).
8. M. J. Morrison, T. R. Nelson, and C. Nisoli, *New J. Phys.* **15**, 045009 (2013).
9. S. H. Skjærvø, C. H. Marrows, R. L. Stamps et al., *Nat. Rev. Phys.* **2**, 13 (2020).
10. J. Park, B. L. Le, J. Sklenar et al., *Phys. Rev. B* **96**, 024436 (2017).
11. Y. Li, T. X. Wang, Z. T. Hou et al., *Phys. Lett. A* **380**, 2013 (2016).
12. G. W. Chern, M. J. Morrison, and C. Nisoli, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 177201 (2013).
13. I. Gilbert, G. W. Chern, S. Zhang et al., *Nature Phys.* **10**, 670 (2014).

14. I. Gilbert, Y. Lao, I. Carrasquillo et al., *Nature Phys.* **12**, 162 (2015).
15. X. Zhang, A. Duzgun, Y. Lao et al., *Nature Communications* **12**, (2021).
16. H. Stopfel, U.B. Arnalds, A. Stein et al., *Phys. Rev. Mater.* **5**, 114410 (2021).
17. G.W. Chern, P. Mellado, and O. Tchernyshyov, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 207202 (2011).
18. G.W. Chern and O. Tchernyshyov, *Phil. Trans. Royal Soc. A: Math., Phys. Engin. Sci.* **370**, 5718 (2012).
19. G. Möller and R. Moessner, *Phys. Rev. B* **80**, 140409 (2009).
20. A. G. Makarov, K. Makarova, Y. A. Shevchenko et al., *JETP Lett.* **110**, 702 (2019).
21. U.B. Arnalds, A. Farhan, R. V. Chopdekar et al., *Appl. Phys. Lett.* **101**, 112404 (2012).
22. I. Rousochatzakis, A. M. Läuchli, and R. Moessner, *Phys. Rev. B* **85**, 104415 (2012).
23. A. M. Abakumov, D. Batuk, A. A. Tsirlin et al., *Phys. Rev. B* **87**, 024423 (2013).
24. M. Rojas, O. Rojas, and S. M. Souza, *Phys. Rev. E* **86**, 051116 (2012).
25. A. A. Tsirlin, I. Rousochatzakis, D. Filimonov et al., *Phys. Rev. B* **96**, 094420 (2017).
26. C. Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, *Nature* **451**, 42 (2008).
27. Ю. А. Шевченко, А. Г. Макаров, П. Д. Андрющенко и др., *ЖЭТФ* **151**, 1146 (2017).
28. R. G. Melko, B. C. Hertog, and M. J. P. Gingras, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 067203 (2001).
29. R. G. Melko and M. J. P. Gingras, *J. Phys.: Cond. Matt.* **16**, 1277 (2004).
30. Y. Shevchenko, V. Strongin, V. Kapitan et al., *Phys. Rev. E* **106**, 064105 (2022).
31. K. Makarova, V. Strongin, I. Titovets et al., *Phys. Rev. E* **103**, 042129 (2021).
32. E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Phil. Trans. Royal Soc. London. Series A, Math. Phys. Sci.* **240**, 599 (1948).
33. S. Gliga, A. Kákay, L. J. Heyderman et al., *Phys. Rev. B* **92**, 060413 (2015).
34. N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth et al., *J. Chem. Phys.* **21**, 1087 (1953).
35. W. K. Astings, *Biometrika* **57**, 97 (1970).
36. K. Makarova, A. Makarov, V. Strongin et al., *J. Comp. Appl. Math.* **427**, 115153 (2023).
37. H. Gould and J. Tobochnik, *Comp. Phys.* **3**, 82 (1989).
38. А. А. Гухман, *Об основаниях термодинамики, ЛКИ* (2010).
39. S. Gluzman and V. I. Yukalov, *Phys. Rev. E* **58**, 4197 (1998).
40. H. Nishimori and G. Ortiz, *Elements of Phase Transitions and Critical Phenomena*, Oxford University Press (2010).
41. C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, and G. Lauhoff, *Rep. Prog. Phys.* **71** 056501 (2008).
42. T. Bourdel, L. Khaykovich, J. Cubizolles et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 050401 (2004).
43. W. G. Van der Wiel, S. D. Franceschi, T. Fujisawa et al., *Science* **289**, 2105 (2000).
44. P. Lubitz, M. Rubinstein, J. J. Krebs et al., *J. Appl. Phys.* **11**, 6901 (2001).
45. A. Farhan, A. Scholl, C. Petersen et al., *Nature Commun.* **1**, 12635 (2016).
46. W. F. Brown Jr. and A. H. Morrish, *Phys. Rev.* **4**, 1198 (1957).
47. J. A. Osborn, *Phys. Rev.* **11–12**, 351 (1945).
48. A. Aharoni, *J. Appl. Phys.* **6**, 3432 (1998).
49. M. Saccone, A. Scholl, S. Velten et al., *Phys. Rev. B* **22**, 224403 (2019).

УРАВНЕНИЕ ЭВОЛЮЦИИ ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ МУЛЬТИФЕРРОИКОВ, ПРОПОРЦИОНАЛЬНОЙ ВЕКТОРНОМУ ПРОИЗВЕДЕНИЮ СПИНОВ ИОНОВ ЯЧЕЙКИ, ПОД ВЛИЯНИЕМ ГАМИЛЬТОНИАНА ГЕЙЗЕНБЕРГА

П. А. Андреев^а, М. И. Труханова^{а,б}*

^а *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет
119991, Москва, Россия*

^б *Лаборатория теоретической физики,
Институт проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук
115191, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 17 декабря 2023 г.,
после переработки 28 июня 2024 г.
Принята к публикации 3 июля 2024 г.

Получено уравнение эволюции поляризации (плотности электрического дипольного момента) для мультиферроиков II типа, в которых поляризация пропорциональна векторному произведению спинов ионов ячейки. Рассмотрен режим, в котором основным механизмом эволюции является обменное кулоновское взаимодействие, моделируемое гамильтонианом Гейзенберга. Полученное уравнение эволюции поляризации содержит плотность спина и плотность нематического тензора, возникающего как антикоммутатор спинов для частиц с $S = 1$ и более (для частиц со спином $S = 1/2$ он вырождается в концентрацию частиц). Также для построения замкнутой модели эволюции спина и поляризации в мультиферроиках получены уравнения для упомянутых выше физических величин. Приведено обоснование спин-токовой модели с помощью уравнения баланса импульса и уравнения эволюции спина, выведенных из микроскопического многочастичного уравнения Паули с учетом спин-орбитального взаимодействия. Для анализа механизма формирования электрического дипольного момента, пропорционального векторному произведению спинов магнитных ионов, использована спин-токовая модель, в рамках которой получена связь коэффициента пропорциональности с обменным интегралом. В работе использовано приближение среднего поля, когда многочастичная волновая функция системы ионов аппроксимируется произведением одночастичных функций.

DOI: 10.31857/S0044451024110099

1. ВВЕДЕНИЕ

Многообразие явлений в магнитоупорядоченных и диэлектрически упорядоченных средах привлекает внимание исследователей на протяжении последних десятилетий. Одним из примеров теоретического исследования является знаменитое уравнение Ландау – Лифшица – Гильберта для эволюции магнитного момента в магнитоупорядоченных средах, концепция которого была предложена Ландау и Лифшицем в 1935 году. Особый интерес вызывает одновременное проявление магнитного и диэлектрического упорядочения, возникающее в средах, назы-

ваемых мультиферроиками. Более того, эти явления могут сосуществовать сравнительно независимо (мультиферроики I типа) или проявлять взаимосвязь (II типа) [1]. В настоящей работе мы рассматриваем мультиферроики II типа, в которых поляризация ячейки кристалла формируется пропорционально векторному произведению спинов входящих в нее магнитных ионов.

Обычно выделяют три механизма возникновения поляризации в мультиферроиках II типа [2], для каждого из которых была предложена связь электрического дипольного момента ячейки кристалла и спинов входящих в нее магнитных ионов [2]. Особенности структуры кристаллической решетки для формирования мультиферроиков также можно найти в работе [2]. Для рассматриваемого нами слу-

* E-mail: trukhanova@physics.msu.ru

чая связь дипольного момента и спинов магнитных ионов была выведена в работе [3] на основе спин-токовой модели. Она использована нами ниже для вывода макроскопического выражения для поляризации, которое совпадает с результатом работы [4], в которой поляризация была получена из соображений симметрии в применении к термодинамическим потенциалам. Мы также рассматриваем обоснование спин-токовой модели с точки зрения метода квантовой гидродинамики [5–9], который является основным методом исследования в настоящей работе. Использование эффективного спинового тока в уравнении эволюции спинового поля, обусловленного обменным взаимодействием, позволяет не только воспроизвести результат работы [4], но и дать связь между коэффициентом, определяющим дипольный момент ячейки, и обменным интегралом. Более того, дано обобщение результата работы [4] при учете вклада квантового спинового тока, связанного с потенциалом Бома. Такое обобщение также позволяет уточнить область применимости результата, полученного в работе [4]. Предложенный нами подход к обоснованию вида поляризации и, можно сказать, к обоснованию спин-токовой модели, позволяет установить коэффициент пропорциональности между спиновым током и поляризацией.

Описанные выше результаты служат предварительными перед выводом уравнения эволюции поляризации, для которого можно включить набор возможных взаимодействий в исходный гамильтониан в микроскопическом нестационарном уравнении Шредингера – Паули. Однако в этой работе мы ограничиваемся рассмотрением кулоновского обменного взаимодействия в форме гамильтониана Гейзенберга $\hat{H}_H = -J\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2$, где $\hat{\mathbf{S}}_1$ и $\hat{\mathbf{S}}_2$ — спины двух взаимодействующих частиц (в нашем случае ионов), а J — обменный интеграл, связанный с перекрытием волновых функций электронов.

В большинстве случаев при анализе магнитных явлений ограничиваются использованием намагниченности среды, которая пропорциональна плотности спина (для системы магнитных частиц одного сорта). Однако такое упрощенное представление справедливо только для частиц со спином $1/2$ [10]. При рассмотрении атомов/ионов с большим спином, что справедливо для большинства магнетиков, образующих магнитоупорядоченные состояния (ферромагнитные фазы, антиферромагнитные фазы и т.д.), квантовые средние значения произведений проекций операторов спина одной частицы дают новые физические величины. Простейшим примером является нематический тензор, пропорциональ-

ный квантовому среднему антикоммутирующему оператору спина [11, 12]. При рассмотрении отдельных доменов ферромагнетика мы видим систему параллельных спинов. В этом случае нематический тензор можно, по крайней мере приближенно, выразить через единственную отличную от нуля проекцию спина. Однако при распространении возмущения картина усложняется, и степень неточности приближенного перехода от нематического тензора к комбинации проекций спина возрастает и требует систематической оценки. Аналогичная ситуация возникает в области доменной стенки. В настоящей работе мы останавливаемся на обсуждении нематического тензора в связи с тем, что он входит в уравнение эволюции электрической поляризации. Поэтому ниже мы выводим уравнение эволюции нематического тензора наряду с уравнением эволюции плотности спина и уравнением эволюции поляризации. Отметим, что обменное взаимодействие для системы ионов со спином больше $1/2$ не ограничивается слагаемым $\hat{H}_H = -J\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2$, а по меньшей мере для частиц со спином $S = 1$ дает биквадратный обмен $\hat{H}_{H2} = -\tilde{J}(\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2)^2$. Его вклад в уравнение Ландау – Лифшица и необходимость использования нематического тензора рассмотрены в работе [13]. Однако в настоящей работе мы сфокусированы на вкладе обменного взаимодействия, описываемого гамильтонианом Гейзенберга $\hat{H}_H = -J\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2$.

Статья организована следующим образом. В разд. 2 рассмотрены основы метода квантовой гидродинамики и использовано уравнение баланса импульса для приближенного обоснования спин-токовой модели поляризации. В разд. 3 исследуется связь микроскопического электрического дипольного момента и макроскопической плотности электрического дипольного момента. В разд. 4 получено уравнение эволюции поляризации под влиянием обменного взаимодействия, описываемого гамильтонианом Гейзенберга. Вывод уравнения эволюции выполнен, исходя из микроскопической теории. В разд. 5 представлено краткое обсуждение полученных результатов.

2. МЕТОД КВАНТОВОЙ ГИДРОДИНАМИКИ — УРАВНЕНИЕ БАЛАНСА ИМПУЛЬСА, РАВНОВЕСНОЕ СОСТОЯНИЕ, ОБОСНОВАНИЕ СТРУКТУРЫ ПОЛЯРИЗАЦИИ

Простейшим определением в квантовой теории материальных полей является концентрация числа частиц (мы учитываем только магнитные ионы, но более общая модель позволяет учесть концентрацию

частиц другого сорта — немагнитных ионов)

$$n(\mathbf{r}, t) = \int \Psi_S^\dagger(R, t) \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \Psi_S(R, t) dR. \quad (1)$$

Эволюция концентрации приводит к уравнению непрерывности, в котором возникает плотность потока частиц $\mathbf{j}$, совпадающая с плотностью импульса для нерелятивистских систем. В этой работе мы частично рассматриваем спин-орбитальное взаимодействие для анализа спин-токовой модели, т. е. мы учитываем релятивистские эффекты. Здесь важно различать плотность потока частиц и плотность импульса частиц. Структура плотности потока частиц использована в работе [14] для обоснования спин-токовой модели. Мы же, в настоящей работе, рассматриваем уравнение эволюции плотности импульса и баланс сил в нем для переосмысления результата работы [14] в рамках метода квантовой гидродинамики.

Следуя логике определения концентрации (1), мы задаем плотность импульса

$$\mathbf{p}(\mathbf{r}, t) = \int \left(\Psi_S^\dagger(R, t) \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \hat{\mathbf{p}}_i \Psi_S(R, t) + \text{Н. с.} \right) dR, \quad (2)$$

и плотность спина

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}, t) = \int \Psi_S^\dagger(R, t) \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) (\hat{\mathbf{s}}_i \Psi_S(R, t)) dR, \quad (3)$$

где Н. с. использовано для обозначения эрмитово-сопряженного слагаемого.

2.1. Уравнения баланса импульса и спина

Основная цель этой работы — рассмотреть влияние обменного взаимодействия на эволюцию электрической поляризации в мультиферроиках II типа. Однако мы начнем с предварительного анализа определения поляризации. Для этого рассмотрим эволюцию импульса и спиновой плотности среды. При этом мы учтем ряд других взаимодействий, а именно, спин-орбитальное взаимодействие, взаимодействие Дзялошинского–Мория и энергию электрического дипольного момента во внешнем электрическом поле. В итоге мы используем микроскопическое многочастичное уравнение Шредингера–Паули

$$i\hbar \partial_t \Psi(R, t) = \hat{H} \Psi(R, t) \quad (4)$$

с гамильтонианом взаимодействий вида

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^N \left[-\hat{\mathbf{d}}_i \cdot \mathbf{E}_i - \frac{1}{2mc} (\hat{\boldsymbol{\mu}}_i \cdot [\mathbf{E}_i \times \hat{\mathbf{p}}_i]) - \hat{\boldsymbol{\mu}}_i \cdot \mathbf{B}_i - \frac{1}{2} \sum_{\substack{j=1, \\ j \neq i}}^N (U_{ij} \hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot [\hat{\mathbf{s}}_i \times \hat{\mathbf{s}}_j]) \right]. \quad (5)$$

Здесь N — полное число частиц/ионов, $\Psi(R, t)$ — волновая функция системы частиц, $R = \{\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N\}$, $\hat{\mathbf{d}}_i$ — оператор электрического дипольного момента, который определен через смещение ионов, его дальнейшая связь со спинами ионов [2] будет определена в процессе анализа получаемых уравнений эволюции макроскопических функций, $\hat{\mathbf{p}}_i = -i\hbar \hat{\nabla}$ — оператор импульса i -й частицы, $\hbar$ — приведенная постоянная Планка, m_i — масса частицы, c — скорость света в вакууме, $\mathbf{E}_i$ и $\mathbf{B}_i$ — напряженность электрического и индукция магнитного полей, действующих на i -ю частицу/ион, $\hat{\mathbf{s}}_i$ — размерный оператор спина, $\hat{\boldsymbol{\mu}}_i$ — оператор магнитного момента, пропорциональный оператору спина $\hat{\boldsymbol{\mu}}_i = \gamma_i \hat{\mathbf{s}}_i$ через гиромагнитное отношение γ_i , $U_{ij} = U(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$ — скалярный коэффициент обменного кулоновского взаимодействия гамильтониана Гейзенберга (обменный интеграл), $\mathbf{D}_{ij} = \mathbf{D}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = -\mathbf{D}_{ji}$ — векторный коэффициент обменного спин-орбитального взаимодействия Дзялошинского–Мория. Далее в работе использовано приближение среднего поля, когда многочастичная волновая функция системы ионов аппроксимируется произведением функций.

Гамильтониан (5) содержит пять слагаемых, соответствующих различным взаимодействиям, а именно (в порядке расположения слагаемых в гамильтониане): потенциальная энергия дипольных моментов во внешнем электрическом поле, спин-орбитальное взаимодействие, отвечающее действию электрического поля на магнитные моменты ионов [15] (см. разд. 33 и 83), потенциальная энергия магнитного момента во внешнем магнитном поле, обменное кулоновское взаимодействие в форме гамильтониана Гейзенберга, обменное спин-орбитальное взаимодействие Дзялошинского–Мория. Более детальное описание позволяет учесть электрическое поле, создаваемое диполями системы и действующее на дипольные моменты наряду с внешним электрическим полем. Также можно отметить, что электрическое поле в спин-орбитальном взаимодействии может быть вызвано электрическими дипольными моментами среды. Учет обменного взаимодействия в гамильтониане для уравнения Шредингера не является примером фундаментального микроскопического подхода. В данной работе мы рассматриваем материалы с сильно выраженными магнитными и диэлектрическими свойствами. Эти свойства формируются в группах ионов, расположенных в узлах кристаллической решетки. Таким образом, часть взаимодействий, приводящая к формированию иона или кристаллической решетки, явно не

учитывается. Обменная часть электромагнитного взаимодействия валентных электронов опосредованно учитывается соответствующими слагаемыми в гамильтониане, что отражает переход на масштаб расстояний и энергий, на которых ионы и их композиции являются «элементарными» объектами нашей теории.

Следуя методу квантовой гидродинамики, мы получаем соответствующее уравнение баланса импульса

$$\partial_t \mathbf{p} = g_{0u} S^\beta \nabla S^\beta + \mu S^\beta \nabla B^\beta + P^\beta \nabla E^\beta + \frac{\gamma}{2mc} \varepsilon^{\beta\gamma\delta} J^{\delta\gamma} (\nabla E^\beta) + \mathbf{F}_{DM}, \quad (6)$$

где

$$g_{0u} = \int U(r) d\mathbf{r}$$

— константа обменного взаимодействия, возникающая как интегральная характеристика взаимодействия пар соседних частиц, она может быть выражена через обменный интеграл, для определенной модельной формы обменного интеграла [16], $J^{\delta\gamma}$ — тензор спинного тока, P^β — плотность электрического дипольного момента (формула представлена ниже), $\mathbf{F}_{DM}$ — плотность силы взаимодействия Дзялошинского–Мория, и уравнение эволюции спина

$$\partial_t \mathbf{S} = \frac{2\gamma}{\hbar} [\mathbf{S}, \mathbf{B}] + \frac{1}{6} g_u [\mathbf{S}, \Delta \mathbf{S}] + \mathbf{T}_{DM} + \mathbf{T}_{SO}, \quad (7)$$

где Δ — оператор Лапласа, $g_u = \int r^2 U(r) d\mathbf{r}$ — вторая константа обменного взаимодействия, являющаяся вторым «моментом» обменного интеграла, тогда как константу g_{0u} можно назвать нулевым «моментом» обменного интеграла, $\mathbf{T}_{DM}$ — плотность момента силы взаимодействия Дзялошинского–Мория,

$$T_{SO}^\alpha = -\frac{\gamma}{\hbar c} \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} \varepsilon^{\beta\mu\nu} E^\mu J^{\gamma\nu} - \partial_\beta J_{SO}^{\alpha\beta}$$

— плотность момента силы спин-орбитального взаимодействия. Она содержит полный спинный ток $J^{\gamma\nu}$ и релятивистскую часть спинного тока, обусловленную спин-орбитальным взаимодействием, которая для частицы со спином $S = 1/2$ имеет вид

$$J_{SO}^{\alpha\beta} = \frac{\mu\hbar}{4mc} \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} n E^\gamma.$$

Для частиц с большим спином спинный ток выражается через нематический тензор $\pi^{\alpha\beta}$ (определенный ниже формулой (29)):

$$J_{SO}^{\alpha\beta} = (\gamma/mc) \varepsilon^{\beta\mu\nu} \pi^{\alpha\nu} E^\mu.$$

Частным случаем уравнения эволюции спина является уравнение Ландау–Лифшица–Гильберта. Уравнения (6) и (7) выведены из уравнения

Шредингера–Паули с гамильтонианом (5). Следовательно, уравнения (6) и (7) содержат те же взаимодействия, что и гамильтониан (5). Отметим, что вклад гамильтониана Гейзенберга — это, очевидно, второе слагаемое в правой части уравнения (7), которое можно представить в виде дивергенции тензора спинного тока [17]:

$$(1/6) g_u \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} S^\beta \Delta S^\gamma = \partial_\delta ((1/6) g_u \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} S^\beta \partial_\delta S^\gamma) = -\partial_\delta J_{HH}^{\alpha\delta},$$

где индекс HH подчеркивает, что спинный ток связан с гамильтонианом Гейзенберга.

В работе [18] приводится пример коэффициента $\mathbf{D}_{ij}$ для перовскитов. В перовскитах возникает следующая картина взаимодействия между ближайшими магнитными ионами. Обменное взаимодействие осуществляется за счет суперобмена через лиганд, в качестве которого выступает немагнитный ион (например, ион кислорода), который расположен между магнитными ионами, но в стороне от прямой, соединяющей данные ионы. Такой механизм приводит к следующей структуре коэффициента Дзялошинского:

$$\mathbf{D}_{ij} \sim \mathbf{r}_{ij} \times \boldsymbol{\delta},$$

где $\boldsymbol{\delta}$ — вектор смещения лиганда от центра отрезка, соединяющего магнитные ионы. Кроме того, нам необходимо ввести коэффициент пропорциональности, учитывающий убывание взаимодействия при увеличении расстояния между магнитными ионами r_{ij} . В итоге получаем

$$\mathbf{D}_{ij} = \beta(r_{ij}) \mathbf{r}_{ij} \times \boldsymbol{\delta},$$

где коэффициент пропорциональности $\beta(r_{ij})$ зависит только от модуля расстояния между ионами.

Для представленной модели коэффициента Дзялошинского в перовскитах мы приходим к следующим выражениям для плотности силы взаимодействия Дзялошинского–Мория:

$$F_{DM}^\sigma = \frac{1}{2} \hat{g}_{4D}^{\alpha\lambda\mu\sigma} \delta^\nu \varepsilon^{\beta\mu\nu} \varepsilon^{\beta\gamma\delta} \partial^\alpha (S^\gamma \partial^\lambda S^\delta), \quad (8)$$

где

$$\hat{g}_{4D}^{\alpha\lambda\mu\sigma} = \int \xi^\alpha \xi^\lambda \left(\beta(\xi) \delta^{\mu\sigma} + \xi^\mu \xi^\sigma \frac{1}{\xi} \frac{\partial \beta(\xi)}{\partial \xi} \right)$$

— неприведенная форма константы взаимодействия, и для плотности момента силы

$$T_{DM}^\mu = \frac{1}{3} g_{2(\beta)} \delta^\nu \left(-\varepsilon^{\mu\delta\nu} S^\beta \partial^\delta S^\beta + \varepsilon^{\alpha\delta\nu} S^\alpha \partial^\delta S^\mu \right), \quad (9)$$

где

$$g_{2(\beta)} = \int \xi^2 \beta(\xi) d^3 \xi.$$

Первое слагаемое в моменте силы (9) может быть преобразовано в виде дивергенции спинного тока.

В итоге получим

$$T_{DM}^{\mu} = -\partial_{\beta} J_{DM}^{\mu\beta} + \frac{1}{3} g_{2(\beta)} \delta^{\nu} \varepsilon^{\alpha\delta\nu} S^{\alpha} \partial^{\delta} S^{\mu},$$

где

$$J_{DM}^{\mu\beta} = \frac{1}{3} g_{2(\beta)} \delta^{\nu} \frac{1}{2} \varepsilon^{\mu\beta\nu} \mathbf{S}^2. \quad (10)$$

Еще раз остановимся на структуре плотности силы взаимодействия Дзялошинского–Мория (8), окончательное выражение для которой запишем в векторном виде:

$$\mathbf{F}_{DM} = \frac{1}{3} g_{(\beta)} \left((\boldsymbol{\delta} \cdot \mathbf{S}) \nabla (\nabla \cdot \mathbf{S}) - (\mathbf{S} \cdot \nabla) \nabla (\boldsymbol{\delta} \cdot \mathbf{S}) \right), \quad (11)$$

где

$$g_{(\beta)} = \int \xi^2 \beta(\xi) d\xi.$$

Вектор Дзялошинского–Мория, как и обменный интеграл, представляет собой функцию расстояния, которую можно заменить определенным значением при рассмотрении фиксированного расстояния между атомами в кристалле. Обменное (прежде всего кулоновское) взаимодействие является механизмом взаимодействия нейтральных атомов, как взаимодействие валентных электронов (электронов с внешних оболочек). Оно также дает вклад во взаимодействие ионов. В газах расстояние между атомами меняется в значительных пределах. Однако взаимодействие проявляется на малых расстояниях (по сравнению со средним расстоянием между атомами). Это приводит к тому, что в макроскопических уравнениях короткодействие описывается набором констант взаимодействия (в основном одной константой — интегралом эффективного потенциала взаимодействия, при обменном взаимодействии, связанном с перекрытием волновых функций валентных электронов близких атомов и поэтому существенно зависящем от расстояния). С этой точки зрения обменный интеграл Гейзенберга и вектор Дзялошинского–Мория являются интегрируемыми функциями расстояния между взаимодействующими атомами. В кристаллах, при пренебрежении тепловыми колебаниями атомов/ионов около положения равновесия, имеет место фиксированное расстояние между атомами/ионами. При рассмотрении таких систем мы можем выбрать определенный вид пространственной зависимости рассматриваемых функций в виде узкой «ступеньки»:

$$U(r) = U_0 \theta(r - a) \theta(a + \delta a - r),$$

где θ — функция Хевисайда, U_0 — значение обменного интеграла в рассматриваемом кристалле, a — среднее расстояние между атомами, δa — амплитуда тепловых колебаний.

Отметим, что, если мы получим интеграл только от вектора Дзялошинского–Мория (как функции r_{ij}), то он обратится в нуль. Однако при разложении волновых функций и дельта-функции возникают дополнительные множители, содержащие r_{ij} , так что часть выражений оказывается отличной от нуля.

2.2. Равновесное состояние и спин-токовая модель

Мультиферроик представляет собой систему с магнитным и диэлектрическим упорядочением. Как следствие этого, внутри системы существуют макроскопические равновесные электрические и магнитные поля. Поэтому необходимо рассмотреть равновесное состояние системы с отличными от нуля значениями полей. Из уравнения (6) видно, что для рассматриваемых взаимодействий ненулевые значения полей возможны при наличии неоднородности полей, так как все слагаемые в правой части содержат пространственные производные полей. Третье и четвертое слагаемые в правой части пропорциональны ∇E^{β} . Это дает возможность для формирования баланса этих сил в равновесном состоянии при различных видах неоднородности электрического поля. Это приводит к формированию равновесной поляризации, обусловленной спин-орбитальным взаимодействием:

$$P^{\mu} = \frac{\gamma}{2mc} \varepsilon^{\mu\alpha\beta} J^{\alpha\beta}.$$

Отметим, что здесь использована самосогласованная часть спин-орбитального взаимодействия, соответствующая части многочастичной волновой функции, состоящей из произведения одночастичных волновых функций отдельных магнитных ионов.

Комбинация первого и второго слагаемых в правой части уравнения баланса импульса (6) дает равновесное магнитное поле, пропорциональное плотности спина $B^{\beta} = -g_{0u} S^{\beta} / \gamma$ и вызванное обменным кулоновским взаимодействием.

Плотность силы взаимодействия Дзялошинского–Мория для нечетного коэффициента Дзялошинского имеет структуру, отличную от других слагаемых в уравнении баланса импульса. Кроме того, она содержит две пространственные производные, что говорит о сравнительно малом вкладе по сравнению с другими слагаемыми.

Анализ равновесного состояния, исходя из уравнения баланса импульса (6), позволил получить связь между поляризацией и спиновым током. Очевидно, что полученная связь является частным случаем баланса сил и в общем случае другие взаи-

модействия могут дать вклад в это соотношение. Следующий вопрос, который возникает в развитии спин-токовой модели, это выражение для спинового тока, обусловленного различными эффектами. Выражения для спиновых токов мы берем из уравнения эволюции спина. Как показывает представленный выше анализ, вклад обменного кулоновского взаимодействия, взятый в виде гамильтониана Гейзенберга в уравнении эволюции спина, может быть представлен в виде дивергенции спинового тока. Это дает нам один из парциальных спиновых токов. Вклад взаимодействия Дзялошинского – Мория также можно представить в виде дивергенции спинового тока, но при условиях, которые также сформулированы выше.

2.3. Макроскопическая поляризация в рамках спин-токовой модели

Рассмотрим применение спин-токовой модели к двум видам парциальных спиновых токов. Для спинового тока, обусловленного гамильтонианом Гейзенберга, получаем следующее выражение для макроскопической поляризации:

$$P_{\text{HH}}^{\mu} = \frac{\gamma}{2mc} \varepsilon^{\mu\alpha\beta} J_{\text{HH}}^{\alpha\beta} = \frac{\gamma}{12mc} g_u (S^{\beta} \partial_{\beta} S^{\mu} - S^{\mu} \partial_{\beta} S^{\beta}). \quad (12)$$

Это соответствует результату, полученному М. Моствым [4] (см. также работу [19], с. 533). Для спинового тока, обусловленного взаимодействием Дзялошинского – Мория, мы также находим выражение для макроскопической поляризации:

$$P_{\text{DM}}^{\mu} = \frac{\gamma}{2mc} \varepsilon^{\mu\alpha\beta} J_{\text{DM}}^{\alpha\beta} = -\frac{\gamma}{12mc} g_{2(\beta)} \delta^{\mu} \mathbf{S}^2. \quad (13)$$

Эти выражения мы используем ниже при анализе микроскопической структуры электрического дипольного момента, рассматриваемого в литературе [2].

Уравнения (9) и (10) приводят к выражению (13). Основной вклад в поляризацию не зависит от пространственных производных. В данном случае наличие δ дает ненулевой спиновый ток $J_{\text{DM}}^{\alpha\beta}$, который дает ненулевое значение силы спин-орбитального взаимодействия (четвертое слагаемое в правой части уравнения (6)). А баланс этой силы с третьим слагаемым, пропорциональным поляризации $\mathbf{P}$ (где $\mathbf{P}$ пропорционально δ), дает согласованное условие равновесия. Из формулы (13) следует, что при таком равновесии существует связь поляризации среды $\mathbf{P}$ и плотности спина в

представленном виде. Выражение (13) соответствует оператору электрического дипольного момента для коллинеарных спинов, представленному в работе [2] (см. рис. 2а–2с).

В зависимости от структуры и симметрии кристаллов реализуются разные механизмы формирования поляризации. Показано, что смещение зарядовой плотности может возникнуть из-за спин-орбитального взаимодействия. Последнее проявляется при наличии спинового тока в системе ионов, формирующих неоднородное электрическое поле. Если преобладает спиновый ток, обусловленный кулоновским обменным взаимодействием, то мы приходим к формуле (12). Выражение (12) совпадает с выражением для поляризации (23), которое было использовано в литературе для магнитоупорядоченных структур с неколлинеарными спинами, которые реализуются в перовскитах типа RMnO_3 , где $\text{R} = \text{Tb}, \text{Dy}$ [20]. Формула (13) возникает для M-X-M -структуры, где M — магнитные ионы, X представляет собой ион-лиганд. Эта структура реализуется в редкоземельных манганитах перовскитного типа (или орторомбических манганитах) RMnO_3 при $\text{R} = \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Yb}$ [21, 22]. Еще одним мультиферроиком является семейство оксидов марганца со смешанной валентностью RMn_2O_5 , где $\text{R} = \text{Y}, \text{Tb}, \text{Ho}, \text{Er}$ или Tm [23]. Магнитная структура в подобных веществах является антиферромагнитной в плоскости ab , образуя коллинеарный спиновый порядок магнитных ионов Mn_4^+ и Mn_3^+ .

2.4. Спиновый ток и потенциал Бома

Учет малых колебаний ионов в окрестности положения равновесия потребовал бы учета кинетической энергии ионов в исходном гамильтониане (5). Это также привело бы к слагаемым, описывающим потоки частиц, отсутствующие в данном случае, при рассмотрении кристаллов, а систематическое исключение потоков из уравнений усложнило бы приведенные уравнения. Однако учет кинетической энергии проявляется также в появлении квантовых эффектов, в частности, в появлении квантового потенциала Бома, который дает вклад и в спиновый ток в уравнении эволюции спина [24] (см. уравнение (9)):

$$J_{\text{Bohm}}^{\alpha\beta} = -\frac{\hbar\gamma}{2m} \varepsilon^{\alpha\mu\nu} S^{\mu} \partial^{\beta} \left(\frac{S^{\nu}}{n} \right). \quad (14)$$

Если мы рассматриваем квазиклассическую динамику поляризации, то парциальные токи, полученные и использованные выше, должны превышать спиновый ток, обусловленный потенциалом Бома.

Кроме того, потенциал Бома связан с квантовым движением частиц, что может приводить к деформациям и формированию электрического дипольного момента. Вычислим его в рамках спин-токовой модели:

$$P_{Bohm}^{\mu} = \frac{\gamma}{2mc} \varepsilon^{\mu\alpha\beta} J_{Bohm}^{\alpha\beta} = \frac{\hbar\gamma^2}{4m^2c} \left[S^{\mu} \partial^{\beta} \left(\frac{S^{\beta}}{n} \right) - S^{\beta} \partial^{\beta} \left(\frac{S^{\mu}}{n} \right) \right]. \quad (15)$$

Сравним поляризации (12) и (15). Они имеют схожую структуру, но в выражении (15) присутствуют производные концентрации. Рассмотрим режим постоянной концентрации и получим оценку для константы g_u (без учета знака): $g_u \gg \hbar\gamma/2m$.

2.5. Обсуждение спин-токовой модели на основании структуры потока вероятности

Для рассматриваемого гамильтониана уравнение непрерывности $\partial_t n + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0$ приводит к плотности потока частиц $\mathbf{j}$ следующего вида:

$$\mathbf{j} = \int \left(\Psi_S^{\dagger}(R, t) \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \hat{\mathbf{j}}_i \Psi_S(R, t) + \text{Н. с.} \right) dR, \quad (16)$$

где

$$\hat{\mathbf{j}}_i = \frac{1}{2m_i} \left(\hat{\mathbf{p}}_i + \frac{\mu}{2m_i c} [\mathbf{E}_i \times \hat{\mathbf{s}}_i] \right). \quad (17)$$

Для придания более привычного вида оператору потока частиц мы включили в него оператор импульса $\hat{\mathbf{p}}_i$, который может возникнуть из оператора кинетической энергии в исходном гамильтониане, но он не рассмотрен в нашем случае. Более того, в работе [14], вклад импульса тоже отбрасывается, так как рассматриваются ионы, движение которых пренебрежимо мало. Кроме того, поток числа частиц/вероятности определен неоднозначно, и мы можем добавить ротор произвольного вектора в определение (16), что приведет к изменению структуры оператора (17) (см. [14, 25]). Обычно в определение потока вероятности добавляют ротор плотности спина/намагниченности

$$\tilde{\mathbf{j}} = \mathbf{j} + (\hbar/2ms) \text{rot} \mathbf{S},$$

где s — спин рассматриваемых ионов. Баланс ротора спина и слагаемого, вызванного спин-орбитальным взаимодействием, дает связь напряженности электрического поля и плотности спина, и дальнейшую связь поляризации с плотностью спина:

$$\mathbf{P} \sim (\mathbf{S} \times (\nabla \times \mathbf{S}))/S^2,$$

см. [14]. Также запишем упрощенный вид этой формулы без векторных произведений

$$\mathbf{P} \sim [(\nabla S^2/2 - (\mathbf{S} \cdot \nabla) \mathbf{S})/S^2]$$

для дальнейшего сравнения с результатами анализа микроскопической структуры электрического дипольного момента [2].

3. О МИКРОСКОПИЧЕСКОМ ОПРЕДЕЛЕНИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ МУЛЬТИФЕРРОИКА

В предыдущем разделе представлен анализ структуры поляризации, связанной со спин-орбитальным взаимодействием. Это дает частичное обоснование спин-токовой модели и возможность для ее дальнейшего обобщения. Кроме того, такой анализ дает макроскопические выражения для поляризации, сформированной разными видами обменного взаимодействия (в рамках спин-токовой модели). Это позволяет восстановить микроскопическую структуру поляризации, приводящую к полученным макроскопическим выражениям. Однако эти микроскопические структуры уже известны в литературе [2], и мы можем выбрать нужную нам для перехода к макроскопическому выражению и его сравнения с полученным выше.

Рассмотрим спины двух магнитных ионов $\mathbf{s}_i$ и $\mathbf{s}_j$ и, следуя работам [2, 3, 18], запишем выражение для электрического дипольного момента элементарной ячейки кристалла

$$\mathbf{d}_{ij} = \alpha_{ij} [\mathbf{r}_{ij} \times [\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j]], \quad (18)$$

где мы используем относительное расстояние между частицами $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$, в данном случае это магнитные ионы. Далее, перейдем к операторной форме этого равенства

$$\hat{\mathbf{d}}_{ij} = \alpha_{ij} [\mathbf{r}_{ij} \times [\hat{\mathbf{s}}_i \times \hat{\mathbf{s}}_j]] \quad (19)$$

для развития квантовой модели поляризации мультиферроиков II типа. Отметим для определенности коммутационные свойства операторов спина

$$[\hat{s}_i^{\alpha}, \hat{s}_j^{\beta}] = i\hbar \delta_{ij} \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} \hat{s}_i^{\gamma}, \quad (20)$$

где α, β, γ — тензорные индексы, принимающие значения декартовых координат x, y, z . В этой работе мы подразумеваем суммирование по повторяющимся индексам (греческим буквам). Символ i использован для мнимой единицы $i^2 = -1$, δ_{ij} — трехмер-

ный символ Кронекера, $\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}$ — трехмерный символ Леви-Чивиты.

Из формулы (18) видно, что мы рассматриваем ионы с непараллельными спинами, находящимися в системах со спиральными структурами намагниченности [18]. Однако существуют нетривиальные примеры систем с параллельными спинами [26], которые не описываются данной моделью.

Основным элементом рассмотрения является электрический дипольный момент ячейки кристалла. Поэтому мы переходим в определении (19) от пары ионов к ячейке с номером i . Чтобы учесть, что дипольный момент создан ионом i в совокупности с соседним ионом, мы вводим коэффициент $\alpha_{ij}(r_{ij})$, который быстро убывает с увеличением расстояния, и приходим к следующей модификации определения (19):

$$\hat{\mathbf{d}}_i = \sum_{j \neq i} \alpha_{ij}(r_{ij}) [\mathbf{r}_{ij} \times [\hat{\mathbf{s}}_i \times \hat{\mathbf{s}}_j]], \quad (21)$$

где, к примеру, $\alpha_{ij}(r_{ij}) = \alpha_{ij}$ при $r < a_{eff}$, $\alpha_{ij}(r_{ij}) = 0$ при $r > a_{eff}$, коэффициент $\alpha_{ij}(r_{ij})$ можно изобразить ступенчатой функцией в трехмерном пространстве.

Выше, при выводе уравнения баланса импульса (6), мы использовали определение поляризации через оператор электрического дипольного момента $\hat{\mathbf{d}}_i$:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \int \Psi_S^\dagger(R, t) \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) (\hat{\mathbf{d}}_i \Psi(R, t))_S dR. \quad (22)$$

Исходный «затравочный» электрический дипольный момент $\hat{\mathbf{d}}_i$ ассоциирован со смещением ионов $\hat{\mathbf{d}}_i = q_i \mathbf{r}_i$, где q_i — заряд иона. Далее, мы рассмотрим эволюцию поляризации (22) с оператором (21). Прежде чем переходить к уравнению эволюции поляризации, рассмотрим связь макроскопической поляризации $\mathbf{P}$ с плотностью спина, связанной с оператором (21). Учтем быстрое убывание функции $\alpha_{ij}(r_{ij})$ с увеличением расстояния r_{ij} (следуя методу, описанному в [27]). Чтобы учесть это свойство, введем переменные центра масс пары частиц $\mathbf{R}_{ij} = (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j)/2$ и их относительное расстояние $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$. Выразим координаты рассматриваемых частиц через новые координаты $\mathbf{r}_i = \mathbf{R}_{ij} + (1/2)\mathbf{r}_{ij}$ и $\mathbf{r}_j = \mathbf{R}_{ij} - (1/2)\mathbf{r}_{ij}$. Сделаем соответствующую подстановку в дельта-функцию $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$ и в волновую функцию $\Psi(R, t) = \Psi(\dots, \mathbf{r}_i, \dots, \mathbf{r}_j, \dots, t)$, которые входят в определение поляризации (22). Далее, выполним разложение по координатам относительного движения r_{ij} . В наинизшем отличном от нуля

порядке разложения из (22), с подстановкой (21), находим

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{3} g_{(\alpha)} [(\mathbf{S} \cdot \nabla) \mathbf{S} - \mathbf{S}(\nabla \cdot \mathbf{S})], \quad (23)$$

где

$$g_{(\alpha)} = \int \xi^2 \alpha(\xi) d\xi.$$

С точностью до коэффициента пропорциональности полученное выражение совпадает с результатом М. Мостового [4] (см. также [19], с. 533), который выведен им с применением соображений симметрии к поляризации, намагниченности и термодинамическим потенциалам. Сравнивая коэффициенты в формуле (23) и формуле (2) работы [4], мы получаем

$$g_{(\alpha)} = 3\gamma\chi_e\mu^2,$$

где χ_e — диэлектрическая восприимчивость в отсутствие магнетизма, γ — неопределенный коэффициент пропорциональности, использованный в работе [4] для построения термодинамического потенциала (см. формулу (1) работы [4]).

Продолжим сравнение формулы (23) с результатами, обсуждавшимися выше. Мы видим, что результат работы [14], приведенный нами в разд. 2.4, не соответствует работе [4] и полученному нами результату на основе формулы (21). Однако применение спин-токовой модели с парциальным спиновым током, обусловленным обменным взаимодействием Гейзенберга, дает нам выражение для $\mathbf{P}_{HH}$ (см. разд. 2.3), которое совпадает с формулой (23) с точностью до коэффициента пропорциональности. Более того, коэффициент в $\mathbf{P}_{HH}$ связан с обменным интегралом, входящим в гамильтониан Гейзенберга, и пропорционален g_u . Это позволяет нам дать интерпретацию функции $\alpha_{ij}(r_{ij})$ в (18) и операторе (21). В итоге мы получаем следующее соотношение при $\frac{1}{12}(3\gamma/mc)g_u = g_{(\alpha)}$:

$$\alpha_{ij}(r_{ij}) = \frac{1}{12} \frac{3\gamma}{mc} U(r_{ij}). \quad (24)$$

В работах [3, 18] говорится, что обменное кулоновское взаимодействие приводит к формированию поляризации с параллельными спинами, тогда как структура типа (18) соответствует взаимодействию Дзялошинского–Мория. Наш анализ показывает, что рассмотрение обменного кулоновского взаимодействия между ионами в виде гамильтониана Гейзенберга приводит к структуре электрического дипольного момента, определенного выражением (18). Более того, наш анализ позволяет аналитически вычислить коэффициент пропорциональности, определяющий дипольный момент в формуле (18).

3.1. О физических механизмах, приводящих к формированию спиновой структуры поляризации

Рассмотрим для сравнения структуру поляризации, возникающую в системе параллельных спинов, следуя обзору [2] (см. рис. 2, случай 1): $\hat{\mathbf{d}}_i \sim \pi(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_{i+1})$. Это приводит к следующей макроскопической поляризации: $P^\alpha = g_{0\Pi}^\alpha \mathbf{S}^2$, где $g_{0\Pi}^\alpha = \int \Pi^\alpha(r) dr$. Анализируя случай (13), в режиме смещения иона лиганда перпендикулярно направлению спиновой поляризации, получаем $P^\alpha = g_{0\Pi}^\alpha \mathbf{S}^2$ с дополнительным условием $g_{0\Pi}^\alpha = -(1/6)g_{2(\beta)}\delta^\alpha$. С точки зрения микроскопического описания мы можем заключить, что $\Pi_{ij}^\alpha(r_{ij}) = r_{ij}^2 \beta(r_{ij})\delta^\alpha$.

Представленный анализ позволяет нам дать переосмысление рис. 2 в обзоре [2] (два первых случая). В работе [2] утверждается, что электрический дипольный момент $\hat{\mathbf{d}}_i \sim \pi(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_{i+1})$ обусловлен симметричным обменным взаимодействием, или, другими словами, кулоновским обменным взаимодействием, представленным гамильтонианом Гейзенберга. Также в работе [2] утверждается, что электрический дипольный момент

$$\hat{\mathbf{d}}_i \sim \alpha_{ij}[\mathbf{r}_{ij} \times [\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j]]$$

обусловлен антисимметричным обменным взаимодействием, т. е. взаимодействием Дзялошинского – Мориа. Наш анализ, опирающийся, в частности, на уравнения (12) и (13), приводит к обратной интерпретации природы данных операторов дипольных моментов. Отметим, что спин-токовая модель обычно привязана к объяснению структуры

$$\hat{\mathbf{d}}_i \sim \alpha_{ij}[\mathbf{r}_{ij} \times [\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j]].$$

Это видно даже из рис. 2f в работе [2]. Связь структуры поляризации и взаимодействия, приводящего к ее формированию, не совсем ясна в работе [2]. Можно предположить, что имеет место качественная интерпретация, основанная на сравнении спиновых структур в гамильтониане Гейзенберга (или Дзялошинского – Мориа) и в электрическом дипольном моменте. Если обе структуры содержат скалярное произведение спинов, то они имеют общий механизм, т. е. симметричный обмен Гейзенберга. Иначе, если обе структуры содержат векторное произведение спинов, то общим механизмом является взаимодействие Дзялошинского – Мориа. Но описанная здесь аналогия не верна. Манипуляция с операторами спина часто приводит к возникновению коммутатора, который переводит скалярное произведение операторов спина в векторное и наоборот. То, за

чем нужно следить, как за инвариантом, при качественном анализе, это математическая или тензорная структура коэффициента взаимодействия в исходном гамильтониане. В гамильтониане Гейзенберга это скалярная величина — обменный интеграл. Поэтому можно ожидать, что соответствующая поляризация будет связана с операторами спина через скалярный коэффициент (см. α в формуле (18)). В гамильтониане Дзялошинского – Мориа присутствует векторная постоянная Дзялошинского. Следовательно, можно ожидать, что поляризация будет связана со спиновыми операторами через векторный коэффициент $\hat{\mathbf{d}}_i \sim \pi(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_{i+1})$. Здесь, как мы показали, коэффициентом выступает не сама постоянная Дзялошинского, а вектор смещения лиганда, входящий в постоянную Дзялошинского [18] $\mathbf{D}_{ij} \sim \mathbf{r}_{ij} \times \boldsymbol{\delta}$. Описанное несоответствие механизма и интерпретации может быть причиной критики спин-токовой модели [28]. Однако причины отмеченной несогласованности могут быть более глубокими.

4. УРАВНЕНИЕ ЭВОЛЮЦИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ

Представленный выше анализ показывает, что различные типы электрического дипольного момента ячейки мультиферроика можно получить, исходя из метода квантовой гидродинамики. Несмотря на акцент на эволюции макроскопических функций, метод квантовой гидродинамики содержит связь с микроскопическим описанием. Опираясь на полученное определение электрического дипольного момента для режима, когда он пропорционален векторному произведению спинов (18) (ранее известному из работ [2, 3]), и его преобразование к виду (21), мы переходим к выводу уравнения эволюции поляризации мультиферроика. Уточним вид гамильтониана, используемого для предлагаемого вывода:

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{\substack{j=1, \\ j \neq i}}^N U(r_{ij})(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_j), \quad (25)$$

где $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$.

Далее, согласно методу квантовой гидродинамики, мы дифференцируем по времени определение поляризации (22) с оператором (21) и используем нестационарное уравнение Шредингера для преобразования полученного выражения к виду

$$\begin{aligned} \partial_t \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \\ = \frac{i}{\hbar} \int \Psi^\dagger(R, t) \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) [\hat{H}, \hat{\mathbf{d}}_i] \Psi(R, t) dR. \end{aligned} \quad (26)$$

Представим коммутатор, возникающий в форму-

ле (26), как

$$[\hat{H}, \hat{d}_i^\alpha] = -i\hbar \left\{ \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} U_{ij} \alpha_{ij} \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} r_{ij}^\beta (2\hat{s}_i^\alpha \hat{s}_j^\gamma - 2\hat{s}_j^\alpha \hat{s}_i^\gamma + \{\hat{s}_j^\gamma, \hat{s}_j^\sigma\} \hat{s}_i^\sigma - \{\hat{s}_i^\gamma, \hat{s}_i^\sigma\} \hat{s}_j^\sigma) + \sum_{n \neq i, j} \sum_{j \neq i} \alpha_{ij} \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} r_{ij}^\beta \times \right. \\ \left. \times ((\hat{s}_n^\gamma \hat{s}_j^\sigma \hat{s}_i^\sigma - \hat{s}_n^\sigma \hat{s}_j^\sigma \hat{s}_i^\gamma) U_{ni} + (\hat{s}_n^\sigma \hat{s}_j^\gamma \hat{s}_i^\sigma - \hat{s}_n^\gamma \hat{s}_j^\sigma \hat{s}_i^\sigma) U_{nj}) \right\}, \quad (27)$$

где

$$\{\hat{s}_i^\alpha, \hat{s}_i^\beta\} = 2\hat{\pi}_i^{\alpha\beta} = \hat{s}_i^\alpha \hat{s}_i^\beta + \hat{s}_i^\beta \hat{s}_i^\alpha$$

— антикоммутатор операторов спина, пропорциональный оператору нематического тензора $\pi_i^{\alpha\beta}$.

Используем свойство быстрого уменьшения функций U_{ij} и α_{ij} с увеличением расстояния между частицами. Для этого введем координаты центра масс и относительного расстояния. У нас присутствуют две группы слагаемых. В одной мы рассматриваем пары частиц, а в другой — группы из трех частиц. Для пар частиц мы уже вводили требуемые координаты при анализе структуры поляризации (23). Представим требуемые переменные для системы трех частиц. Запишем координату центра масс

$$\mathbf{R}_{ijn} = (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j + \mathbf{r}_n)/3,$$

а также две координаты относительного движения

$$\mathbf{r}_{in} \equiv \mathbf{r}_1 = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_n, \quad \mathbf{r}_{jn} \equiv \mathbf{r}_2 = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_n.$$

При необходимости мы можем использовать координаты относительного движения третьей пары частиц

$$\mathbf{r}_{ij} \equiv \mathbf{r}_3 = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2.$$

Также представим обратное преобразование координат отдельных частиц через введенные переменные:

$$\begin{aligned} \mathbf{r}_i &= \mathbf{R}_{ijn} + (2/3)\mathbf{r}_{in} - (1/3)\mathbf{r}_{jn}, \\ \mathbf{r}_j &= \mathbf{R}_{ijn} - (1/3)\mathbf{r}_{in} + (2/3)\mathbf{r}_{jn}, \\ \mathbf{r}_n &= \mathbf{R}_{ijn} - (1/3)\mathbf{r}_{in} - (1/3)\mathbf{r}_{jn}. \end{aligned}$$

Далее воспользуемся свойством быстрого убывания функций U_{ij} и α_{ij} с увеличением расстояния и выполним разложение всех функций в подынтегральном выражении (дельта-функции и двух волновых функций) по относительному расстоянию между частицами. Отметим необходимые элементы структуры аргументов волновой функции

$$\Psi(R, t) = \Psi(\dots, \mathbf{r}_i, \dots, \mathbf{r}_j, \dots, \mathbf{r}_n, \dots, t).$$

Более подробно метод вывода рассмотрен в Приложении. Отметим, что аналогичный метод использован при выводе других уравнений в представленной работе.

Выражение, полученное в первом порядке по относительному расстоянию между частицами, приводит к следующему выражению для эволюции поляризации (в нулевом порядке производная поляризации равна нулю):

$$\partial_t P^\alpha = \frac{1}{3} \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} g_{u(\alpha)} [S^\gamma \partial_\beta \pi^{\sigma\sigma} - \pi^{\sigma\sigma} \partial_\beta S^\gamma + \pi^{\gamma\sigma} \partial_\beta S^\sigma - S^\sigma \partial_\beta \pi^{\gamma\sigma}], \quad (28)$$

которое справедливо для атомов/ионов с произвольным спином. Уравнение (28) содержит следующую константу взаимодействия:

$$g_{u(\alpha)} = \int \xi^2 U(\xi) \alpha(\xi) d\xi.$$

Метод вычислений можно найти в работе [27], где он рассмотрен для другого типа физических систем, но содержит аналогию в основных этапах. Кроме того, уравнение (28) содержит нематический тензор $\pi^{\alpha\beta}$. Для ионов со спином, отличным от 1/2, антикоммутатор операторов спина отличен от символа Кронекера. Квантовое среднее этого оператора дает независимую физическую величину, называемую нематическим тензором $\pi^{\alpha\beta}(\mathbf{r}, t)$, которая существует наряду с плотностью спина:

$$\pi^{\alpha\beta} = \frac{1}{2} \int \Psi_S^\dagger \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) [(\hat{s}_i^\alpha \hat{s}_i^\beta + \hat{s}_i^\beta \hat{s}_i^\alpha) \Psi]_S dR. \quad (29)$$

Для спина 1/2 нематический тензор становится пропорциональным концентрации

$$\pi^{\alpha\beta} = (\hbar^2/4) \delta^{\alpha\beta} n,$$

и уравнение (28) упрощается к виду

$$\partial_t P^\alpha = \frac{\hbar^2}{6} \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} g_{u(\alpha)} [S^\gamma \partial_\beta n - n \partial_\beta S^\gamma]. \quad (30)$$

Отметим, что при рассмотрении гамильтониана (25) концентрация n не меняется во времени в соответствии с уравнением непрерывности, но может быть неоднородна в пространстве.

4.1. Уравнение эволюции плотности спина

При обосновании спин-токовой модели нами рассмотрен гамильтониан, содержащий несколько видов взаимодействий (5), тогда как основной результат этой работы (28) и (30) получен для эволюции под действием гамильтониана Гейзенберга. Приведем здесь соответствующее уравнение эволюции спина

$$\partial_t \mathbf{S} = \frac{1}{6} g_u [\mathbf{S}, \Delta \mathbf{S}], \quad (31)$$

где

$$g_u = \int \xi^2 U(\xi) d\xi.$$

Отметим, что строгий вывод уравнения движения

намагниченности/плотности спина (31) в континуальном приближении выполнен методом квантовой гидродинамики в работе [16].

4.2. Уравнение эволюции нематического тензора

Чтобы получить замкнутую систему уравнений квантовой гидродинамики, нам нужно вывести уравнение эволюции нематического тензора (29) под действием обменного взаимодействия (25):

$$\partial_t \pi^{\alpha\beta} = g_{0u} [\pi^{\alpha\gamma} \varepsilon^{\beta\gamma\sigma} + \pi^{\beta\gamma} \varepsilon^{\alpha\gamma\sigma}] S^\sigma, \quad (32)$$

где коэффициент

$$g_{0u} = \int U(\xi) d\xi.$$

Для спина 1/2 имеем $\pi^{\alpha\beta} = (\hbar^2/4) \delta^{\alpha\beta} n$, левая часть сводится к $\partial_t n$, а правая часть уравнения (32) обращается в нуль в соответствии с уравнением непрерывности для рассматриваемого гамильтониана.

5. ВЫВОДЫ

Предложено уравнение эволюции электрической поляризации в мультиферроике II типа, в котором поляризация ячейки кристалла формируется пропорционально векторному произведению спинов входящих в нее магнитных ионов. Уравнение выведено методом квантовой гидродинамики как часть замкнутой системы уравнений, включающих в себя уравнения эволюции плотности спина, нематического тензора и концентрации.

Дано обоснование спин-токовой модели поляризации мультиферроиков на основе метода квантовой гидродинамики. Плотность силы, действующей со стороны электрического поля на электрический дипольный момент, и плотность силы спин-орбитального взаимодействия имеют одинаковую структуру, приводящую к возможности баланса между этими силами. Это позволяет ввести эффективную плотность электрического дипольного момента, обусловленную спин-орбитальным взаимодействием и пропорциональную спиновому току. Использование спинового тока из уравнения эволюции спина дает окончательное макроскопическое выражение. На его основе можно восстановить оператор, соответствующий такому виду поляризации. В итоге мы получаем микроскопическое выражение, использованное для вывода уравнения эволюции поляризации.

Кроме того, получена интерпретация скалярного коэффициента, определяющего микроскопический электрический дипольный момент через обменный

интеграл, входящий в гамильтониан Гейзенберга. Такой вывод основан на использовании спин-токовой модели со спиновым током, обусловленным обменным взаимодействием в приближении гамильтониана Гейзенберга.

6. НАЛИЧИЕ ДАННЫХ

Вопрос о доступности данных не применим к этой статье, поскольку в этом исследовании, которое носит чисто теоретический характер, не создавались и не анализировались новые данные.

Финансирование. Исследование М. И. Трухановой выполнено при поддержке Российского научного фонда (грант № 22-72-00036), <https://rscf.ru/project/22-72-00036/>.

ПРИЛОЖЕНИЕ. О МЕТОДЕ ВЫВОДА УРАВНЕНИЯ ЭВОЛЮЦИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ

При усреднении коммутатора (27) по волновым функциям (26) мы проводим замену пространственных переменных в i -м, j -м и n -м аргументах при рассмотрении функции трех координат под интегралом (i -м и j -м при рассмотрении функции двух координат). Также проводится замена переменных в дельта-функции. Далее, мы используем то, что подынтегральные функции быстро убывают при увеличении относительного расстояния между ионами, что соответствует приближению взаимодействия ближайших соседей. Это свойство функций $U(r)$ и $\alpha(r)$ дает нам возможность разложить волновую функцию и δ -функцию по относительному расстоянию между частицами. Запишем соответствующее разложение волновой функции, ограничиваясь описанием случая, когда подынтегральные функции $U(r)$ и $\alpha(r)$ зависят от координат двух частиц. Это соответствует первой группе слагаемых в коммутаторе (27). Далее получаем

$$\begin{aligned} \Psi(R, t) &= \Psi(\dots, \mathbf{r}_i, \dots, \mathbf{r}_j, \dots, t) = \\ &= \Psi(R, t) = \Psi\left(\dots, \mathbf{R}_{ij} + \frac{1}{2}\mathbf{r}_{ij}, \dots, \mathbf{R}_{ij} - \frac{1}{2}\mathbf{r}_{ij}, \dots, t\right) \approx \\ &\approx \Psi(R, t) = \Psi(\dots, \mathbf{R}_{ij}, \dots, \mathbf{R}_{ij}, \dots, t) + \\ &+ \frac{1}{2}\mathbf{r}_{ij} \left(\frac{\partial}{\partial \mathbf{R}_{ij,1}} - \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}_{ij,2}} \right) \Psi(\dots, \mathbf{R}_{ij,1}, \dots, \mathbf{R}_{ij,2}, \dots, t) + \\ &+ \frac{1}{2^3} r_{ij}^\alpha r_{ij}^\beta \left(\frac{\partial}{\partial R_{ij,1}^\alpha} - \frac{\partial}{\partial R_{ij,2}^\alpha} \right) \times \\ &\times \left(\frac{\partial}{\partial R_{ij,1}^\beta} - \frac{\partial}{\partial R_{ij,2}^\beta} \right) \Psi(\dots, \mathbf{R}_{ij,1}, \dots, \mathbf{R}_{ij,2}, \dots, t), \quad (33) \end{aligned}$$

где

$$\mathbf{R}_{ij,1} = \mathbf{R}_{ij,2} = \mathbf{R}_{ij}$$

заданы для ионов, расположенных в i -й и j -й ячейках соответственно. Дополнительные индексы 1 и 2 использованы для уточнения, по какому аргументу многочастичной волновой функции происходит дифференцирование, так как в результате разложения в ряд Тейлора мы получили, что эти аргументы содержат одну и ту же переменную.

Отметим присутствие спиновых индексов в рассматриваемой многочастичной волновой функции (волновом спиноре)

$$\Psi(R, t) = \Psi_S(R, t) = \Psi_{\dots, s_i, \dots, s_j, \dots, s_n, \dots}(\dots, \mathbf{r}_i, \dots, \mathbf{r}_j, \dots, \mathbf{r}_n, \dots, t)$$

и действие спиновых операторов на этот волновой спинор

$$\hat{s}_i^\alpha \Psi(R, t) = (\hat{s}_i^\alpha \Psi)_S(R, t) = \hat{s}_{s_i s_i'}^\alpha \Psi_{\dots, s_i', \dots, s_j, \dots, s_n, \dots}(\dots, \mathbf{r}_i, \dots, \mathbf{r}_j, \dots, \mathbf{r}_n, \dots, t),$$

а также формулу для вычисления средних значений с учетом спинорной структуры

$$F = \int \Psi_S^\dagger \sum_{i,j \neq i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) (\hat{F}_{ij} \Psi)_S dR. \quad (34)$$

Изменение вида аргументов в координатной части волновой функции не дает изменения в форме действия спиновых операторов.

Отдельно отметим результат разложения δ -функции:

$$\begin{aligned} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) &= \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{ij} - (1/2)\mathbf{r}_{ij}) \approx \\ &\approx \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{ij}) - \frac{1}{2} \mathbf{r}_{ij} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{ij}) + \\ &+ \frac{1}{2^3} r_{ij}^\alpha r_{ij}^\beta \frac{\partial}{\partial r^\alpha} \frac{\partial}{\partial r^\beta} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{ij}) + \dots \end{aligned} \quad (35)$$

Также представим, как это разложение проявляется в структуре макроскопической функции:

$$\begin{aligned} F(\mathbf{r}, t) &= \int \Psi_S^\dagger \sum_{i,j \neq i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) (\hat{F}_{ij} \Psi)_S dR \approx \\ &\approx \int \Psi_S^\dagger \sum_{i,j \neq i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{ij}) (\hat{F}_{ij} \Psi)_S dR - \\ &- \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial r^\alpha} \int \Psi_S^\dagger \sum_{i,j \neq i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{ij}) r_{ij}^\alpha (\hat{F}_{ij} \Psi)_S dR + \\ &+ \frac{1}{2^3} \frac{\partial}{\partial r^\alpha} \frac{\partial}{\partial r^\beta} \int \Psi_S^\dagger \sum_{i,j \neq i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{ij}) r_{ij}^\alpha r_{ij}^\beta (\hat{F}_{ij} \Psi)_S dR, \end{aligned} \quad (36)$$

где производные по координате $\mathbf{r}$ можно вынести из-под интеграла. Отметим, что формула (36) представляет собой парциальный результат, и окончательное выражение для разложения функции

$F(\mathbf{r}, t)$ возникает при учете разложения волновых функций.

После учета короткодействующего характера взаимодействия возникает необходимость приближенного рассмотрения многочастичной волновой функции для получения замкнутого математического аппарата.

В общем случае, для многочастичной системы при сложной спиновой конфигурации, точная волновая функция не представляется в виде произведения функции, зависящей от пространственных координат, и функции, зависящей только от спиновых переменных. Общий вид функции определяется суперпозицией таких произведений, отдельные группы которых соответствуют разным значениям полного спина пары или тройки рассматриваемых частиц. Это особенно существенно для систем со спин-орбитальным взаимодействием, которое рассматривается в гамильтониане (5). Тем не менее мы ограничиваемся представлением волновой функции в виде произведения одночастичных волновых функций, полагая, что более детальное рассмотрение структуры волновой функции даст поправки к предлагаемому приближению типа «главного поля». Такое приближение оказалось достаточным при выводе вклада обменного взаимодействия Гейзенберга в уравнение Ландау–Лифшица [16]. Поэтому это приближение использовано, несмотря на учет спин-орбитального взаимодействия, которое является малым релятивистским эффектом. Отметим, что, как показано выше, поляризация обусловлена спин-орбитальным взаимодействием. Однако эволюция поляризации и других макроскопических функций происходит под влиянием набора взаимодействий, и спин-орбитальное взаимодействие можно считать малым по сравнению с ними.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. П. Пятаков, А. К. Звездин, *Магнитоэлектрические материалы и мультиферроики*, УФН **182**, 593 (2012), DOI: 10.3367/UFNr.0182.201206b.0593 [A. P. Pyatakov and A. K. Zvezdin, *Magnetoelectric and Multiferroic Media*, Phys. Usp. **55**, 557 (2012), DOI: 10.3367/UFNe.0182.201206b.0593].
2. Y. Tokura, S. Seki, and N. Nagaosa, *Multiferroics of Spin Origin*, Rep. Prog. Phys. **77**, 076501 (2014), DOI: 10.1088/0034-4885/77/7/076501.
3. H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, *Spin Current and Magnetoelectric Effect in Noncolli-*

- near Magnets, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005), DOI: 10.1103/PhysRevLett.95.057205.
4. M. Mostovoy, *Ferroelectricity in Spiral Magnets*, Phys. Rev. Lett. **96**, 067601 (2006), DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.067601.
 5. L. S. Kuz'menkov and S. G. Maksimov, *Quantum Hydrodynamics of Particle Systems with Coulomb Interaction and Quantum Bohm Potential*, Theor. Mat. Phys. **118**, 227 (1999).
 6. L. S. Kuz'menkov, S. G. Maksimov, and V. V. Fedoseev, *Microscopic Quantum Hydrodynamics of Systems of Fermions: Part I*, Theor. Mat. Phys. **126**, 110 (2001).
 7. P. A. Andreev, I. N. Mosaki, and M. I. Trukhanova, *Quantum Hydrodynamics of the Spinor Bose–Einstein Condensate at Non-Zero Temperatures*, Phys. Fluids **33**, 067108 (2021), DOI: 10.1063/5.0053035.
 8. P. Andreev, *Measuring the Coupling Constant of Polarized Fermions via Sound Wave Spectra*, Theor. Mat. Phys. **213**, 1762 (2022), DOI: 10.1134/S0040577922120091.
 9. T. Koide, *Spin-Electromagnetic Hydrodynamics and Magnetization Induced by Spin-Magnetic Interaction*, Phys. Rev. C **87**, 034902 (2013).
 10. А. Ахиезер, В. Барьяхтар, С. Пелетминский, *Спиновые волны*, Наука, Москва (1967).
 11. Y. Kawaguchi and M. Ueda, *Theory of Spin-2 Bose–Einstein Condensates: Spin Correlations, Magnetic Response, and Excitation Spectra*, Phys. Rep. **520**, 253 (2012).
 12. D. M. Stamper-Kurn and M. Ueda, *Spinor Bose–Einstein Condensates*, Rev. Mod. Phys. **85**, 1191 (2013).
 13. M. I. Trukhanova and P. Andreev, *A New Microscopic Representation of the Spin Dynamics in Quantum Systems with the Coulomb Exchange Interactions*, Moscow University Physics Bulletin, **79**, 232 (2024), DOI: 10.3103/S0027134924700255, arXiv:2305.03826.
 14. J. Hu, *Microscopic Origin of Magnetoelectric Coupling in Noncollinear Multiferroics*, Phys. Rev. Lett. **100**, 077202 (2008), DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.077202.
 15. V. B. Berestetskii, E. M. Lifshitz, and L. P. Pitaevskii, Vol. 4, *Quantum Electrodynamics*, Butterworth–Heinemann (1982).
 16. П. А. Андреев, М. И. Труханова, *Квантовогидродинамическое представление обменного взаимодействия в теории описания магнитоупорядоченных сред*, Вестник Моск. унив., сер. 3, физика, астрономия **78**(4), 2340103 (2023), DOI: 10.55959/MSU0579-9392.78.2340103.
 17. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 9, *Статистическая физика*, ч. 2, *Теория конденсированного состояния*, Физматлит, Москва (2001).
 18. Д. И. Хомский, *Мультиферроики и не только: электрические свойства различных магнитных текстур*, ЖЭТФ **159**, 581 (2021), DOI: 10.31857/S0044451021040015 [D. I. Khomskii, *Multiferroics and Beyond: Electric Properties of Different Magnetic Textures*, JETP **132**, 482 (2021)].
 19. S. Dong, J.-M. Liu, S.-W. Cheong, and Z. Ren, *Multiferroic Materials and Magnetoelectric Physics: Symmetry, Entanglement, Excitation, and Topology*, Adv. Phys. **64**, 519 (2015), DOI: 10.1080/00018732.2015.1114338.
 20. T. Goto, T. Kimura, G. Lawes, A. Ramirez, and Y. Tokura, *Ferroelectricity and Giant Magnetocapacitance in Perovskite Rare-Earth Manganites*, Phys. Rev. Lett. **92**, 257201 (2004).
 21. A. Munoz, J. Alonso, M. T. Casais, M. J. Martinez-Lope, J. L. Martinez, and M. T. Fernandez-Diaz, *The Magnetic Structure of YMnO₃ Perovskite Revisited*, J. Phys.: Condens. Matter **14**, 3285 (2002).
 22. V. Yu. Pomjakushin, M. Kenzelmann, A. Donni, A. B. Harris, T. Nakajima, S. Mitsuda, M. Tachibana, L. Keller, J. Mesot, and H. Kitazawa, *Evidence for Large Electric Polarization from Collinear Magnetism in TmMnO₃*, New J. Phys. **11**, 043019 (2009), DOI: 10.1088/1367-2630/11/4/043019.
 23. H. Kimura, Y. Sakamoto, M. Fukunaga, H. Hiraka, and Y. Noda, *Control of Magnetic Interaction and Ferroelectricity by Nonmagnetic Ga Substitution in Multiferroic YMn₂O₅*, Phys. Rev. B **87**, 104414 (2013), <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.104414>.

24. P. A. Andreev and L. S. Kuz'menkov, *On the Equation of State for the "Thermal" Part of the Spin Current: The Pauli Principle Contribution in the Spin Wave Spectrum in a Cold Fermion System*, Prog. Theor. Exp. Phys. **2019**, 053J01 (2019), DOI: 10.1093/ptep/ptz029.
25. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 3, *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Наука, Москва (1974).
26. I. A. Sergienko, C. Sen, and E. Dagotto, *Ferroelectricity in the Magnetic E-Phase of Orthorhombic Perovskites*, Phys. Rev. Lett. **97**, 227204 (2006), DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.227204.
27. P. A. Andreev, *Extended Hydrodynamics of Degenerate Partially Spin Polarized Fermions with Short-Range Interaction up to the Third Order by Interaction Radius Approximation*, Laser Phys. **31**, 045501 (2021), <https://doi.org/10.1088/1555-6611/abe717>.
28. A. S. Moskvina and S.-L. Drechsler, *Microscopic Mechanisms of Spin-Dependent Electric Polarization in 3d Oxides*, Eur. Phys. J. B **71**, 331 (2009), DOI: 10.1140/epjb/e2009-00264-6.

СПЕКТРОСКОПИЯ АНДРЕЕВСКОГО ОТРАЖЕНИЯ FeSe: АНАЛИЗ В РАМКАХ ДВУХЗОННОЙ МОДЕЛИ

В. А. Степанов^{a*}, М. В. Голубков^a, А. В. Садаков^a, А. С. Усольцев^a, Д. А. Чареев^{b,c,d}

^a Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^b Институт экспериментальной минералогии им. Д. С. Коржинского Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

^c Государственный университет «Дубна»
141982, Дубна, Московская обл., Россия

^d Физико-технологический институт Уральского федерального университета
620002, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 11 апреля 2024 г.,
после переработки 20 мая 2024 г.
Принята к публикации 27 мая 2024 г.

Измерены спектры андреевского отражения $\sigma_{NS}(V, T) = (dI/dV)(V, T)$ точечных контактов Ag/FeSe в диапазоне температур $T = 4\text{--}14$ К. Анализ спектров в рамках двухзонной модели с параметрами порядка s -симметрии выявил две энергетические щели Δ_i ($i = 1, 2$) и позволил построить их зависимости от температуры. Аппроксимация зависимостей $\Delta_i(T)$ двухзонной изотропной моделью в «чистом» пределе показала, что для их описания необходим учет как внутризонных, так и межзонных взаимодействий сверхпроводящих конденсатов. Такое описание соответствует s - или s^{++} -симметрии параметра порядка.

DOI: 10.31857/S0044451024110105

1. ВВЕДЕНИЕ

Открытие в 2008 г. сверхпроводимости в FeSe, простейшем слоистом сверхпроводнике на основе железа, вызвало огромный интерес, который не исчез и в настоящее время [1, 2]. Теоретические и экспериментальные исследования свойств данного необычного сверхпроводника представлены в множестве обзоров, например [2–5]. Отметим несколько важных для нас точно установленных свойств FeSe: 1) многозонность (две или даже три зоны) [6, 7]; 2) сильная анизотропия энергетических щелей [8–10]; 3) возможность аппроксимации результатов измерений двухзонной моделью с s -симметрией щелей [10–15]. Амплитуды энергетических щелей FeSe и их зависимости от импульса были измерены методами 1) фотоэмиссионной спектроскопии с угловым разрешением (ARPES); 2) туннельной спектроскопии (STM); 3) измерения теплопроводности; 4) по глубине проникновения магнитного поля; 5) с помощью спектроскопии андреевского отражения [8–15]. Значительно меньше работ посвящено измерениям и, особенно, анализу зависимостей энергетических

щелей от температуры $\Delta_i(T)$ ($i = 1, 2$) в рамках многозонной модели с определением констант спаривающих взаимодействий

$$\lambda_{ij} = V_{ij}N_j, \quad i, j = 1, 2,$$

где V_{ij} — сила взаимодействия, N_j — плотность состояний на уровне Ферми [11, 15]. Многозонность значительно усложняет измерение энергетических щелей. В однозонных сверхпроводниках амплитуды $\Delta(T)$ можно измерить непосредственно по положению пиков в проводимости туннельных контактов сверхпроводник–изолятор–сверхпроводник (SIS) и сверхпроводник–изолятор–нормальный металл (SIN) или микрозакороток нормальный металл–сверхпроводник (NS) в режиме андреевского отражения [16, 17]. В многозонных сверхпроводниках проводимости разных зон суммируются, и для разделения энергетических щелей Δ_i приходится использовать теоретические модели, учитывающие их число и симметрии [18–20]. Это относится и к непрямым методам измерений энергетических щелей, в которых оценка $\Delta_i(T)$ проводится по зависящим от энергетической щели характеристикам, например, температурным зависимостям теплоемкости [10], глубины проникновения магнитного поля $\lambda_{ab}^{-2}(T)$ [11], критического магнитного поля $H_{c2}(T)$ [15].

* E-mail: stepanov@lebedev.ru

Исследования авторов работы [11] глубины проникновения магнитного поля в кристаллы FeSe методом μsR -спектроскопии выявили две энергетические щели, $\Delta_1(0) = 1.3$ мэВ и $\Delta_2(0) = 0.5$ мэВ, с разными критическими температурами $T_{c1,2}$ и зависимостями $\Delta_{1,2}(T)$ типа БКШ (Бардин–Купер–Шриффер) в практически не влияющих друг на друга зонах. Измерения зависимостей $\Delta_{1,2}(T)$ FeSe в работе [12] методом многократных андреевских отражений в контактах на микротрещине показали наличие двух энергетических щелей (без узлов): $\Delta_1(0) = 2.8$ мэВ ($T_{c1} = 9.7$ К) и $\Delta_2(0) = 0.8$ мэВ ($T_{c2} = 6$ –7 К), и близкие к измеренным в работе [11] зависимости $\Delta_{1,2}(T)$. Проведенные авторами работ [13, 14] измерения спектров андреевского отражения «мягких» точечных контактов (ТК) [18–20] Ag/FeSe (несверхпроводящим электродом служил токопроводящий клей с Ag в качестве наполнителя) дали $\Delta_1(0) \approx 1.8$ мэВ и $\Delta_2(0) \approx 1.0$ мэВ с $T_{c1} = T_{c2}$ и близкие к БКШ зависимости $\Delta_{1,2}(T)$. Из измерений в работах [11–14] следует практически полное отсутствие или очень слабое межзонное взаимодействие в FeSe. В то же время, изучение температурных зависимостей $H_{c2}(T)$ [15] в магнитном поле разной ориентации с индукцией до 38 Тл при температурах до $T/T_c \approx 0.3$ показало, что полученные результаты можно аппроксимировать теоретическими зависимостями в рамках двухзонной изотропной модели в «чистом» пределе при преобладании межзонного рассеяния.

В нашей работе изучены спектры андреевского отражения $\sigma_{NS}(V, T)$ стабильных мягких ТК Ag/FeSe в диапазоне температур $T = 4$ –14 К. Целью работы являлись проверка применимости двухзонной модели в «чистом» пределе [21–24] с s -симметриями энергетических щелей для анализа температурных зависимостей $\Delta_i(T)$ ($i = 1, 2$) в FeSe, определение констант внутризонных и межзонных взаимодействий и оценка симметрии параметра порядка.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В работе использовались несколько монокристаллических пластин FeSe размерами до 1.2×0.7 мм² и толщинами 0.08–0.03 мм, полученных расслаиванием одного относительно толстого кристалла. Высококачественные монокристаллы FeSe_{1-x} ($x \approx 0.04$) были выращены из раствора–расплава порошка Fe и кусочков Se (Fe : Se = 1 : 0.94) в смеси AlCl₃ : KCl = 2 : 1 в откачанной до 10^{-4} бар и запаянной кварцевой ампуле при постоянном температурном градиенте [25, 26]. Измерения температурных зависимостей сопротивления при токе вдоль

плоскости ab кристалла, $R_{ab}(T)$, и магнитной восприимчивости $\chi(T)$ проводились в изготовленных нами криогенных вставках в транспортный гелиевый дьюар при минимальных токах и магнитных полях.

Описание методов создания ТК, измерений их проводимости и электронных компонент экспериментальной установки приведены в работах [18–20, 27–29]. Классический метод создания ТК — прижатие заостренной металлической проволоки к другому металлу. В нашей работе спектры андреевского отражения — зависимости проводимости баллистических ($d \ll l$, где d — диаметр контакта, l — длина свободного пробега) микрозакоротов (микроконтактов) между сверхпроводящим FeSe и несверхпроводящим Ag от напряжения, $\sigma_{NS}(V, T)$, были измерены на мягких ТК. ТК создавались на тонком ребре монокристалла, которое скалывалось непосредственно перед нанесением капли токопроводящего клея. Диаметр контакта не превышал 0.1 мм. Баллистическая микрозакоротка ТК Ag/FeSe должна иметь диаметр $d < 120$ нм и, соответственно, сопротивление более 5 Ом [30]. Мягкие ТК состояли из множества баллистических микрозакоротов между зернами Ag размерами 2–10 мкм и кристаллом [19, 31]. Это позволяло проводить спектроскопические измерения на контактах с сопротивлением 1–2 Ом, как и в работах [13, 14]. Высокая стабильность мягких ТК дала возможность точно измерить проводимости $\sigma_{NS}(V, T)$ при разных температурах и критическую температуру контакта T_c^A — температуру, при которой на зависимости $\sigma_{NS}(V, T)$ исчезает характерная структура, связанная с андреевским отражением. Большая разница удельных сопротивлений вдоль плоскости ab и оси c FeSe ($\rho_c/\rho_{ab} \sim 500$ [36]) приводила к тому, что, несмотря на неровную поверхность скола монокристаллов, транспортный ток ТК всегда тек вдоль плоскости ab образца.

Вольт-амперные характеристики (ВАХ) контактов записывались с помощью мультиметра 6221 и источника тока 2182A фирмы Keithley. Проводимости были получены численным дифференцированием ВАХ. Температура измерялась RuO-термометром, установленным на медном основании вблизи контакта, и стабилизировалась нагревателем с точностью не хуже 0.01 К. Управление нагревателем осуществлялось LabView-программой, встроенной в подпрограмму для измерений температуры. Проводимости $\sigma_{NS}(V, T)$, измеренные при разных температурах, нормировались на проводимость в нормальном состоянии, $\sigma_N(V)$, измеренную при темпе-

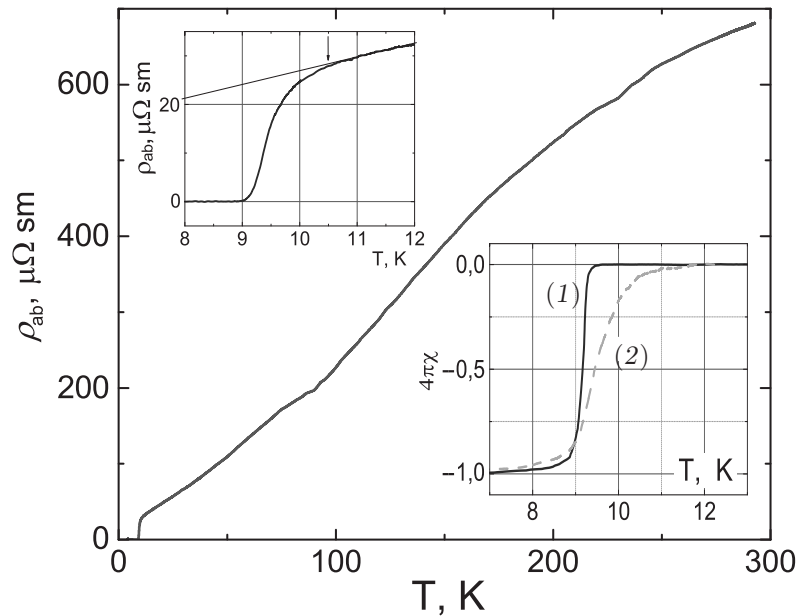


Рис. 1. Зависимости удельного сопротивления $\rho_{ab}(T)$ одной из пластин FeSe в диапазоне температур $T = 4\text{--}300$ К. При $T \approx 90$ К видна особенность, связанная со структурным переходом. На вставках показаны зависимости $\rho_{ab}(T)$ и магнитной восприимчивости $\chi(T)$ (кривая 1) того же образца вблизи температуры перехода в сверхпроводящее состояние. Штрихами на нижней вставке в одном масштабе с зависимостью 1 показана зависимость $\chi(T)$ кристалла FeSe, интеркалированного органическими растворителями токопроводящего Ag-клея (кривая 2). Хорошо виден сдвиг начала перехода в сверхпроводящее состояние в сторону большей температуры

ратуре, на несколько десятых кельвина большей T_c^A . Нормированные проводимости

$$\sigma(V, T) = \sigma_{NS}(V, T) / \sigma_N(V)$$

аппроксимировались теоретическими зависимостями, вычисленными по двухзонной модели БТК (Блондер–Тинкхэм–Клапвейк) с параметрами уширения Γ (БТК- Γ) [18–20]. Подгонка вычисленных проводимостей к измеренным проводилась с помощью программы `curvefit.m` из пакета MatLab по критерию минимума суммы квадратов отклонений измеренных и вычисленных точек. Это дало возможность определить величины и температурные зависимости энергетических щелей FeSe $\Delta_i(T)$ ($i = 1, 2$), характеристик контактов $Z_i(T)$ (параметр силы туннельного барьера), $\Gamma_i(T)$ (параметр уширения) и w (вклад первой зоны в полную проводимость контакта).

Для аппроксимации температурных зависимостей энергетических щелей $\Delta_i(T)$ мы использовали простую модель двухзонного сверхпроводника в чистом пределе [21–24], которая позволяла качественно определить константы λ_{ij} межзонного и внутризонного взаимодействий конденсатов, амплитуды энергетических щелей при $T = 0$ К и критическую температуру T_c^Δ кристалла при $\Delta_i(T_c^\Delta) = 0$.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показаны зависимости удельного сопротивления $\rho_{ab}(T)$ и магнитной восприимчивости $\chi(T)$ (кривая 1) одной из пластин FeSe. Они демонстрируют типичные особенности, видимые при охлаждении кристаллов [10, 32–35]. Критическая температура, ширина перехода в сверхпроводящее состояние, удельное сопротивление, отношение сопротивлений при 300 и 11 К равны соответственно $T_c = 9.3$ К, $\Delta T_c = 0.3$ К (по магнитной восприимчивости), $\rho(11\text{ К}) \approx 28$ мкОм · см, $R(300\text{ К})/R(11\text{ К}) = 23$. Эти величины близки к измеренным в работах [10, 32–36] и доказывают высокое качество образцов.

ТК создавался между каплей токопроводящего клея (взвесь микрокристаллов Ag в смеси органических растворителей [37]) и кристаллом FeSe. Известно, что кристаллический FeSe легко интеркалировался щелочными металлами и органическими растворителями. Критическая температура при этом увеличивалась [38]. Органические растворители токопроводящего клея могли изменить свойства поверхности образца в районе капли. Для проверки влияния токопроводящего Ag-клея на FeSe неболь-

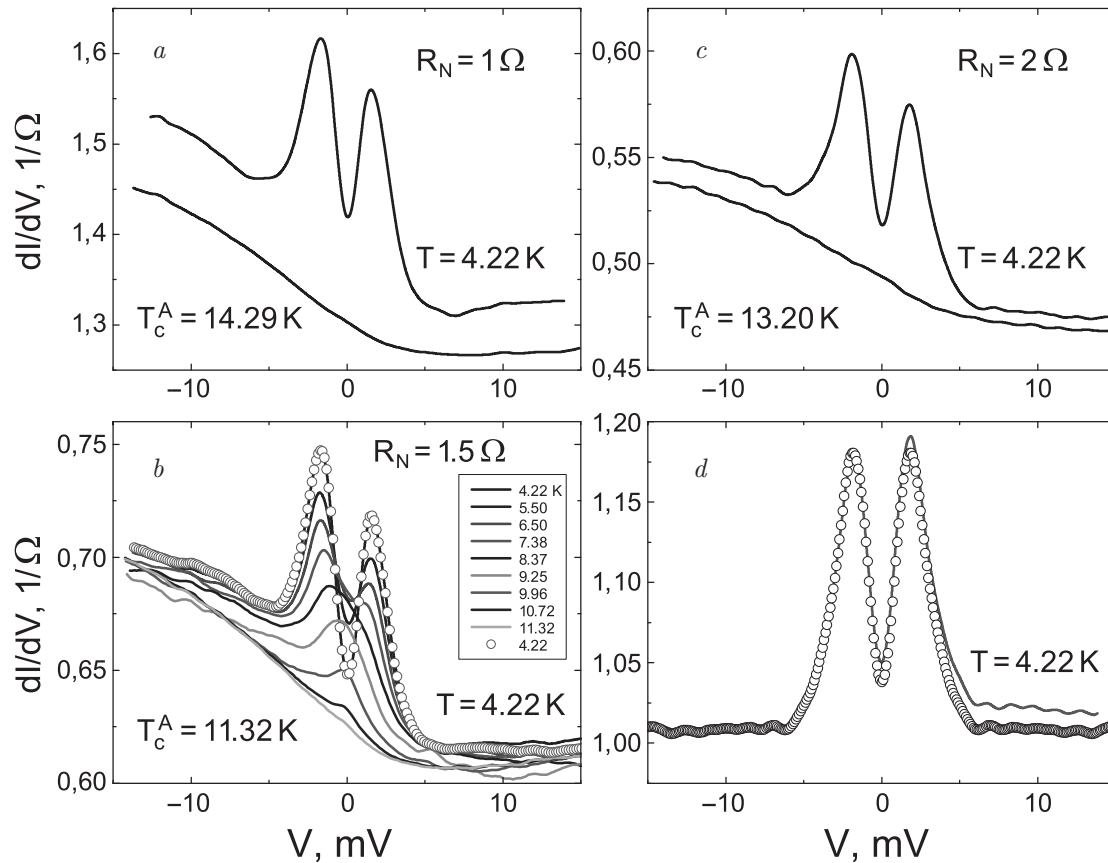


Рис. 2. Записи проводимостей $\sigma_{NS}(V, T) = dI/dV$ трех мягких ТК Ag/FeSe с сопротивлениями $R_N \approx 1$ (a), 1.5 (b), 2 (c) Ом ($R_N = 0.5[R_N(-10 \text{ мВ}) + R_N(+10 \text{ мВ})]$) при $T = 4.22 \text{ К}$ и при критической температуре андреевского контакта T_c^A . Показаны также (b) записи нескольких проводимостей при разных температурах. Стабильность контакта доказывает совпадение проводимостей, записанных при 4.2 К перед повышением температуры и после окончания записи температурной зависимости. На рис. d линией красного цвета показана нормированная проводимость ТК (b) $\sigma(V, 4.22 \text{ К}) = \sigma_{NS}(V, 4.22 \text{ К})/\sigma_N(V, 11.3 \text{ К})$ и символами — симметризованная проводимость этого контакта. Небольшая асимметрия, осцилляции и щелевые пики сохранялись при нормировании

шой (примерно $0.1 \times 0.2 \text{ мм}^2$) кристалл был помещен в каплю растворителя на время около 15 мин (среднее время от нанесения капли клея на кристалл при изготовлении ТК до его охлаждения). Зависимость магнитной восприимчивости FeSe, интеркалированного растворителем клея, приведена нижней вставке к рис. 1 штриховой линией 2 рядом с зависимостью $\chi(T)$ основного образца (кривая 1). Для удобства сравнения обе зависимости даны в одном масштабе. Видно, что растворитель Ag-клея вызвал увеличение ширины перехода в сверхпроводящее состояние в результате роста температуры начала перехода примерно на 2 К. Это доказало, что под действием растворителя на поверхности FeSe образуется слой с более высокой по сравнению с исходным кристаллом критической температурой. Температура начала перехода в сверхпроводящее состояние интеркалированного слоя для разных образцов достигала 14.5 К.

На рис. 2a, b, c приведены записи проводимостей $\sigma_{NS}(V, T)$ нескольких ТК с сопротивлениями $R_N \approx 1, 1.5, 2$ Ом при $T = 4.22 \text{ К}$ и $T_c^A \approx 11.3\text{--}14.3 \text{ К}$. Проводимости, записанные при T_c^A , являются проводимостями ТК в нормальном состоянии, $\sigma_N(V)$. На рис. 2b показаны записи нескольких проводимостей ТК с сопротивлением $R_N \approx 1.5$ Ом при разных температурах. Стабильность контакта доказывает совпадение проводимостей, записанных при 4.22 К перед повышением температуры до T_c^A и после охлаждения ТК до первоначальной температуры. Все особенности, видимые на зависимостях $\sigma_{NS}(V, T)$ ТК, хорошо воспроизводились. Проводимости несимметричны относительно точки $V = 0 \text{ мВ}$. Эта особенность $\sigma_{NS}(V, T)$ мягких ТК на FeSe отмечалась и в работах [13, 14] и связана, по-видимому, с полупроводниковой проводимостью интеркалированного поверхностного слоя FeSe [30, 39]. Подобная асимметрия $\sigma_{NS}(V, T)$ на-

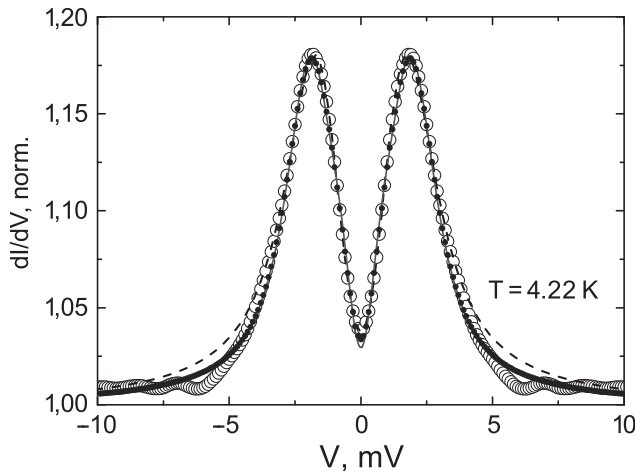


Рис. 3. Символы — измеренная симметризованная проводимость контакта $\sigma(V, 4.22 \text{ K})$ (см. рис. 2d). Линии — аппроксимации измеренной проводимости. Штриховая линия — аппроксимация однозонной моделью БТК-Г [17, 19] $\sigma(V, T, \Delta, \Gamma, Z)$. Линия красного цвета — проводимость, вычисленная в рамках стандартной двухзонной модели $\sigma(V, T) = \sigma_1(V, T, \Delta_1, \Gamma_1, Z_1)w + \sigma_2(V, T, \Delta_2, \Gamma_2, Z_2) \times (1 - w)$ [18–20]. Точки синего цвета — проводимость, вычисленная по упрощенной двухзонной модели [13, 14]

блюдалась также при исследованиях легированных $(\text{Li}_{0.8}\text{Fe}_2)\text{OH}$ кристаллов FeSe ($T_c = 40 \text{ K}$) [40] с помощью туннельного микроскопа (STM). Зависимости $\sigma_{NS}(V, T)$ имели типичную для андреевского отражения двугорбую структуру. Отметим, что, как и в других исследованиях андреевского отражения на FeSe, на измеренных проводимостях ясно видны только пики, связанные с большой щелью Δ_1 при напряжении $|V| = \Delta_1/e \approx 1.8 \text{ мВ}$ [12–14]. При повышении температуры пики сближались и сливались при $T \approx 8 \text{ K}$. Видно, что при увеличении температуры проводимости контактов уменьшались примерно на 2% при T_c^A , заметно превышавших критическую температуру FeSe (см. рис. 1). Рост T_c^A до 13 K наблюдался при изучении проводимости мягких ТК и в работах [13, 14]. Очевидно, что величина T_c^A мягких ТК отражала критическую температуру интеркалированного поверхностного слоя FeSe, так как при $T > 10.5 \text{ K}$ только этот слой на поверхности FeSe оставался частично сверхпроводящим. Уменьшение проводимости ТК при увеличении температуры могло быть связано как с нагревом ТК [19], так и с переходом части «сэндвича» из интеркалированного слоя FeSe и «чистого» FeSe в нормальное состояние при $T > 10.5 \text{ K}$. Обсуждение этого эффекта приведено в конце данного раздела. Подобные зависимости $\sigma_{NS}(V, T)$ были получены на всех исследованных ТК Ag/FeSe с сопротивлениями $R_N^{opt} = 0.7\text{--}2.5 \text{ Ом}$.

При сопротивлениях ТК, больших или меньших R_N^{opt} , пики при $|V| = \Delta_1/e$ на $\sigma_{NS}(V, T)$ не разрешались при $T \geq 4.22 \text{ K}$. На рис. 2d сплошной линией показана нормированная проводимость ТК $\sigma(V, T) = \sigma_{NS}(V, 4.22 \text{ K})/\sigma_N(V, 11.32 \text{ K})$. Для устранения асимметрии, которая мешала аппроксимации $\sigma(V, T)$, проводимости, как обычно, симметризовались [8, 13, 14]. Симметризованная нормированная проводимость ТК показана на рис. 2d символами. Все особенности, видимые на зависимости $\sigma_{NS}(V, T)$, сохранялись при нормировании и симметризации.

На рис. 3 показано применение нескольких теоретических моделей для аппроксимации измеренной проводимости. Символы — измеренная при $T = 4.22 \text{ K}$, нормированная и симметризованная проводимость $\sigma(V, 4.22 \text{ K})$ (см. рис. 2d). Линиями приведены проводимости, аппроксимирующие измеренную. Штриховая линия — проводимость $\sigma(V, T, \Delta, \Gamma, Z)$, вычисленная в рамках однозонной теории БТК-Г [17, 19] (3 свободных параметра), $\Delta = 1.54 \text{ мэВ}$ — энергетическая щель, $\Gamma = 0.57 \text{ мэВ}$ — параметр уширения, $Z = 0.64$ — параметр туннельного барьера. Параметр $\Gamma = \hbar/\tau$, где τ — время жизни квазичастиц был введен для учета конечного времени жизни электронов в металлах туннельного контакта. Позднее этот параметр был введен в формулы, описывающие андреевское отражение [19]. С формальной точки зрения, в Γ входят все источники, приводящие к уширению зависимости $\sigma(V, T)$: время жизни электронов; рассеяние электронов на поверхности раздела металлов контакта; анизотропия энергетической щели; тепловые и электромагнитные шумы. Величина $Z = U_0/\hbar v_F$ в теории БТК определяла прозрачность туннельного барьера (U_0 — высота барьера, v_F — скорость электронов на поверхности Ферми). Проводимость ТК, сверхпроводящим электродом которого является многозонный сверхпроводник, равна сумме проводимостей в разные зоны. При использовании двухзонной модели для вычисления проводимости ТК в зависимость $\sigma(V, T)$ вводился параметр w , определяющий вклад в проводимость первой зоны. На рис. 3 линия красного цвета — проводимость, вычисленная с помощью стандартной двухзонной модели [18–20] (7 свободных параметров):

$$\sigma(V, T) = \sigma_1(V, T, \Delta_1, \Gamma_1, Z_1)w + \sigma_2(V, T, \Delta_2, \Gamma_2, Z_2)(1 - w),$$

где σ_1 и σ_2 — проводимости андреевского контакта в первую и вторую зоны, $\Delta_1 = 2.04 \text{ мэВ}$, $\Gamma_1 = 0.21 \text{ мэВ}$, $Z_1 = 0.52$, $\Delta_2 = 0.21 \text{ мэВ}$, $\Gamma_2 = 0$,

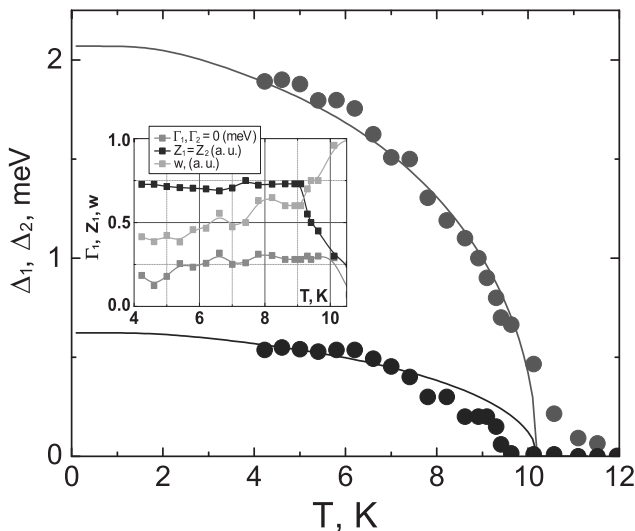


Рис. 4. Символы — энергетические щели Δ_1 и Δ_2 ($\Delta_1 > \Delta_2$) при разных температурах, полученные в результате аппроксимации проводимостей ТК (рис. 3) упрощенной двухзонной моделью. На вставке показаны зависимости от температуры параметров аппроксимации Γ_1 , Z_1 , w ($\Gamma_2 = 0$, $Z_2 = Z_1$). Линии — результат аппроксимации зависимостей $\Delta_1(T)$ и $\Delta_2(T)$ в диапазоне температур 4.2–9.5 К двухзонной моделью Москаленко–Зуля (2) [21–24]

$Z_2 = 1.7$, $w = 0.41$. Точки синего цвета — проводимость, вычисленная по упрощенной двухзонной модели [13, 14] (5 свободных параметров), $\Delta_1 = 1.89$ мэВ, $\Delta_2 = 0.53$ мэВ, $\Gamma_1 = 0.18$ мэВ, $w = 0.42$, $Z_1 = Z_2 = 0.72$, $\Gamma_2 = 0$.

Видно, что в диапазоне напряжений $|V| \leq 3$ мВ все три модели хорошо описывали измеренную проводимость $\sigma(V, 4.22\text{ К})$. Однако в более широком диапазоне напряжений двухзонные модели описывали проводимость значительно лучше. Проводимости, вычисленные по стандартной и упрощенной двухзонным моделям при $T = 4.22$ К, неразличимы во всем диапазоне напряжений. Пики, отвечающие второй энергетической щели $\Delta_2 \approx \pm 0.5$ мВ [10], размыты процессами уширения и не разрешались на измеренных зависимостях, как и работах других авторов [13, 14]. При отсутствии пиков, связанных с Δ_2 , семь свободных параметров при аппроксимации зависимостей $\sigma(V, T)$ приводили к нефизичному росту величин $\Delta_{1,2}$ при $T > 6$ К. Именно по этой причине мы аппроксимировали измеренные проводимости упрощенной двухзонной моделью, как и в работах [13, 14].

Амплитуды энергетических щелей Δ_1 и Δ_2 в FeSe в зависимости от температуры ($T = 4.22$ –12 К), полученные в результате аппроксимации проводи-

мостей упрощенной двухзонной моделью, приведены на рис. 4 символами. Температура, при которой $\Delta_1(T) = 0$ ($T \approx 12$ К), определялась критической температурой интеркалированного поверхностного слоя кристалла FeSe. В диапазоне $T = 4.2$ –9.5 К величина $\Delta_1(T)$ изменялась плавно, без резких скачков. Это указывало на отсутствие нагрева ТК при повышении температуры [41]. При $T > 9.5$ К знак кривизны зависимости $\Delta_1(T)$ изменялся на противоположный. Температурная зависимость $\Delta_1(T)$ имела форму, характерную для тонкой сверхпроводящей пленки на сверхпроводнике с меньшей, чем у пленки, критической температурой [42]. Это служило еще одним подтверждением наличия тонкого интеркалированного слоя на поверхности кристалла. Температуру, при которой на зависимости $\sigma(V, T)$ исчезала щель Δ_2 , трудно точно определить вследствие малой величины и большого уширения.

На вставке к рис. 4 показаны зависимости от температуры параметров аппроксимации Γ_1 (символы зеленого цвета), Z_1 (символы фиолетового цвета), w (символы голубого цвета). Средние арифметические величины параметров в диапазоне $T = 4.2$ –9 К и их отклонения от среднего равны $\Gamma_1 = 0.25 \pm 0.04$ мэВ, $Z_1 = 0.72 \pm 0.01$, $w = 0.51 \pm 0.08$. Безразмерный параметр $Z_1(T)$ практически не изменялся с ростом температуры до 9 К, как и в работе [13]. Параметр уширения $\Gamma_1(T)$, за исключением диапазона температур 4–5 К, также не сильно зависел от температуры. Флуктуации $\Gamma_1(T)$ и w в диапазоне $T = 4$ –5 К могли быть вызваны случайным шумом. Относительно большой дрейф с температурой имел параметр w , характеризующий вклад в проводимость ТК первой зоны. Основной причиной заметных отклонения параметров Γ_1 и w от средних величин являлась недостаточная обусловленность обратной задачи при вычислениях проводимостей. При $T > 9$ К начинался переход кристалла в нормальное состояние (см. рис. 1), поэтому параметры Γ_1 , Z_1 , w начинали резко изменяться с температурой.

Аппроксимация измеренных зависимостей $\Delta_{1,2}(T)$ в диапазоне температур 4.2–9.5 К проводилась с помощью простой двухзонной модели Москаленко–Зуля [21–24], учитывающей взаимодействие сверхпроводящих конденсатов зон (λ^{00} -модель с минимальным числом свободных параметров [23]):

$$\Delta_i = \sum_{j=1,2} \lambda_{ij} \Delta_j F(\Delta_j), \quad i = 1, 2, \quad (1)$$

где

$$\lambda_{ij} = V_{ij} N_j(0),$$

$$F(\Delta_i) = \int_0^{w_D} \frac{dE}{\sqrt{E^2 + \Delta_i^2}} \operatorname{th} \frac{\sqrt{E^2 + \Delta_i^2}}{2k_B T},$$

где E — энергия, k_B — постоянная Больцмана, w_D — характерная энергия фононного спектра, в качестве которой берут энергию Дебая, $w_D = 13.67$ мэВ (в FeSe температура Дебая $T_D = 159$ К измерена в работе [43]), или энергию конца фононного спектра 40 мэВ, измеренную в [44]. Из уравнений (1) следуют уравнения для вычисления температурных зависимостей энергетических щелей и критической температуры образца T_c^A в точке, где $\Delta(T_c^A) = 0$:

$$\begin{aligned} \Delta_1(1 - \lambda_{11}F(\Delta_1)) - \Delta_2\lambda_{12}F(\Delta_2) &= 0, \\ \Delta_2(1 - \lambda_{22}F(\Delta_2)) - \Delta_1\lambda_{21}F(\Delta_1) &= 0. \end{aligned} \quad (2)$$

Мы аппроксимировали измеренные зависимости $\Delta_i(T)$ как с $w_D = 13.67$ мэВ, так и с $w_D = 40$ мэВ. Уравнения (2) решались численно. При подборе констант λ_{ij} для аппроксимации измеренных величин $\Delta_1(T)$ и $\Delta_2(T)$ мы стремились сделать минимальной сумму квадратов отклонений измеренных точек от вычисленных зависимостей. Результаты этой работы показаны на рис. 4 линиями. Критические температуры зон 1 и 2 равны. Критическая температура, найденная в точке $\Delta_i(T) = 0$, составляет $T_c^A = 10.2$ К. Эта температура совпала с температурой начала перехода кристалла в сверхпроводящее состояние по зависимости $\rho_{ab}(T)$ (см. рис. 1). Энергетические щели зон при $T = 0$ К равны

$$\begin{aligned} \Delta_1(0) &= 2.09 \text{ мэВ}, \quad \Delta_2(0) = 0.63 \text{ мэВ}, \\ \Delta_1(0)/k_B T_c^A &= 4.7, \quad \Delta_2(0)/k_B T_c^A = 1.4. \end{aligned}$$

Константы внутризонного и межзонного взаимодействий, полученные при аппроксимации: $\lambda_{11} = 0.63$, $\lambda_{22} = 0.13$, $\lambda_{12} = 0.7$, $\lambda_{21} = 0.09$. Энергетические щели зон при $T = 0$ К, $\Delta_i(0)$, с учетом большой анизотропии энергетических щелей FeSe согласуются с измерениями, сделанными в других работах.

Относительно большая величина T_c^A (см. рис. 2а,б,с) определялась интеркалированным поверхностным слоем кристалла, а не нагревом контакта транспортным током. Это заключение следует из результатов измерений, которые показали, что 1) для всех контактов величина T_c^A на несколько градусов больше критической температуры кристалла FeSe (см. рис. 2а,б,с) — при нагреве было бы наоборот; 2) энергетическая щель Δ_1 (символы) уменьшалась с ростом температуры плавно, без резких скачков (см. рис. 4) [41]. Измерение

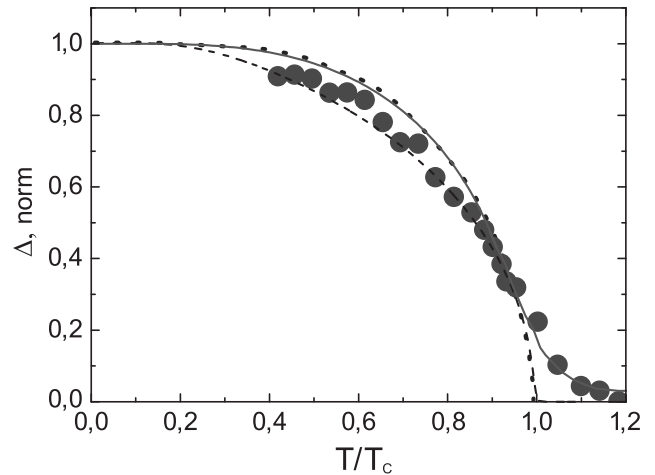


Рис. 5. Символы и штриховая линия — измеренная и вычисленная из уравнений (2) температурные зависимости $\Delta_1(T)$ (рис. 4) в нормированных единицах $\Delta_1(T/T_c^A)/\Delta_1(0)$. Синие точки — нормированная БКШ-зависимость $\Delta_{Al}(T)/\Delta_{Al}(0)$. Сплошная красная линия — рассчитанная в работе [42] нормированная температурная зависимость $\Delta_{Al}(T)/\Delta_{Al}(0)$ энергетической щели Al для находящихся в близостном контакте пленок Sn и Al

магнитной восприимчивости интеркалированного FeSe показало, что поверхностный слой образца начинал переходить в нормальное состояние при $T > 8$ К (см. рис. 1). В наших ТК это приводило к росту сопротивления сэндвича из интеркалированного слоя FeSe и чистого FeSe с температурой в диапазоне $T \approx 8\text{--}12$ К (см. рис. 2) и, соответственно, к уменьшению проводимости контактов.

Оценим влияние интеркалированного поверхностного слоя FeSe на измеренные нами зависимости $\Delta_i(T)$. Для этого рассмотрим результаты, полученные в работе [42] при расчете температурных зависимостей энергетических щелей пленок Sn ($T_c^{\text{Sn}} = 3.4$ К) и Al ($T_c^{\text{Al}} = 1.2$ К), находящихся в близостном контакте в модели Макмиллана [45]. При слабой связи между пленками в плотности состояний сэндвича Sn–Al присутствовали пики от энергетической щели как Sn, так и Al. При этом энергетической щель Al в сэндвиче, $\Delta_{\text{Sn-Al}}(T)$, в диапазоне температур $T/T_c^{\text{Al}} = 0\text{--}0.9$ увеличивалась на 3–4% по сравнению с энергетической щелью чистого Al, $\Delta_{\text{Al}}(T)$, и изменялась с температурой по закону БКШ. И только при $T/T_c^{\text{Al}} = 0.9\text{--}1.2$ зависимость $\Delta_{\text{Al}}(T)$ заметно отклонялась от зависимости для чистого Al (см. рис. 2 в работе [42]). Мы не могли рассчитать зависимость $\Delta_1(T)$ для интеркалированного слоя FeSe, так как не знаем его характеристик и не можем доказать, что свойства близостной структуры «ин-

теркалированный слой на поверхности FeSe–FeSe» удовлетворяли модели Макмиллана [45]. Тем не менее, качественно, измеренная нами нормированная температурная зависимость $\Delta_1(T)$ в диапазоне $T/T_c^\Delta = 0.9\text{--}1.2$ совпала с рассчитанной в работе [42] для слабосвязанных пленок Al и Sn (рис. 5). При $T/T_c^\Delta = 0\text{--}0.9$ отличия нашей зависимости $\Delta_1(T)$ от вычисленной в работе [42] связаны с отклонением $\Delta_1(T)$ от БКШ в двухзонном FeSe. Сравнение $\Delta_1(T)$ с рассчитанной в работе [42] зависимостью $\Delta_{Al}(T)$ для сэндвича Sn–Al показало, что вследствие небольшой толщины и слабой связи с внутренними слоями FeSe тонкий интеркалированный слой на поверхности оказывал незначительное, не более (3–4) %, влияние на амплитуду Δ_1 и, следовательно, на форму зависимости $\Delta_1(T)$ FeSe при $T < 9.5$ К. Пик, связанный с энергетической щелью интеркалированного слоя с относительно высокой температурой на поверхности FeSe, на измеренных проводимостях $\sigma_{NS}(V, T)$ не разрешался из-за большого уширения, связанного с размером и структурой мягкого ТК и неоднородностью этого слоя. Отметим, что зависимость энергетической щели $\Delta_1(T)$, совпадающую с $\Delta_{Al}(T)$ в сэндвиче Sn–Al [42], легко получить в рамках двухзонной модели (2), предположив, что FeSe и интеркалированный слой на его поверхности являются двумя разными взаимодействующими сверхпроводниками.

Найденные при аппроксимации зависимостей $\Delta_i(T)$ константы внутризонного и межзонного взаимодействий для энергии $w_D = 13.67$ мэВ,

$$\lambda_{11} = 0.63, \quad \lambda_{22} = 0.13, \quad \lambda_{12} = 0.7, \quad \lambda_{21} = 0.09,$$

указывают на относительно слабое спаривание в первой (сильной) зоне и межзонное взаимодействие, сравнимое с внутризонным. Полученные величины λ_{ij} совместимы с s - и s^{++} -симметриями параметра порядка. Несмотря на качественный характер теории, использованной для аппроксимации зависимостей $\Delta_{1,2}(T)$, вычисленные температурные зависимости амплитуд энергетических щелей и критическая температура FeSe согласуются с измеренными. При аппроксимации измеренных зависимостей $\Delta_{1,2}(T)$ вычисленными зависимостями с $w_D = 40$ мэВ изменялись только величины λ_{ij} . Заключение о роли внутризонных и межзонных взаимодействий не зависело от величины w_D . Аппроксимация измеренных зависимостей при отсутствии электрон-фононного взаимодействия в слабой зоне ($\lambda_{22} = 0$), при полном отсутствии межзонного взаимодействия ($\lambda_{12} = \lambda_{21} = 0$) и при чисто межзонном взаимодействии ($\lambda_{11} = \lambda_{22} = 0$) сверхпроводя-

щих конденсатов оказалась невозможной. Похожие результаты были получены и на других мягких ТК.

Проведенные исследования не согласуются с утверждениями о силе межзонного рассеяния в работах [11–14] и полностью совпадают с выводами авторов работы [15]. Отметим, что выводы работ [13, 14] о близкой к БКШ зависимости энергетических щелей зон $\Delta_{1,2}(T)$ при совпадении критических температур $T_{c1} = T_{c2}$ противоречат друг другу. При $T_{c1} = T_{c2}$ и $\Delta_1 \neq \Delta_2$ межзонное рассеяние λ_{12} должно быть конечным и не очень маленьким. Но при конечной величине λ_{12} зависимости $\Delta_{1,2}(T)$ должны отклоняться от БКШ-кривой.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом спектроскопии андреевского отражения измерены энергетические щели сильной Δ_1 и слабой Δ_2 зон высококачественных монокристаллов FeSe в диапазоне температур 4.2–14 К. Анализ зависимостей $\Delta_{1,2}(T)$ в рамках двухзонной λ^{00} -модели Москаленко–Зуля позволил определить константы внутризонных и межзонных взаимодействий

$$\lambda_{11} = 0.63, \quad \lambda_{22} = 0.13, \quad \lambda_{12} = 0.7, \quad \lambda_{21} = 0.09,$$

энергетические щели зон при $T = 0$ К:

$$\Delta_1(0) = 2.09 \text{ мэВ}, \quad \Delta_2(0) = 0.63 \text{ мэВ},$$

а также вычислить критическую температуру, при которой $\Delta_{1,2}(T) = 0$:

$$T_c^\Delta = 10.2 \text{ К}.$$

Полученные результаты указывают на слабое спаривающее взаимодействие в первой (сильной) зоне, сравнимое с ним межзонное взаимодействие и s - или s^{++} -симметрию параметра порядка.

Финансирование. Работа одного из авторов (Д. А. Ч.) выполнена при поддержке УФУ и ИЭМ в рамках Программ стратегического академического лидерства (ПРИОРИТЕТ-2030) и государственного задания РАН FMUF-2022-0002.

Благодарности. Авторы В. А. С. и М. В. Г. выражают искреннюю благодарность сотрудникам ОФТТ ФИАН за помощь в проведении данной работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. R. Liu, M. B. Stone, S. Gao et al., arXiv:2401.05092.
2. T. Shibauchi, T. Hanaguri, and Y. Matsuda, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 102002 (2020).

3. S. Kasahara, Y. Sato, S. Licciardello et al., *Phys. Rev. Lett.* **124**, 107001 (2020).
4. G. R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1589 (2011).
5. X. Liu, L. Zhao, S. He et al., *J. Phys. Condens. Matter.* **27**, 183201 (2015).
6. T. Terashima, N. Kikugawa, A. Kiswandhi et al., *Phys. Rev. B* **90**, 144517 (2014).
7. Y. Sun, S. Kittaka, S. Nakamura et al., *Phys. Rev. B* **96**, 220505 (2017).
8. D. Liu, C. Li, J. Huang et al., *Phys. Rev. X* **8**, 031033 (2018).
9. P. O. Sprau, A. Kostin, A. Kreisel et al., *Science* **357**, 75 (2017).
10. L. Jiao, C.-L. Huang, S. Robler et al., *Sci. Rep.* **7**, 44024 (2017).
11. R. Khasanov, M. Bendele, A. Amato et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 087004 (2010).
12. Ya. G. Ponomarev, S. A. Kuzmichev, T. E. Kuzmicheva et al., *J. Supercond. Nov. Magn.* **26**, 2867 (2013).
13. Yu. G. Naidyuk, O. E. Kvitnitskaya, N. V. Gamayunova et al., *Phys. Rev. B* **96**, 094517 (2017).
14. D. L. Bashlakov, N. V. Gamayunova, L. V. Tyutrina et al., *Low Temp. Phys.* **45**, 1222 (2019).
15. M. Bristow, A. Gower, J. C. A. Prentice et al., *Phys. Rev. B* **108**, 184507 (2023).
16. I. Giaever, *Phys. Rev. Lett.* **5**, 464 (1960).
17. G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk, *Phys. Rev. B* **25**, 4515 (1982).
18. R. S. Gonnelli, D. Daghero, G. A. Ummarino, V. A. Stepanov et al., *Phys. Rev. Lett.* **89**, 247004 (2002).
19. D. Daghero and R. S. Gonnelli, *Supercond. Sci. Technol.* **23**, 043001 (2010).
20. D. Daghero, M. Tortello, G. A. Ummarino, and R. S. Gonnelli, *Rep. Prog. Phys.* **74**, 124509 (2011).
21. B. A. Москаленко, *ФММ* **8**, 503 (1959).
22. H. Suhl, B. T. Matthias, and L. R. Walker, *Phys. Rev. Lett.* **3**, 552 (1959).
23. E. J. Nicol and J. P. Carbotte, *Phys. Rev. B* **71**, 054501 (2005).
24. A. Bussmann-Holder, *arXv: cond-mat/0909.3603*.
25. D. Chareev, E. Osadchii, T. Kuzmicheva et al., *Cryst. Eng. Comm.* **15**, 1989 (2013).
26. D. A. Chareev, O. S. Volkova, N. V. Geringer et al., *Crystallogr. Rep.* **61**, 682 (2016).
27. Ю. И. Горина, М. В. Голубков, Т. И. Осина и др., *ФТТ* **59**, 1897 (2017).
28. С. И. Веденеев, М. В. Голубков, Ю. И. Горина и др., *ЖЭТФ* **154**, 844 (2018).
29. В. А. Степанов, М. В. Голубков, *ЖЭТФ* **157**, 245 (2020).
30. Yu. G. Naidyuk, N. V. Gamayunova, O. E. Kvitnitskaya et al., *Low Temp. Phys.* **42**, 42 (2016).
31. D. Daghero, M. Tortello, R. S. Gonnelli et al., *Phys. Rev. B* **80**, 060502 (2009).
32. S. Kasahara, T. Watashige, T. Hanaguri et al., *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* **111**, 16309 (2014).
33. J. K. Dong, T. Y. Guan, S. Y. Zhou et al., *Phys. Rev. B* **80**, 024518 (2009).
34. S. Knoner, D. Zielke, S. Kohler et al., *Phys. Rev. B* **91**, 174510 (2015).
35. A. E. Bohmer, V. Taufour, W. E. Straszheim et al., *Phys. Rev. B* **94**, 024526 (2016).
36. A. A. Sinchenko, P. D. Grigoriev, A. P. Orlov et al., *Phys. Rev. B* **95**, 165120 (2017).
37. RS PRO Silver Conductive Paint (in Google).
38. A. Krzton-Maziopa, V. Svitlyk, and E. Pomjakushina, *J. Phys.: Condens. Matter* **28**, 293002 (2016).
39. E. Venzmer, A. Kronenberg, and M. Jourdan, *J. Supercond. Nov. Magn.* **29**, 897 (2016).
40. Y. J. Yan, W. H. Zhang, M. Q. Ren et al., *Phys. Rev. B* **94**, 134502 (2016).
41. D. Daghero, E. Piatti, N. D. Zhigadlo, and R. S. Gonnelli, *Low Temp. Phys.* **49**, 886 (2023).
42. J. Vrba and S. B. Woods, *Phys. Rev. B* **4**, 87 (1971).
43. G. A. Zvyagina, T. N. Gaydamak, K. R. Zhekov et al., *arXv: cond/mat1303.4948* (2013).
44. D. Phelan, J. N. Millican, E. L. Thomas et al., *Phys. Rev. B* **79**, 014519 (2009).
45. W. L. McMillan, *Phys. Rev.* **175**, 537 (1968).

FRACTIONAL A. C. JOSEPHSON EFFECT AS EVIDENCE OF TOPOLOGICAL HINGE STATES IN A DIRAC SEMIMETAL NiTe_2

*D. Yu. Kazmin, V. D. Esin, A. V. Timonina, N. N. Kolesnikov, E. V. Deviatov**

*Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences
142432, Chernogolovka, Moscow District, Russia*

Received April 25, 2024

revised version July 3, 2024

Accepted for publication July 4, 2024

We experimentally investigate Josephson current between two $5\ \mu\text{m}$ spaced superconducting indium leads, coupled to a NiTe_2 single crystal flake, which is a type-II Dirac semimetal. Under microwave irradiation, we demonstrate a.c. Josephson effect at millikelvin temperatures as a number of Shapiro steps. In addition to the integer ($n = 1, 2, 3, 4, \dots$) steps, we observe fractional ones at half-integer values $n = 1/2, 3/2, 5/2$ and $7/2$, which corresponds to π periodicity of current-phase relationship. In contrast to previous investigations, we do not observe 4π periodicity (disappearance of the odd $n = 1, 3, 5, \dots$ Shapiro steps), while the latter is usually considered as a fingerprint of helical surface states in Dirac semimetals and topological insulators. We argue, that our experiment confirms Josephson current through the topological hinge states in NiTe_2 : since one can exclude bulk supercurrent in $5\ \mu\text{m}$ long Josephson junctions, interference of the hinge modes is responsible for the π periodicity, while stable odd Shapiro steps reflect chiral character of the topological hinge states.

DOI: 10.31857/S0044451024110117

1. INTRODUCTION

Like other topological materials [1–5], topological semimetals acquire topologically protected surface states due to the bulk-boundary correspondence (as a recent review see [6]). In contrast to topological insulators, Dirac semimetals are characterized by gapless bulk spectrum with band touching in some distinct Dirac points. In Weyl semimetals every touching point splits into two Weyl nodes with opposite chiralities. Fermi arc surface states are connecting projections of these nodes on the surface Brillouin zone, so the topological surface states are chiral for Weyl materials [6]. For Dirac semimetals, the surface states are helical, similarly to topological insulators [1].

The main problem of transport investigations is to reveal the surface states contribution in topological semimetals with gapless bulk spectrum [6]. In proximity with a superconductor, topological surface (or edge) states are able to carry supercurrents over extremely large distances [7–13], while the coherence length is much smaller for the bulk carriers. Also, nonuniform

supercurrent distribution is reflected in d.c. or a.c. Josephson effect. For example, it may lead to the superconducting quantum interference device (sQUID)-like critical current suppression pattern [8, 14, 15] and/or to the fractional a.c. Josephson effect [9, 16, 17] with half-integer Shapiro steps.

For the typical Dirac semimetal Cd_3As_2 , observation of π and 4π periodic current-phase relationship has been reported in $\text{Al-Cd}_3\text{As}_2\text{-Al}$ and $\text{Nb-Cd}_3\text{As}_2\text{-Nb}$ junctions [13, 16]. For the short 100 nm junctions, the fractional a.c. Josephson effect (π periodicity) is connected with interference between the bulk and surface supercurrent contributions [16], while the disappearance of $n = 1$ Shapiro step (4π periodicity) reflects the helical nature of topological surface states in Dirac semimetals also for $1\ \mu\text{m}$ long junctions [13].

Recently it has been understood, that besides the well-known three-dimensional bulk Dirac states and the two-dimensional Fermi-arc surface states, there should be one-dimensional hinge states [18] at the intersections between surfaces of Dirac semimetals [19, 20]. Dirac semimetals exhibit hinge states as universal, direct consequences of their bulk three-dimensional Dirac points, see Ref. [18] for details. These hinge states represent a new kind of Chern-type insulator edge states, so they are chiral even for Dirac semimetals [18, 19]. The idea

* E-mail: dev@issp.ac.ru

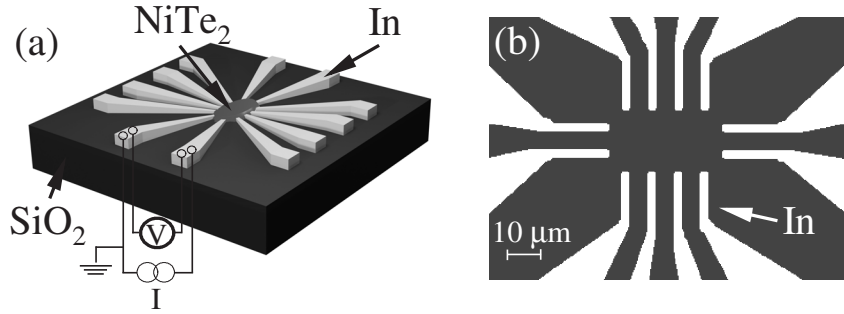


Fig. 1. (Color online) *a* — A sketch of a sample with In leads and external electrical connections. A thick (above $0.5 \mu\text{m}$) NiTe_2 mechanically exfoliated flake is placed on the pre-defined In leads pattern to form $5 \mu\text{m}$ separated In- NiTe_2 -In junctions. Electron transport is investigated between two neighbor superconducting indium leads in a four-point technique, all the wire resistances are excluded. *b* — An optical image of the indium leads pattern before transferring the NiTe_2 single crystal flake

of the experiment [21] is to distinguish between different types of current-carrying states since the coherence length should be longer in the one-dimensional hinge channel than that in the surface and bulk ones. As a result, standard Fraunhofer interference pattern in a short Josephson junction is changed to the squid-like one for the $1 \mu\text{m}$ long Cd_3As_2 based junctions [21], because the supercurrent is dominated by several hinge channels in the latter case.

Due to the topological origin, the effect should also be independent on the particular material. NiTe_2 is a recently discovered type-II Dirac semimetal belonging to the family of transition metal dichalcogenides. Nontrivial topology of NiTe_2 single crystals has been confirmed by spin-resolved ARPES [22, 23]. The bulk coherence length ξ is smaller in NiTe_2 in comparison with Cd_3As_2 due to the smaller mean free path l_e , which should further suppress the bulk supercurrent. The contribution from the topological surface states reveals itself as the Josephson diode effect in parallel magnetic field [24, 25].

Similarly to Cd_3As_2 Dirac material, hinge states have been theoretically predicted [26] in NiTe_2 . Hinge supercurrent has been demonstrated in the submicron-size NiTe_2 based Josephson junction as a (squid)-like critical current suppression pattern due to the magnetic field suppression of the bulk supercurrent [26]. Thus, it is reasonable to study a. c. Josephson effect in long NiTe_2 junctions to confirm topological (chiral) nature of the predicted hinge states in Dirac semimetals.

Here, we experimentally investigate Josephson current between two $5 \mu\text{m}$ spaced superconducting indium leads, coupled to a NiTe_2 single crystal flake, which is a type-II Dirac semimetal. Under microwave irradiation, we demonstrate a. c. Josephson effect at millikelvin temperatures as a number of Shapiro steps. In addition

to the integer ($n = 1, 2, 3, 4, \dots$) steps, we observe fractional ones at half-integer values $n = 1/2, 3/2, 5/2$ and $7/2$, which corresponds to π periodicity of current-phase relationship. In contrast to previous investigations, we do not observe 4π periodicity (disappearance of the odd $n = 1, 3, 5, \dots$ Shapiro steps).

2. SAMPLES AND TECHNIQUE

NiTe_2 was synthesized from elements, which were taken in the form of foil (Ni) and pellets (Te). The mixture was heated in an evacuated silica ampule up to 815°C with the rate of 20 deg/h , the ampule was kept at this temperature for 48 h. The crystal was grown in the same ampule by the gradient freezing technique with the cooling rate of 10 deg/h . As a result, we obtain 80 mm long and 5 mm thick NiTe_2 single crystal, with (0001) cleavage plane.

The powder X-ray diffraction analysis (Cu $\text{K}\alpha_1$ radiation, $\lambda = 1.540598 \text{ \AA}$) confirms single-phase NiTe_2 with P-3m1 (164) space group ($a = b = 3.8791 \text{ \AA}$, $c = 5.3005 \text{ \AA}$), see Fig. 1 *a*. The known structure model is also refined with single crystal X-ray diffraction measurements (Oxford diffraction Gemini-A, Mo $\text{K}\alpha$). Nearly stoichiometric ratio $\text{Ni}_{1-x}\text{Te}_2$ ($x < 0.06$) is verified by the energy-dispersive X-ray spectroscopy.

The quality of our NiTe_2 material was also tested in standard four-point magnetoresistance measurements, see Ref. [25] for details. In particular, nonsaturating longitudinal magnetoresistance [27, 28] was confirmed for our NiTe_2 samples in normal magnetic field [25]. It is important, that four-point resistance is finite (0.1Ω) between two $5 \mu\text{m}$ spaced Au leads in zero magnetic field, so there is no bulk superconductivity [29] for

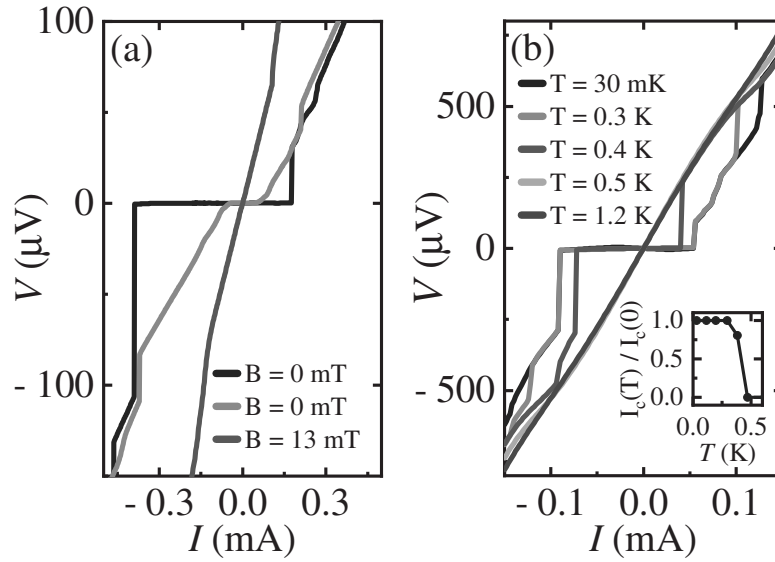


Fig. 2. (Color online) Standard Josephson $I - V$ characteristics for three different In-NiTe₂-In samples with different critical currents and normal resistances (blue and green curves in (a), blue curve in (b)), obtained at 30 mK temperature in zero magnetic field. The current sweep direction is from the positive to negative currents, which is the origin of $I - V$ asymmetry. Suppression of the zero-resistance state is shown in (a) for $B = 13$ mT normal to the plane magnetic field (red curve) at 30 mK temperature and in (b) for different temperatures in zero field. Inset shows the normalized critical current temperature dependence $I_c(T)/I_c(0)$

NiTe₂ single crystal flakes at ambient pressure even at millikelvin temperatures [25].

Fig. 1 *a* shows a sketch of a sample. Despite NiTe₂ can be thinned down to two-dimensional monolayers, topological semimetals are essentially three-dimensional objects [6]. Thus, we have to select relatively thick (above 0.5 μm) NiTe₂ single crystal flakes, which also ensures sample homogeneity.

Thick flakes require special contact preparation technique: the In leads pattern is firstly formed on a standard oxidized silicon substrate by lift-off, as depicted in Fig. 1 *b*. The 100 nm thick In leads are separated by 5 μm intervals, which defines the experimental geometry. As a second step, the fresh mechanically exfoliated NiTe₂ flake is transferred to the In leads pattern and is shortly pressed to the leads by another oxidized silicon substrate, the latter is removed afterward. The substrates are kept strictly parallel by external metallic frame to avoid sliding of the NiTe₂ crystal, which is verified in optical microscope. As a result, planar In-NiTe₂ junctions are formed at the bottom surface of the NiTe₂ single crystal flake in Fig. 1 *a*, being separated by 5 μm intervals, as depicted in Fig. 1 *b*. As an additional advantage, the In-NiTe₂ junctions and the surface between them are protected from any contamination by SiO₂ substrate, since they are placed at the bottom side of a thick NiTe₂ flake in Fig. 1 *a*.

This procedure provides transparent In-NiTe₂ junctions, stable in different cooling cycles, which has been verified before for a wide range of materials [8, 9, 11, 25, 30, 31]. Thus, they are suitable to form long In-NiTe₂-In SNS structures. The mean free path l_e can be estimated as $l_e \approx 4 \mu\text{m}$ in NiTe₂ from the four-point resistance [25], so it is smaller than the $L = 5 \mu\text{m}$ intervals between indium leads in Fig. 1. L should be compared [32, 33] with the coherence length of the diffusive SNS junction

$$\xi = (l_e \hbar v_F^N / \pi \Delta_{In})^{1/2} \approx 300 \text{ nm},$$

where Fermi velocity is $v_F^N \approx 10^7 \text{ cm/s}$, and $\Delta_{In} = 0.5 \text{ meV}$ is the indium superconducting gap [34]. Due to the obvious relation $L/\xi > 10$, one can not expect bulk Josephson current in our $L = 5 \mu\text{m}$ long In-NiTe₂-In SNS structures. This estimation well corresponds to the results of Ref. [25], where there was no bulk contribution to the supercurrent on the pristine NiTe₂ surface between two 1 μm spaced superconducting leads.

We study electron transport between two superconducting indium leads in a four-point technique. An example of electrical connections is shown in Fig. 1 *a*: one In electrode is grounded, the current I is fed through the neighboring one; a voltage drop V is measured between these two indium electrodes by independent wires. In this connection scheme, all the wire

resistances are excluded, which is necessary for low-impedance In-NiTe₂-In junctions (0.25–5 Ohm normal resistance in the present experiment).

The indium leads are superconducting below the critical temperature [34] $T_c \approx 3.4$ K. However, we observe Josephson current only below 1 K, so the measurements are performed in a dilution refrigerator with 30 mK base temperature. For a. c. Josephson effect investigations, the sample is illuminated by microwave (rf) radiation through an open coaxial line. Due to specifics of the dilution fridge, we have to restrict rf radiation by 0.5 GHz frequency and 7 dBm power, the bath temperature is always below 60 mK in this case.

3. EXPERIMENTAL RESULTS

To obtain $I - V$ characteristics, we sweep the d. c. current I and measure the voltage drop V , see $I - V$ curves in Fig. 2 for three different samples. The normal In-NiTe₂-In junction resistance varies from $\approx 0.2 \Omega$ in (a) to 5Ω in (b), due to the different overlap between the NiTe₂ flake and In leads for different samples.

In zero magnetic field and at low 30 mK temperature, Fig. 2 shows standard Josephson behavior, despite of $L \gg \xi$ for the present In-NiTe₂-In junctions: (i) by the four-point connection scheme we directly demonstrate zero resistance region at low currents. (ii) The non-zero resistance appears as sharp jumps at current values $I_c \approx 0.05 - 0.4$ mA for different samples. The current sweep direction is from the positive to negative currents, so the critical Josephson current is characterized by left (negative) $I - V$ branch. The obtained I_c values are much smaller than the critical current for the indium leads, which can be estimated as ≈ 30 mA for the leads' dimensions and the known [35] indium critical current density $j \approx 3 \cdot 10^6$ A/cm². (iii) $I - V$ curve can be switched to standard Ohmic behavior, if the supercurrent is suppressed by magnetic field (13 mT) or temperature (above 0.5 K), see (a) and (b), respectively.

Inset to Fig. 2 b shows the normalized critical current temperature dependence $I_c(T)$, which is unusual for long $L > \xi$ diffusive $L \gg l_e$ SNS junctions [32,33]. On the other hand, one can not expect bulk Josephson current for $L/\xi > 10$ for our In-NiTe₂-In structures, while the topological surface states carry the Josephson current in Refs. [24–26] probably due to the backscattering suppression.

The main experimental finding is the observation of fractional a. c. Josephson effect with π periodicity of the current-phase relationship.

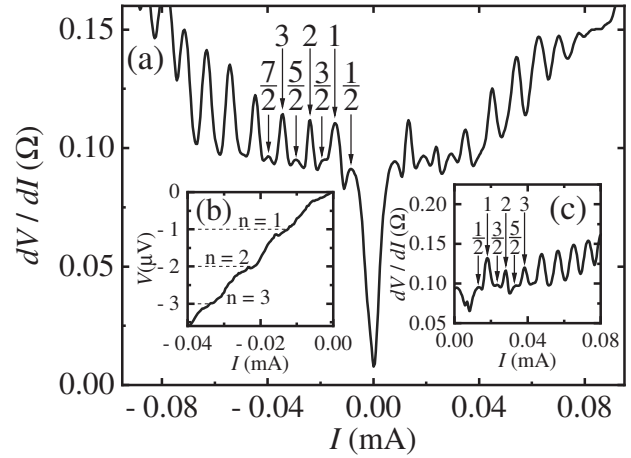


Fig. 3. (Color online) Differential $dV/dI(I)$ characteristics of the In-NiTe₂-In junctions under rf (0.5 GHz, 7 dBm) irradiation through an open coaxial line. The data are obtained in zero magnetic field, the sample temperature is always below 60 mK. Shapiro steps with integer numbers $n = 1, 2, 3, 4, \dots$ can be seen as sharp equidistant dV/dI peaks. We check, that the peaks well correspond to the centers of the steps in usual d. c. $I - V$ curves (e.g., in the left inset, where Shapiro steps at $V = nhf/2e$ levels are depicted by dashed lines). In addition to the integer steps, there are fractional ones at $n = 1/2, 3/2, 5/2$ and $7/2$ as small dV/dI peaks, some $dV/dI(I)$ asymmetry is connected with the current sweep direction. Right inset shows qualitatively similar $dV/dI(I)$ behavior with half-integer Shapiro steps for another sample, so the main experimental finding is the observation of fractional a. c. Josephson effect with π periodicity of the current-phase relationship

Differential $dV/dI(I)$ characteristics under rf irradiation are shown in Fig. 3. Dilution fridge restricts radiation frequency (0.5 GHz) and power (7 dBm) to avoid sample overheating through the coaxial lines. The power at the sample is unknown, but the base temperature is always below 60 mK under irradiation. In these conditions, $dV/dI(I)$ curves allows to increase resolution of Shapiro steps in Fig. 3: the d. c. current I is additionally modulated by a low (100 nA) a. c. component, the a. c. ($\sim dV/dI$) voltage is measured by a lock-in amplifier. The signal is confirmed to be independent of the modulation frequency within 100 Hz – 10 kHz range, which is defined by the applied filters.

Shapiro steps with integer numbers $n = 1, 2, 3, 4, \dots$ can be seen as sharp equidistant dV/dI peaks, see the main field of Fig. 3. We check, that they are the peaks which well correspond to the centers of the steps in usual d. c. $I - V$ curves, see the left inset to Fig. 3. Thus, we should concentrate on the peaks (not dips) while considering differential $dV/dI(I)$ char-

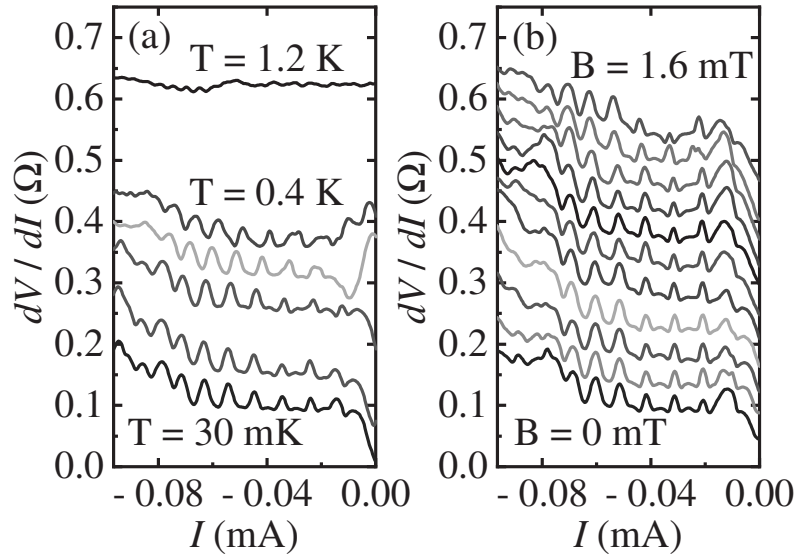


Fig. 4. (Color online) Integer and half-integer dV/dI peaks for different temperatures (30 mK, 0.1 K, 0.2 K, 0.3 K, 0.4 K and 1.2 K) (a) and magnetic fields (from 0 to 1.6 mT with .16 mT step) (b). Shapiro steps are not sensitive to low $B \ll B_c \approx 13$ mT magnetic fields in (b), while they are moving to lower currents above 200 mK and disappear above 0.4 K in (a), the half-integer steps disappear earlier. This behavior principally reflects the Josephson supercurrent behavior, as it can be expected for Shapiro steps. **Magnetic field is normal to the sample plane in (b)**

acteristics, probably due to the imperfect steps' shape at low frequency and power. Shapiro steps are placed at $V = nhf/2e$ in the inset to Fig. 3, as it should be expected for typical SNS junctions with trivial 2π periodicity in current-phase relationship $I_J \sim \sin(\phi)$.

In addition to the integer steps, we observe small but clearly visible fractional ones at $n = 1/2, 3/2, 5/2$ and $7/2$ as small dV/dI peaks. The peaks appear at low currents I , they can be seen both for positive and negative currents. Some $dV/dI(I)$ asymmetry is connected with the current sweep direction from the positive to negative current values, so the right $dV/dI(I)$ branch is obtained while sweeping from the resistive sample state. Thus, we demonstrate π periodicity of the current-phase relationship for the fractional a. c. Josephson effect in long In-NiTe₂-In junctions.

This behavior is well-reproducible for different samples, e.g. $dV/dI(I)$ curve under rf irradiation is presented in the right inset to Fig. 3 with integer and half-integer Shapiro steps. It is important, that this reproducibility is inconsistent with sample fabrication defects, e.g. parasite shorting of In leads. As additional arguments against fabrication defects, the thickness of the indium film is chosen to be much smaller than the leads separation ($100 \text{ nm} \ll 5 \mu\text{m}$) to avoid parasite shortings. The zero-field critical current values for the present In-NiTe₂-In junctions well corre-

spond to ones in Ref. [25], despite different materials of the superconducting leads. Josephson effect is fully suppressed above 0.5 K and at 13 mT magnetic field in Fig. 2, which is also far below the values for pure indium [34]. Thus, we should conclude that long In-NiTe₂-In junctions show half-integer steps (π periodicity of the current-phase relationship) due to the properties of NiTe₂ Dirac semimetal.

The step positions are stable at low temperatures in Fig. 4 a, while they are moving to lower currents above 200 mK and disappear above 0.4 K. dV/dI peaks are also not sensitive to low $B \ll B_c \approx 13$ mT magnetic fields, see Fig. 4 b. This behavior principally reflects the critical current I_c behavior in Fig. 2, as it can be expected for Shapiro steps. The half-integer steps disappear earlier in Fig. 4 a.

4. DISCUSSION

First of all, there is no bulk superconductivity [29] for NiTe₂ single crystal flakes at ambient pressure even at millikelvin temperatures. Bulk superconductivity is known for pressurized Te-deficient NiTe₂ [29], but it can be ruled out in our case, since (i) bulk superconductivity is not observed for our NiTe₂ crystals according to four-point resistance data in Ref [25]; (ii) X-ray spectroscopy reveals almost stoichiometric Ni_{1-x}Te₂ crystal

with a slight Ni deficiency ($x < 0.06$); (iii) there is no external pressure in the present experiment.

On the other hand, topological surface states carry the Josephson current on the pristine NiTe₂ surface [24–26]. Because of topological protection, surface states can efficiently transfer the Josephson current, which is reflected in slow $I_c(T)$ decay in the inset to Fig. 2 *b*. In this case, it is quite natural to observe integer Shapiro steps at $V = nhf/2e$, as it should be expected for typical SNS junctions with trivial 2π periodicity in current-phase relationship $I_J \sim \sin(\phi)$.

The specifics of our In-NiTe₂-In junctions is the fact, that we do not observe 4π periodicity in a. c. Josephson effect: the integer $n = 1$ Shapiro step is as strong as the $n = 2$ in Fig. 3, while the maximum rf power value covers the range of $n = 1$ disappearance in Refs. [13, 16]. Moreover, the even sequence of Shapiro steps is usually observed [38] when frequency is below 1 GHz, similarly to our experiment. 4π periodicity is connected with the helical nature [6] of topological surface states in Dirac semimetals [13, 16] and topological insulators [38]. Thus, we should explain both the presence of π periodicity and why we do not see 4π one in comparison with [13, 16].

As the main experimental finding, fractional a. c. Josephson effect with π periodicity of the current-phase relationship appears as half-integer $n = 1/2, 3/2, 5/2$ and $7/2$ Shapiro steps. For standard SNS junctions, higher weak-link transparency results in a more skewed current-phase relationship [17, 36, 37], which is usually the origin of half-integer Shapiro steps. For our long $\xi \ll L$ junctions, one could expect that it is high electron mobility in topological surface states that leads to skewed current-phase relationship [37].

Even in this case, one should expect interference between one-dimensional channels [39–43], which, for example, appears for nontrivial Josephson current distribution in topological materials [9, 16, 17]. Recently, π -periodic $\sin(2\phi)$ current-phase relationship has been predicted and experimentally demonstrated for different realizations of superconducting quantum interference devices [44–46]. For short Cd₃As₂ Dirac semimetal junctions [13, 16], interference (π periodicity) could appear if both surface and bulk carriers transferred Josephson current in parallel.

Each conduction channel, including the bulk Dirac fermions, Fermi-arc surface states, and topological hinge states, can be distinguished based on their different superconducting coherence lengths by increasing the channel length of the Josephson junction. In our case, one cannot expect [32, 33] the bulk Josephson current for 5 μm long In-NiTe₂-In junctions, be-

cause of small bulk coherence length $\xi \ll L$. Helical surface states can transfer Josephson current for 1 μm distance [25], while it is much smaller than $L = 5 \mu\text{m}$ for our In-NiTe₂-In junctions. Also, we do not observe 4π periodicity, which is the fingerprint of helical surface states.

On the other hand, hinge states [19, 20] have been theoretically predicted [26] and experimentally demonstrated [26] in NiTe₂ type-II Dirac semimetal. Interference of the hinge modes can explain all our observations: Josephson current for unprecisely long In-NiTe₂-In junctions, and observation of π periodicity without the 4π one. (i) The coherence length should be longer in the one-dimensional hinge channel than that in the surface and bulk states, giving rise to the supercurrent being dominated by the hinge channels in long Josephson junctions [21]. (ii) For one-dimensional hinge states, one can expect interference of supercurrent through the states localized at the intersections between surfaces, i.e. fractional a. c. Josephson effect with π periodicity [39–43]. (iii) Topological hinge states inherit the chiral property of the Chern insulator edge states [18, 19], so they should not demonstrate 4π periodicity of the current-phase relationship.

Thus, our experiment can be considered not only as demonstration of transport through the topological hinge states in NiTe₂ Dirac semimetal, but also as the confirmation of their chiral property.

5. CONCLUSION

As a conclusion, we experimentally investigate Josephson current between two 5 μm spaced superconducting indium leads, coupled to a NiTe₂ single crystal flake, which is a type-II Dirac semimetal. Under microwave irradiation, we demonstrate a. c. Josephson effect at millikelvin temperatures as a number of Shapiro steps. In addition to the integer ($n = 1, 2, 3, 4, \dots$) steps, we observe fractional ones at half-integer values $n = 1/2, 3/2, 5/2$ and $7/2$, which corresponds to π periodicity of current-phase relationship. In contrast to previous investigations, we do not observe 4π periodicity (disappearance of the odd $n = 1, 3, 5, \dots$ Shapiro steps), while the latter is usually considered as a fingerprint of helical surface states in Dirac semimetals and topological insulators. We argue, that our experiment confirms Josephson current through the topological hinge states in NiTe₂: since one can exclude bulk supercurrent in 5 μm long Josephson junctions, interference of the hinge modes is responsible for the π periodicity, while stable odd Shapiro steps reflect chiral character of the topological hinge states.

Acknowledgments. We wish to thank S. S. Khasanov for X-ray sample characterization, and A. N. Nekrasov for the energy-dispersive X-ray spectroscopy. We gratefully acknowledge financial support by the RF State task.

REFERENCES

1. B. A. Volkov and O. A. Pankratov, *JETP Lett.* **42**, 178 (1985).
2. M. Z. Hasan and C. L. Kane, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 3045 (2010).
3. X.-L. Qi and S.-C. Zhang, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1057 (2011).
4. A. Bansil, H. Lin, and T. Das, *Rev. Mod. Phys.* **88**, 021004 (2016).
5. C.-K. Chiu, J. C. Teo, A. P. Schnyder, and S. Ryu, *Rev. Mod. Phys.* **88**, 035005 (2016).
6. N. P. Armitage, E. J. Mele, and A. Vishwanath, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 15001 (2018).
7. J. H. Lee, G.-H. Lee, J. Park, J. Lee, S.-G. Nam, Y.-S. Shin, J. S. Kim, and H.-J. Lee, *Nano Lett.* **14**, 5029 (2014).
8. O. O. Shvetsov, A. Kononov, A. V. Timonina, N. N. Kolesnikov, and E. V. Deviatov, *JETP Lett.* **107**, 774 (2018).
9. O. O. Shvetsov, A. Kononov, A. V. Timonina, N. N. Kolesnikov, and E. V. Deviatov, *EP* **124**, 47003 (2018).
10. C. Huang, B. T. Zhou, H. Zhang, B. Yang, R. Liu, H. Wang, Y. Wan, K. Huang, Z. Liao, E. Zhang, S. Liu, Q. Deng, Y. Chen, X. Han, J. Zou, X. Lin, Z. Han, Y. Wang, K. Tuen Law, and F. Xiu, *Nat. Comm.* **10**, 2217 (2019).
11. O. O. Shvetsov, V. D. Esin, Yu. S. Barash, A. V. Timonina, N. N. Kolesnikov, and E. V. Deviatov, *Phys. Rev. B* **101**, 035304 (2020).
12. Y. Wang, S. Yang, P. K. Sivakumar, B. R. Ortiz, S. M. L. Teicher, H. Wu, A. K. Srivastava, C. Garg, D. Liu, S. S. P. Parkin, E. S. Toberer, T. McQueen, S. D. Wilson, and M. N. Ali, *arXiv:2012.05898*. *Sci. Adv.* **9**, eadg7269 (2023), DOI:10.1126/sciadv.adg7269
13. Cai-Zhen Li, Chuan Li, Li-Xian Wang, Shuo Wang, Zhi-Min Liao, Alexander Brinkman, and Da-Peng Yu, *Phys. Rev. B* **97**, 115446 (2018), DOI:10.1103/PhysRevB.97.115446
14. S. Hart, H. Ren, T. Wagner, P. Leubner, M. Mühlbauer, C. Brüe, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, and A. Yacoby, *Nature Physics* **10**, 638 (2014), DOI:10.1038/nphys3036
15. V. S. Pribiag, A. J. A. Beukman, Fanming Qu, M. C. Cassidy, C. Charpentier, W. Wegscheider, and L. P. Kouwenhoven, *Nature Nanotechnology* **10**, 593 (2015).
16. W. Yu, W. Pan, D. L. Medlin, M. A. Rodriguez, S. R. Lee, Z. Bao, and F. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 177704 (2018), DOI:10.1103/PhysRevLett.120.177704
17. R. A. Snyder, C. J. Trimble, C. C. Rong, P. A. Folkes, P. J. Taylor, and J. R. Williams, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 097701 (2018), DOI:10.1103/PhysRevLett.121.097701
18. B. J. Wieder, Zhijun Wang, J. Cano, B. Bradlyn, and B. A. Bernevig, *Nature Commun.* **11**, 627 (2020), DOI:10.1038/s41467-020-14443-5
19. W. A. Benalcazar, B. A. Bernevig, and T. L. Hughes, *Phys. Rev. B* **96**, 245115 (2017).
20. D. Calugaru, V. Juricic, and B. Roy, *Phys. Rev. B* **99**, 041301 (2019).
21. Cai-Zhen Li, An-Qi Wang, Chuan Li, Wen-Zhuang Zheng, A. Brinkman, Da-Peng Yu, and Zhi-Min, Liao *Phys. Rev. Lett.* **124**, 156601 (2020)
22. B. Ghosh, D. Mondal, C.-N. Kuo, C. S. Lue, J. Nayak, J. Fujii, I. Vobornik, A. Politano, and A. Agarwal, *Phys. Rev. B* **100**, 195134 (2019).
23. S. Mukherjee, S. W. Jung, S. F. Weber, C. Xu, D. Qian, X. Xu, P. K. Biswas, T. K. Kim, L. C. Chapon, M. D. Watson, J. B. Neaton, and C. Cacho, *Sci. Rep.* **10**, 12957 (2020)
24. B. Pal, A. Chakraborty, P. K. Sivakumar, M. Davydova, A. K. Gopi, A. K. Pandeya, J. A. Krieger, Yang Zhang, M. Date, Sailong Ju, Noah Yuan, N. B. M. Schröter, Liang Fu, and S. S. P. Parkin, *Nat. Phys.* **18**, 1228 (2022), DOI:10.1038/s41567-022-01699-5
25. V. D. Esin, O. O. Shvetsov, A. V. Timonina, N. N. Kolesnikov, and E. V. Deviatov, *Nanomaterials* **12**, 4114 (2022), DOI:10.3390/nano12234114

26. Tian Le, Ruihan Zhang, Changcun Li, Ruiyang Jiang, Haohao Sheng, Linfeng Tu, Xuewei Cao, Zhaozheng Lyu, Jie Shen, Guangtong Liu, Fucai Liu, Zhijun Wang, Li Lu, and Fanming Qu, *Nature Commun.* **2785** (2024), arXiv:2303.05041, DOI:10.1038/s41467-024-47103-z
27. C. Xu, B. Li, W. Jiao, W. Zhou, B. Qian, R. Sankar, N. D. Zhigadlo, Y. Qi, D. Qian, F.-C. Chou, and X. Xu, *Chem. Mater.* **30**, 4823 (2018).
28. Q. Liu, F. Fei, B. Chen, X. Bo, B. Wei, S. Zhang, M. Zhang, F. Xie, M. Naveed, X. Wan, F. Song, and B. Wang, *Phys. Rev. B* **99**, 155119 (2019).
29. Z. Feng, J. Si, T. Li, H. Dong, C. Xu, J. Yang, Z. Zhang, K. Wang, H. Wu, Q. Hou, J.-J. Xing, S. Wan, S. Li, W. Deng, J. Feng, A. Pal, F. Chen, S. Hu, J.-Y. Ge, C. Dong, S. Wang, W. Ren, S. Cao, Y. Liu, X. Xu, J. Zhang, B. Chen, and N.-C. Yeh, *Materials Today Phys.* **17**, 100339 (2021).
30. O. O. Shvetsov, Yu. S. Barash, A. V. Timonina, N. N. Kolesnikov, and E. V. Deviatov, *JETP Lett.* **115**, 267 (2022), DOI:10.1134/S0021364022100101
31. V. D. Esin, D. Yu. Kazmin, Yu. S. Barash, A. V. Timonina, N. N. Kolesnikov, and E. V. Deviatov, *JETP Lett.* **118**, 847 (2023), DOI:10.1134/S0021364023603329
32. I. O. Kulik, *Sov. Phys. JETP* **30**, 944 (1970).
33. P. Dubos, H. Courtois, B. Pannetier, F. K. Wilhelm, A. D. Zaikin, and G. Schön, *Phys. Rev. B* **63**, 064502 (2001)
34. A. M. Toxen, *Phys. Rev.* **123**, 442 (1961).
35. P. Scharnhorst, *Phys. Rev. B* **1**, 4295 (1970).
36. K. K. Likharev, *Rev. Mod. Phys.* **51**, 101 (1979).
37. I. Sochnikov, L. Maier, C. A. Watson, J. R. Kirtley, C. Gould, G. Tkachov, E. M. Hankiewicz, C. Brune, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, and K. A. Moler, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 066801 (2015)
38. E. Bocquillon, J. Wiedenmann, R. S. Deacon, T. M. Klapwijk, H. Buhmann, and L. W. Molenkamp, *Microwave Studies of the Fractional Josephson Effect, HgTe-Based Josephson Junctions*, in: *Topological Matter*, ed. by D. Bercioux, J. Cayssol, M. Vergniory, and M. Reyes Calvo, Springer Series in Solid-State Sciences, Vol. 190, Springer (2018).
39. C. Vanneste, C. C. Chi, W. J. Gallagher, A. W. Kleinsasser, S. I. Raider, and R. L. Sandstrom, *J. Appl. Phys.* **64**, 242 (1988), DOI:10.1063/1.341471
40. R. C. Dinsmore III, Myung-Ho Bae, and A. Bezryadin, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 192505 (2008), DOI:10.1063/1.3012360
41. A. Valizadeh, M. R. Kolahchi, and J. P. Straley, *J. Nonlinear Math. Phys.* **15**, 407 (2008).
42. S. M. Frolov, D. J. Van Harlingen, V. V. Bolginov, V. A. Oboznov, and V. V. Ryazanov, *Phys. Rev. B* **74**, 020503 (2006).
43. L. Chen, P. Chen, and C. K. Ong, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1025 (2002).
44. A. Leblanc, C. Tangchingchai, Z. Sadre Momtaz, E. Kiyooka, J.-M. Hartmann, F. Gustavo, J.-L. Thomassin, B. Brun, V. Schmitt, S. Zihlmann, R. Maurand, E. Dumur, S. De Franceschi, and F. Lefloch, arxiv:2405.14695
45. S. Messelot, N. Aparicio, E. de Seze, E. Eyraud, J. Coraux, K. Watanabe, T. Taniguchi, and J. Renard, arxiv:2405.13642
46. L. Banszerus, C. W. Andersson, W. Marshall, T. Lindemann, M. J. Manfra, C. M. Marcus, and S. Vaitiekenas, arxiv:2406.20082

СПЕКТРЫ РЕЗОНАНСНОЙ МАГНИТОПЛАСТИЧНОСТИ В КРИСТАЛЛАХ $\text{NaCl}(\text{Ca} + \text{Ni})$

В. И. Альшиц, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, Е. В. Даринская*

*Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова
Курчатовского комплекса кристаллографии и фотоники НИЦ «Курчатовский институт»
119333, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 12 июля 2024 г.,
после переработки 16 июля 2024 г.
Принята к публикации 19 июля 2024 г.

Измерен резонансный спектр дислокационных пробегов в кристалле $\text{NaCl}(\text{Ca} + \text{Ni})$ в сверхнизких скрещенных магнитных полях, постоянном поле Земли и переменном поле накачки. Движение обусловлено спин-зависимым преобразованием примесных стопоров на дислокациях, что приводит к их депиннингу и релаксационным перемещениям в поле внутренних напряжений. Спектр резонансных частот поля накачки интерпретируется в терминах сверхтонкого взаимодействия пар электронов на примесных центрах и окружающих лигандах Cl. Спектр сопоставлен с ранее полученными спектрами: микротвердости на том же кристалле и дислокационных пробегов в кристалле $\text{NaCl}(\text{Ca})$. Сходства и различия трех спектров помогают установить относительную роль примесей Ca и Ni в наблюдаемых процессах.

DOI: 10.31857/S0044451024110129

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время надежно установлено [1–5], что воздействие магнитных полей на немагнитные кристаллы приводит к изменению их механических свойств. Это явление получило название магнито-пластический эффект (МПЭ) и заключается в спиновом преобразовании точечных дефектов в магнитных полях. Оно физически аналогично хорошо известному спин-зависимому влиянию магнитного поля на скорость химических реакций [6, 7]. Естественно, магнитная модификация примесей в кристаллах должна влиять не только на их механические, но и на другие свойства, чувствительные к легированию. Так, была обнаружена магниточувствительность темновой проводимости [8], оптических свойств полупроводников [9] и процессов дефектообразования в приповерхностных слоях кремния в условиях термоудара [10], а также диэлектрических свойств сегнетоэлектриков и сегнетоэластиков [11–16].

Наблюдают как *in situ* эффекты, когда изменения происходят непосредственно во время магнит-

ной экспозиции, так и эффекты памяти, когда отклик возникает уже после выключения полей. Применительно к МПЭ, обычно в качестве *in situ* эффектов исследуют магнитостимулированное изменение подвижности дислокаций. В эффектах памяти чаще всего используется отклик на магнитные воздействия в виде изменения микротвердости кристаллов. Природа этих явлений едина. В обоих случаях начальная трансформация дефектов связана со спин-зависимыми электронными переходами в них непосредственно в магнитном поле [5, 17–20]. Новое состояние дефектов, являющихся стопорами для дислокаций, приводит к немедленному откреплению дислокаций и их дальнейшему движению в полях внутренних напряжений. В эффектах памяти изменение структуры дефектов в магнитном поле происходит во всем объеме кристалла, но это обычно не сразу приводит к изменению макро-свойств. Сначала нарушается равновесие, например, локальная электронейтральность, что вызывает диффузионную релаксацию решетки вокруг дефектов и определяет относительно медленное изменение микротвердости кристалла.

Одним из эффективных способов магнитного воздействия является экспозиция кристаллов в скрещенных магнитных полях – постоянном и перпендикулярном ему переменном поле накачки.

* E-mail: valshits@mail.ru

При этом изменение механических свойств носит резонансный характер. Первые экспериментальные результаты были получены в [21–25] на типичных для ЭПР частотах ~ 10 ГГц. Измерялись пики дислокационных пробегов или микротвердости (NaCl) и стартовых напряжений для дислокаций (Si). Отвечающие им значения магнитного поля B (при фиксируемой частоте накачки ν_{res}) описывались обычным условием

$$\nu_{res} = g \frac{\beta B}{h}, \quad (1)$$

где β — магнетон Бора, h — постоянная Планка, B — постоянная компонента магнитного поля (~ 0.3 Тл) и $g \approx 2$ — фактор Ланде. В кристаллах NaCl(Eu) [22, 23] в условиях классического ЭПР пики микротвердости наблюдались при значениях поля B , отвечающих известным областям ЭПР активности.

Позже аналогичные резонансы были обнаружены и исследованы на гораздо меньших частотах, порядка 1 МГц при использовании магнитного поля Земли порядка 50 мкТл в качестве постоянной компоненты скрещенных полей [26–33]. Резонансное магнитостимулированное изменение микротвердости в этом диапазоне было обнаружено на различных кристаллах [28, 30–32]. Характерной особенностью этих низкочастотных резонансов, отличающей их от обычного диапазона, является анизотропия: резонансная частота эффекта оказалась чувствительной к ориентации кристалла относительно магнитного поля $\mathbf{B}$. Так при повороте образца NaCl на угол θ относительно магнитного поля вокруг оси симметрии 4-го порядка резонансная частота дислокационной подвижности определяется модифицированной формулой [28]

$$\nu_{res} = g \frac{\beta B}{h} \cos \theta. \quad (2)$$

Как показано в [31], зависимость (2) сохраняется и для микротвердости весьма сложных кристаллов триглицинсульфата (TGS), гидрофталата калия (КАР) и оксида цинка (ZnO). В этой работе впервые показано, что величина θ имеет простой физический смысл: это угол между внешним полем $\mathbf{B}$ и локальным внутренним полем $\mathbf{B}_{loc}$ в условиях, когда $B \ll B_{loc}$,

$$\theta = \angle(\mathbf{B}, \mathbf{B}_{loc}). \quad (3)$$

При этом направления локальных полей $\mathbf{B}_{loc}$ связаны с элементами симметрии кристалла [32, 33].

В кристалле NaCl, где обычно преобладает примесь кальция (Ca), которая входит в кристалл в виде немагнитоактивного иона Ca^{2+} в соседстве с

вакансией натрия V_{Na} (для локальной электронной нейтральности), эффекты памяти себя обычно не проявляют. И только на дислокации происходит преобразование иона $\text{Ca}^{2+} \rightarrow \text{Ca}^+$ в парамагнитное состояние [5, 29, 33]. Считается, что такая быстрая бездиффузионная самоорганизация структуры стопора в ядре дислокации происходит следующим образом. Когда дислокация приближается к «гантели» $\text{Ca}^{2+}V_{Na}$, из ядра с края экстра-плоскости огромным давлением вытесняется ион Na^+ на место вакансии, а с ближайшего к Ca^{2+} иона Cl^- в том же ядре кулоновские силы переносят электрон на кальций: $\text{Ca}^{2+} \rightarrow \text{Ca}^+$.

Однако и в NaCl можно наблюдать эффекты памяти при добавлении в него магнитоактивной примеси. Например, в работе [32] в кристалле NaCl(Ca+Ni) был получен целый спектр (18 пиков) изменений микротвердости после выдержки образцов в схеме ЭПР в магнитном поле Земли.

Следует отметить, что в более раннем исследовании [29] на том же кристалле NaCl(Ca+Ni), где концентрация Ni значительно ниже чем Ca, подвижность дислокаций в постоянном магнитном поле оказалась значительно выше, чем в кристалле без Ni. Разгадка этого парадокса была основана на гипотезе о том, что примесь Ni в кристалле NaCl в отсутствие магнитного поля является значительно более сильным стопором, чем Ca. В настоящей работе будет представлен впервые измеренный резонансный спектр дислокационных пробегов в кристалле NaCl(Ca+Ni) в том же диапазоне, что и спектр микротвердости [32]. Сравнивая эти спектры между собой и с фрагментом аналогичного дислокационного спектра в кристалле NaCl(Ca) без Ni [33], мы среди прочего покажем, что упомянутая в [29] гипотеза была правильной.

2. МЕТОДИКА

Исследования проводились на кристаллах NaCl(Ca+Ni) со специально введенной примесью никеля, выращенных в ЛОМО методом Киропулоса. Согласно проведенному микропримесному анализу методом PerkinElmer Total Quant в кристаллах содержится 2 ppm Ni. Общее содержание всех остальных примесей было порядка 10 ppm, среди которых преобладает кальций. Для сравнения использовались кристаллы NaCl(Ca) того же происхождения с аналогичным составом, но без добавления никеля. Образцы выкалывались по плоскостям спайности $\{100\}$ в виде параллелепипедов с примерными размерами $3 \times 3 \times (5 - 8)$ мм,

после чего отжигались и химически полировались. Отжиг проводился в атмосфере аргона при 750°C в течении пяти суток и заканчивался очень медленным охлаждением [1, 5]. Это уменьшало начальную плотность дислокаций и значительно увеличивало среднюю длину пробега свежесозданных дислокаций в процессе их магнитной релаксации.

В качестве внешнего воздействия использовались скрещенные магнитные поля: поле Земли B_{Earth} и перпендикулярное ему переменное поле накачки $\tilde{B}$. Величина и направление магнитного поля Земли измерялись непосредственно в месте нахождения образца в установке. Вектор поля B_{Earth} составлял с вертикалью угол 29.5° , а его величина равнялась $B_{Earth} = 49.9 \text{ мкТл}$. Концентрическое переменное магнитное поле создавалось в коаксиальной камере вокруг провода, по которому пропусклся синусоидальный переменный ток заданной частоты. В данной работе частота варьировалась в интервале 1.1–2.2 МГц. Амплитуда $\tilde{B}$ составляла приблизительно 3 мкТл. Заметим, что, согласно [27], изменение ориентации поля накачки $\tilde{B}$ в этом варианте ЭПР не влияет на положение резонансной частоты (2), однако уменьшает релаксационную подвижность дислокаций. Но даже при параллельности полей $\tilde{B}$ и B_{Earth} резонансный эффект остается вполне измеримым.

При изучении дислокационной подвижности непосредственно перед экспериментом в образцы легким ударом вводились свежие дислокации, которые при этом способе введения являются в основном прямолинейными с ориентацией вдоль направлений $\mathbf{L} \parallel [100]$. Магнитная экспозиция осуществлялась в течение 5 минут. При этом образец ставился так, чтобы исследуемые дислокации были перпендикулярны как постоянному полю ($B_{Earth} \parallel [001]$), так и переменному ($\tilde{B} \parallel [010]$) (подробнее см., например, [27]). Начальное и конечное положения дислокаций фиксировались избирательным химическим травлением. Наблюдения велись за краевыми дислокациями. Их средний пробег l находился по достаточно большому числу перемещений 50–300. Мы будем его характеризовать безразмерным параметром $l\sqrt{\rho}$, равным отношению пробега l к среднему расстоянию $1/\sqrt{\rho} \sim 100 \text{ мкм}$ между дислокациями, где ρ — их средняя плотность ($\rho \sim 10^4 \text{ см}^{-2}$).

Методика измерений микротвердости H того же кристалла, результаты которых ниже используются для сравнений, описаны в работе [32]. Отметим только, что методика, применявшаяся в данных экс-

периментах, позволила снизить погрешность определения относительных изменений микротвердости $\Delta H/H_0$ до 1%. Это достигалось увеличением статистической базы измерений за счет построений кривых зависимости твердости от времени после экспозиции. Минимум на такой гладкой кривой являлся хорошо воспроизводимой экспериментальной точкой.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Было проведено сравнение двух откликов кристалла $\text{NaCl}(\text{Ca}+\text{Ni})$ на воздействие скрещенных магнитных полей в схеме ЭПР-типа в постоянном поле Земли при варьировании частоты поля накачки ν . В обоих случаях наблюдалось магнито-стимулированное разупрочнение кристалла. Одним откликом являлось перемещение дислокаций $l\sqrt{\rho}$ в магнитных полях без каких-либо дополнительных механических воздействий, а другим — уменьшение твердости кристалла $\Delta H/H_0$ после его магнитной экспозиции. Как подвижность дислокаций, так и изменения твердости имеют резонансный характер. На рис. 1 представлены три сравниваемых зависимости в одном и том же диапазоне частот: спектр изменения микротвердости $\Delta H/H_0(\nu)$ кристалла $\text{NaCl}(\text{Ca}+\text{Ni})$ [32] (рис. 1 а), полученный в этой работе спектр дислокационных пробегов $l\sqrt{\rho}(\nu)$ в том же кристалле (рис. 1 б) и аналогичная зависимость пробега $l\sqrt{\rho}$ для кристалла $\text{NaCl}(\text{Ca})$ [33] (рис. 1 в).

Следует обратить внимание на то, что каждый из спектров содержит по две группы пиков, состоящих из 9 резонансов. Они обозначены на рис. 1: A_n и $\hat{A}_n$, B_n и $\hat{B}_n$, C_n и $\hat{C}_n$. В работе [32] было замечено, что резонансные частоты в этих группах (ν_n^A для пиков A_n и $\hat{\nu}_n^A$ для $\hat{A}_n$), отмеченные на рис. 1 а, связаны между собой соотношением $\hat{\nu}_n^A \approx \nu_n^A/\sqrt{2}$. Около каждого пика на рис. 1 стоят соответствующие символы. В терминах формул (2) и (3) при условии, что направление внешнего поля $B_{Earth} \parallel [001]$ неизменно, эти группы соответствуют двум направлениям локального магнитного поля $B_{loc} \parallel <100>$ и $B_{loc} \parallel <110>$ вдоль осей симметрии 4-го и 2-го порядка, составляющих друг с другом угол $\hat{\theta}_n^A = 45^\circ$ (конечно, с точностью до малых локальных искажений вблизи дефектов). Оказалось, что то же соотношение выполняется и для двух других спектров. В таблице приведены соответствующие углы $\hat{\theta}_n^A$, $\hat{\theta}_n^B$ и $\hat{\theta}_n^C$ (3) между внешним полем B_{Earth} и локальным

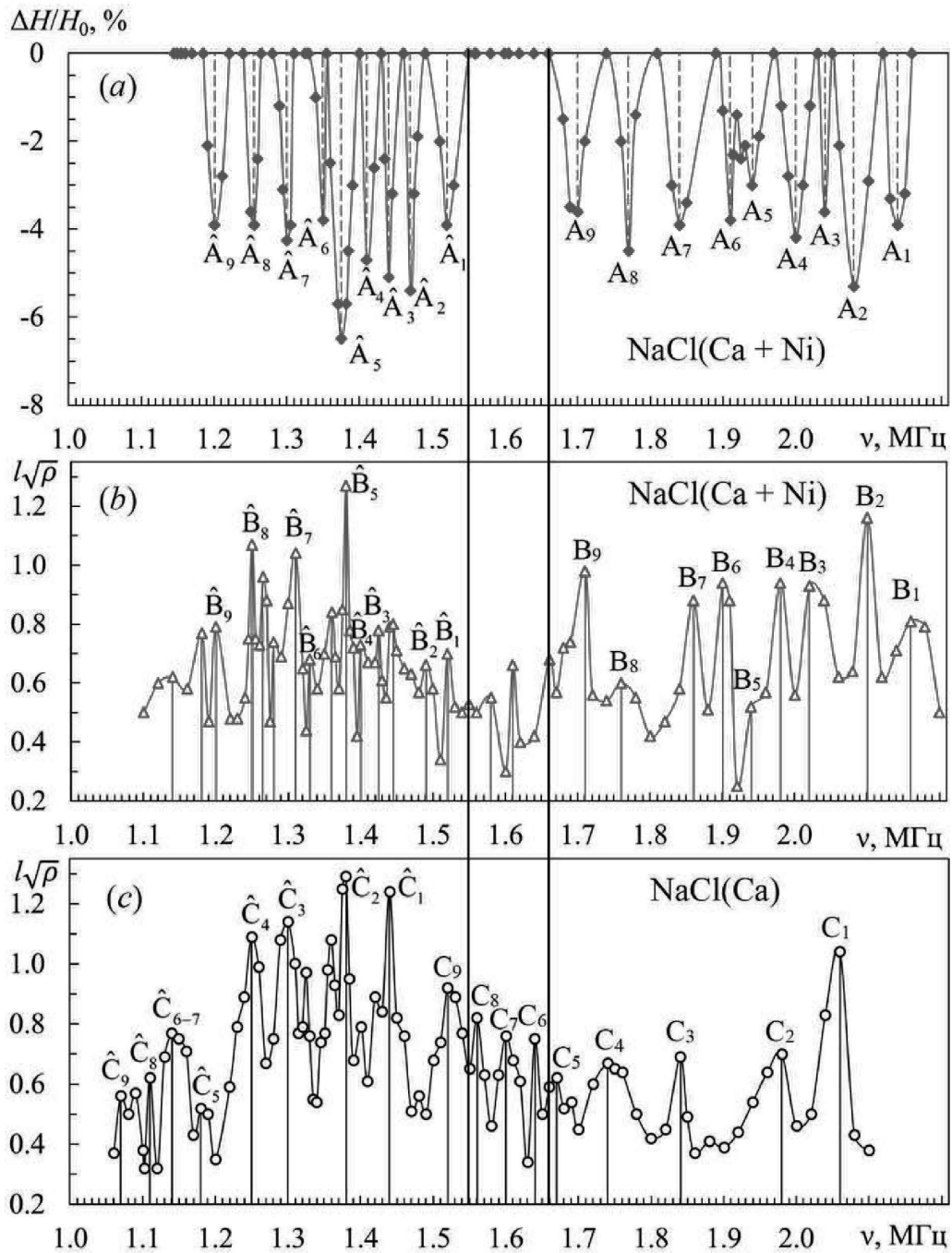


Рис. 1. Частотные зависимости относительного изменения микротвердости (а) и нормированного среднего пробега дислокаций (b, c) кристаллов NaCl(Ca+Ni) (a, b) и NaCl(Ca) (c). Образцы выдерживались в скрещенных магнитных полях в течении 30 мин (a), 5 мин (b, c)

полем $\mathbf{B}_{loc}$ близким к соответствующей оси 2, рассчитанные по формуле

$$\hat{\theta}_n^{A,B,C} = \arccos(\hat{\nu}_n^{A,B,C} / \nu_n^{A,B,C}). \quad (4)$$

Их небольшие отклонения от 45° обусловлены не только погрешностями измерений, но и естественными искажениями решетки вблизи парамагнитно-

го дефекта. Девять соответствующих эффективных g -факторов g_n^A , g_n^B и g_n^C в таблице, вычисленных по формуле (2) при $\theta = 0$, по-видимому, определяются сверхтонким взаимодействием примесных центров с лигандами (ядрами Cl вокруг них). Судя по таблице, они близки для спектров на рис. 1 а и b, относящихся к одному кристаллу. Небольшое отличие между

Таблица 1. Резонансные частоты $\nu_n^{A,B,C}$ и $\dot{\nu}_n^{A,B,C}$ (в МГц), а также эффективные g-факторы $g_n^{A,B,C}$ и углы (4) $\hat{\theta}_n^{A,B,C}$ для трех спектров на рис. 1

Кристалл	Тест	№	1	2	3	4	5	6	7	8	9
		Группа									
NaCl (Ca+Ni)	Твердость	g_n^A	3.058	2.972	2.915	2.858	2.772	2.729	2.629	2.529	2.429
		ν_n^A	2.14	2.08	2.04	2.00	1.94	1.91	1.84	1.77	1.70
		$\dot{\nu}_n^A$	1.52	1.49	1.425	1.40	1.38	1.33	1.31	1.25	1.20
		$\hat{\theta}_n^A$	44.7°	44.2°	45.7°	45.6°	44.7°	45.9°	44.6°	45.1°	45.1°
	Дислокации	g_n^B	3.087	3.001	2.887	2.830	2.772	2.715	2.658	2.515	2.444
		ν_n^B	2.16	2.10	2.02	1.98	1.94	1.90	1.86	1.76	1.71
		$\dot{\nu}_n^B$	1.52	1.49	1.425	1.40	1.38	1.33	1.31	1.25	1.20
		$\hat{\theta}_n^B$	45.3°	44.8°	45.1°	45.0°	44.7°	45.6°	45.2°	44.7°	45.4°
NaCl (Ca)	Дислокации	g_n^C	2.944	2.829	2.630	2.486	2.387	2.344	2.287	2.229	2.172
		ν_n^C	2.06	1.98	1.84	1.74	1.67	1.64	1.60	1.56	1.52
		$\dot{\nu}_n^C$	1.44	1.38	1.30	1.25	1.18	1.14		1.11	1.07
		$\hat{\theta}_n^C$	45.7°	45.8°	45.0°	44.1°	45.0°	46.0°	44.6°	44.6°	45.3°

ними (в пределах 1 %) может быть связано с различиями структуры примесного окружения в объеме и в ядре дислокации. А значения в третьем спектре уже довольно существенно отличаются (порядка 10 %) от первых двух, поскольку на этот раз речь идет о разных парамагнитных центрах в окружении тех же лигандов.

Не вызывает сомнений, что первый из спектров (рис. 1 а) обусловлен присутствием в кристалле только примеси Ni, поскольку ионы Ca^{2+} диамагнитны. Ион Ni^{2+} так же, как и ион Ca^{2+} , на внешней оболочке не имеет электронов, но у него есть два неспаренных электрона на *d*-оболочке, так что он парамагнитен и вне дислокаций.

Третий спектр (рис. 1 с) столь же несомненно отражает процессы, связанные с примесью Са. Примесь Са в виде немагнитоактивного иона Ca^{2+} на дислокации преобразуется с участием вакансии в парамагнитное состояние $\text{Ca}^{2+} \rightarrow \text{Ca}^+$ [5], и поэтому участвует в спин-зависимых процессах в магнитном поле, в том числе и в схеме ЭПР.

Второй спектр отражает релаксационное движение дислокаций через совокупность центров пиннинга Са и Ni, при том что концентрация первых в 5 раз выше, чем вторых. Это тот самый парадокс, который мы обсуждали в [29]. Как видно из спектра на рис. 1 b, в нем присутствуют не только близкие к спектру рис. 1 а пики групп B_n и $\hat{B}_n$, но и другие, более слабые, схожие со спектром рис. 1 с.

В действительности, следует помнить, что мы работаем с хорошо отождествленными кристаллами, в которых атомы Са должны быть собраны в ком-

плексы, в то время как атомов Ni мало и они вероятней всего остаются одиночными. Поэтому число пиннинг-центров двух типов может оказаться сопоставимым или даже в пользу Ni. Кроме того, если сила пиннинга у примеси Ni заметно больше, чем у Са, то при введении свежих дислокаций они останутся в местах с более высокими внутренними напряжениями, где комплексы Са дислокации не «держат». Видимо, именно поэтому дислокационный спектр кристалла NaCl(Ca+Ni) (рис. 1 b), в основном, почти совпадает с рис. 1 а, как если бы комплексов Са не было вообще.

Тем не менее, комплексы Са вполне отчетливо проявляют себя и в спектре на рис. 1 b. Наиболее ярко это видно в интервале частот (1.56–1.66 МГц, выделен вертикальными линиями на рис. 1), где в случае микротвердости резонансного эффекта нет. Для дислокаций резонансный депиннинг при «выключенном» Ni осуществляется атомами Са. Это может происходить на участках кристалла с более низкими внутренними напряжениями, где пиннинг дислокаций осуществляется обеими примесями Ni и Са, так что магнитостимулированное открепление дислокации от Са может приводить к ее перемещению. Именно эти довольно слабые пики видны в этом месте спектра, примерно там же, где и пики на рис. 1 с. Следует отметить, что совершенно аналогичная ситуация возникает при $\nu < 1.19$ МГц левее последнего пика $\hat{A}_9$ на рис. 1 а. Здесь опять примеси Са проявляют себя на рис. 1 b резонансными пиками, которые близки по расположению к пикам на рис. 1 с.

На вопросы о более детальных чертах явлений, лежащих в основе наблюдаемых эффектов, пока можно отвечать только предположительно. Например, почему изменение структуры столь малых дефектов как примесь Ni, да еще присутствующих в столь малой концентрации вызывает столь сильные макроскопические последствия как изменение твердости кристалла. Может быть, потому, что в кристаллах NaCl индентирование сопровождается пластической деформацией в виде дислокационных петель и их движения в специфических «розетках». В этом случае, уменьшение твердости было бы непосредственно связано с увеличением подвижности дислокаций, как в спектре на рис. 1 *b*. Впрочем, в последнем случае трансформация стопора на дислокации происходит практически мгновенно, а максимум изменений микротвердости наблюдается с большой задержкой (~ 2 ч). Возможно, преобразование пиннинг-центра в ядре дислокации происходит без задержки, благодаря экстремальным давлениям, которые обеспечивают быструю бездиффузионную самоорганизацию структуры (см. пример во Введении), в то время как в объеме для необходимой самоорганизации структуры требуются медленные диффузионные процессы.

Конечно, пока очень не хватает конкретики применительно к деталям элементарного акта спин-зависимого преобразования примесных центров даже в таких модельных кристаллах как NaCl. До сих пор мы описываем их только в самых общих чертах. При выдержке кристалла в скрещенных магнитных полях в радикальной паре, которую составляют электрон на примесном центре и электрон на ионе хлора, происходят спин-зависимые электронные переходы [5, 17–20, 28, 33]. Они становятся возможными из-за снятия запрета Паули. Может происходить переход радикальной пары из S состояния в T (и тогда происходит распад пиннинг центра) или наоборот, из T в S (и тогда образуется новый продукт). Какой конкретно процесс происходит остается неясным, но судя по нашим экспериментальным данным, в данном случае магнитное воздействие приводит к уменьшению пиннинга.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ частотных спектров, полученных на кристаллах NaCl(Ca+Ni) разными экспериментальными методиками, и сравнение их со спектром дислокационных пробегов в NaCl(Ca) подтвердили, что два типа магнитопластического эффекта (*in situ* и памяти) имеют единую природу. Как видно из ри-

сунка и таблицы, резонансные частоты в кристалле NaCl(Ca+Ni) для *in situ* эффекта и эффекта памяти очень близки. Спин-зависимые электронные переходы происходят непосредственно в магнитном поле. Трансформация примесных комплексов, на которых закреплены дислокации, происходит быстро и приводит к отрыву дислокаций и их дальнейшему движению в полях внутренних напряжений. Эти дислокационные перемещения и измеряются в *in situ* экспериментах. В экспериментах с измерениями микротвердости в кристалле NaCl(Ca+Ni) после описанного резонансного перехода с изменением структуры Ni-центра происходит последующая диффузионная релаксация к новому локальному равновесию, что в свою очередь модифицирует такую макрохарактеристику кристалла как твердость. Таким образом, используя различные экспериментальные методики (изучение дислокационной подвижности и измерение микротвердости) удастся разделить вклады каждой из примесей в случае кристаллов с двухкомпонентной примесной системой.

В заключение следует отметить, что за долгий период академических исследований МПЭ накоплен значительный багаж новых фундаментальных знаний [1–5, 17–35] на все более глубоком уровне понимания тонких физических процессов. Исследования этого явления весьма нетривиальны ввиду того, что элементарный акт трансформации структуры примесного центра и наблюдаемые макроскопические последствия этого имеют слишком разный масштаб. В результате, приходится строить стратегию разнообразных косвенных измерений, дополняющих друг друга и устанавливая на этом пути причинно-следственные связи. Настоящая работа демонстрирует маленький пример такой стратегии. Тем не менее, можно констатировать, что на глазах формируется параллельный процесс постепенного внедрения этих знаний в практические технологические процессы магнитной обработки материалов в современной технике (см., например, обзор [36]).

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания НИЦ «Курчатовский институт».

ЛИТЕРАТУРА

1. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, Кристаллография **48**, 826 (2003).
2. А. А. Урусовская, В. И. Альшиц, А. Е. Смирнов, Н. Н. Беккауер, Кристаллография. **48**, 855 (2003).

3. Ю. И. Головин, ФТТ **46**, 769 (2004).
4. Р. Б. Моргунов, УФН **174**, 131 (2004).
5. V. I. Alshits, E. V. Darinskaya, M. V. Koldaeva, and E. A. Petrzhik, Magnetoplastic effect in nonmagnetic crystals. In: Dislocations in Solids, v. 14, Ch. 86, Ed. J.P. Hirth, Elsevier, Amsterdam (2008), p. 333–437.
6. А. Л. Бучаченко, Р. З. Сагдеев, К. З. Салихов, Магнитные и спиновые эффекты в химических реакциях, Наука, Новосибирск (1978).
7. Я. Б. Зельдович, А. Л. Бучаченко, Е. Л. Франкевич, УФН **155**, 3 (1988).
8. И. С. Волчков, В. М. Каневский, М. Д. Павлюк, Письма в ЖЭТФ **107**, 276 (2018).
9. R. Redko, G. Milenin, V. Milenin, R. Konakova, S. Redko, P. Lytvyn and O. Babenko, Materials Research Express **6**, 036413 (2019).
10. A. A. Skvortsov, D. E. Pshonkin, M. N. Luk'yanov, Key Engineering Materials **771**, 124 (2018).
11. Е. А. Петржик, Е. С. Иванова, В. И. Альшиц, Известия РАН. Сер. Физическая **78**, 1305 (2014).
12. Е. С. Иванова, Е. А. Петржик, А. П. Еремеев, Р. В. Гайнутдинов, А. К. Лашкова, А. Г. Иванова, Т. Р. Волк, Кристаллография **68**, 738 (2023).
13. Е. Д. Якушкин, Письма в ЖЭТФ **99**, 483 (2014).
14. Е. Д. Якушкин, Письма в ЖЭТФ **117**, 598 (2023).
15. М. Н. Левин, В. В. Постников, М. Ю. Палагин, ФТТ **45**, 1680 (2003).
16. О. М. Golitsyna, S. N. Drozhdin, Ferroelectrics **567:1**, 244 (2020).
17. А. Л. Бучаченко, ЖЭТФ **129**, 909 (2006).
18. А. Л. Бучаченко, ЖЭТФ **132**, 673 (2007).
19. Р. Б. Моргунов, А. Л. Бучаченко, ЖЭТФ **136**, 505 (2009).
20. R. B. Morgunov and A. L. Buchachenko, Phys. Rev. B **82**, 014115 (2010).
21. Ю. И. Головин, Р. Б. Моргунов, В. Е. Иванов, С. Е. Жуликов, А. А. Дмитриевский, Письма в ЖЭТФ **68**, 400 (1998).
22. Ю. И. Головин, Р. Б. Моргунов, В. Е. Иванов, А. А. Дмитриевский, ЖЭТФ **117**, 1080 (2000).
23. Yu. I. Golovin, R. B. Morgunov, and A. A. Baskakov, Molecular Physics **100**, 1291 (2002).
24. Ю. А. Осипьян, Р. Б. Моргунов, А. А. Баскаков, А. М. Орлов, А. А. Скворцов, Е. Н. Инкина, Й. Танимото, Письма в ЖЭТФ **79**, 158 (2004).
25. M. V. Badylevich, V. V. Kveder, V. I. Orlov, and Yu. A. Osipyan, Phys. Status Solidi C **2**, 1869 (2005).
26. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, В. А. Морозов, В. М. Кац, А. А. Лукин, Письма в ЖЭТФ **91**, 97 (2010).
27. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, ФТТ **55**, 318 (2013).
28. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, Письма в ЖЭТФ **104**, 362 (2016).
29. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, ЖЭТФ **149**, 136 (2016).
30. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, ФТТ **54**, 305 (2012).
31. В. И. Альшиц, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, Письма в ЖЭТФ **107**, 650 (2018).
32. Е. А. Петржик, В. И. Альшиц, Письма в ЖЭТФ **113**, 678 (2021).
33. M. V. Koldaeva and V. I. Alshits, AIP Advances **14**, 015015 (2024).
34. X. Zhanga and Z. P. Cai, JETP Letters **108**, 23 (2018),
35. Y. Guo, Y. J. Lee, Y. Zhang, A. Sorkin, S. Manzhos, and H. Wang, Journal of Material Science and Technology **112**, 96 (2022).
36. Y. Song, W. Wu, Y. Yu, and L. Hua, Chinese Journal of Mechanical Engineering **36**, 139 (2023).

ИЗМЕНЕНИЕ СВОЙСТВ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ ПРИ ЦИКЛИЧЕСКОЙ ПЕРЕПОЛЯРИЗАЦИИ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ КОНДЕНСАТОРОВ С РАЗНЫМИ МАТЕРИАЛАМИ ЭЛЕКТРОДОВ

Т. М. Залялов^{a,b*}, Д. Р. Исламов^{a,b}

^a Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова
Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия

^b Новосибирский государственный университет
630090, Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 25 апреля 2024 г.,
после переработки 25 апреля 2024 г.
Принята к публикации 5 июня 2024 г.

Интерес к использованию сегнетоэлектрической энергонезависимой памяти в электронных запоминающих устройствах с низким энергопотреблением возник после открытия сегнетоэлектричества в оксиде гафния. Легирование пленок оксида гафния различными элементами позволяет улучшить их сегнетоэлектрические свойства. В данной работе объединены эксперимент и моделирование транспорта заряда для изучения влияния материала металлических электродов в структурах металл–сегнетоэлектрик–металл на основе оксида гафния–циркония на сегнетоэлектрические свойства и среднее расстояние между вакансиями кислорода в процессе циклической переполяризации структур.

DOI: 10.31857/S0044451024110130

1. ВВЕДЕНИЕ

Разработка устройств мобильных систем, интернета вещей и других устройств с высокой автономностью требует энергонезависимости, энергоэффективности и высокой скорости работы от используемых в них элементов памяти. Одним из типов памяти, удовлетворяющих перечисленным выше критериям, является сегнетоэлектрическая память (Ferroelectric Random Access Memory — FRAM). С последнего десятилетия прошлого века по сей день используемые в микроэлектронике элементы FRAM основаны на цирконате-титанате свинца (PZT) [1]. Проблемой этого материала стало стремительное исчезновение сегнетоэлектрического отклика при толщинах пленок менее 100 нм. Это привело к остановке масштабирования используемого при производстве FRAM техпроцесса на норму 130 нм (микросхемы производства Texas Instruments) и, как следствие, к малому инфор-

мационному объему интегральных схем. Поэтому современные исследования в области технологии FRAM сосредоточены на изучении сегнетоэлектрических свойств легированных тонких пленок оксида гафния HfO_2 . История сегнетоэлектричества в HfO_2 началась в 2007 году, когда члены группы компании Qimonda, занимающейся динамической памятью с произвольным доступом (DRAM), совместно с RWTH Aachen искали материалы для применения в конденсаторах DRAM и неожиданно обнаружили сегнетоэлектрические свойства у тонких легированных пленок HfO_2 . Было продемонстрировано, что нецентросимметричная полярная орторомбическая фаза (o-фаза) между зернами моноклинной (m) и тетрагональной (t) фаз в тонких (5–50 нм) легированных пленках HfO_2 отвечают за поддержание поляризации после отключения внешнего электрического поля [2–4]. Технология FRAM на основе HfO_2 демонстрирует энергонезависимость, большой объем информации матриц памяти, высокую скорость работы и совместима с современной КМОП-технологией (комплементарная структура металл–оксид–полупроводник) [5].

* E-mail: timz@isp.nsc.ru

Более 10 лет исследователи работают над решением проблем, препятствующих внедрению устройств FRAM на основе HfO_2 в массовое производство. К основным проблемам относятся малое окно памяти ($\text{memory window (MW)} = 2P_r$ — двойное значение остаточной поляризации), малый ресурс перезаписи запоминающего элемента и нестабильность окна памяти во время циклической переполаризации сегнетоэлектрика — циклирования. Малое окно памяти препятствует надежному считыванию логического состояния ячейки памяти. Малый ресурс выражается в небольшом количестве циклов перезаписи информации до выхода ячейки памяти из строя (пробоя). Нестабильность окна памяти во время циклической переполаризации сегнетоэлектрика заключается в увеличении остаточной поляризации в начале циклирования (эффект «wake-up») и ее уменьшении перед пробоем (эффект «fatigue») [6, 7]. Эти проблемы могут быть решены путем подбора легирующего материала HfO_2 с последующим быстрым термическим отжигом при высоких температурах. Было обнаружено, что наибольшее окно памяти достигается при использовании лантана La в качестве легирующей примеси [8]. Кроме того, использование $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ вместо HfO_2 приводит к подавлению эффекта «wake-up» и снижению температуры отжига [9], что совместимо с тепловым бюджетом этапа металлизации (back-end-of-line) полупроводникового производства. На сегнетоэлектрический отклик структуры также влияют метод нанесения металлических контактов и температура отжига. Наибольшее значение окна памяти $2P_r = 54.2 \text{ мКл/см}^2$ для пленок $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ без легирования было получено при нанесении электродов в едином цикле с синтезом сегнетоэлектрической пленки (без загрязнения поверхностей в атмосфере) вследствие лучшего качества границ раздела сегнетоэлектрик/металл [10]. Недавно было показано, что при легировании $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ элементами La, Y и их смесью пленки остаются функциональными после 10^{11} циклов перезаписи, демонстрируя довольно большое значение окна памяти [11, 12]. Однако легирование La приводило к более выраженному проявлению эффекта «wake-up».

Возможная причина такого эффекта может быть вызвана влиянием металлических электродов. В структурах, основанных на $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$:La, исследуемых в работах [11, 12] нижний (BE — bottom electrode) и верхний (TE — top electrode) металлические контакты были выполнены из нитрида титана TiN. Недавно было показано, что использование RuO_2 в структуре $\text{TiN}/\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2/\text{RuO}_2$ в каче-

стве TE [13], в структуре $\text{RuO}_2/\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2/\text{RuO}_2$ как TE, так и BE [14] и Ru в структуре $\text{Ru}/\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2/\text{TiN}$ в качестве BE [15] приводит к небольшому значению окна памяти и относительно раннему выходу из строя во время циклирования электрического поля. Были исследованы другие металлические электроды для стабилизации сегнетоэлектрической фазы в $\text{Hf}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_2$, включая TaN [16, 17], Ir [18, 19], Pt [20–22] и W [23], без экспериментов по циклированию.

В данной работе исследуется влияние различных металлических электродов на сегнетоэлектрические свойства $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ в структурах металл/сегнетоэлектрик/металл (M1/FE/M2) при циклической переполаризации сегнетоэлектрика.

2. МЕТОДИКА

Исследовались сегнетоэлектрические конденсаторы M1/FE/M2 на кремниевых подложках с толщиной сегнетоэлектрика 10 нм. Были исследованы семь видов структур с различными электродами. Их описание приведено в таблице. Конденсаторы M1/FE/M2 были изготовлены по следующей методике. Слой W толщиной 50 нм, а также TE и BE толщиной 10 нм были нанесены на кремниевую подложку при комнатной температуре с использованием системы распыления Alliance Concept. Для получения образцов S5 и S6 этап осаждения BE был пропущен, т.е. пленки $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ для этих структур были нанесены непосредственно на слой W. Пленки $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ толщиной 10 нм были нанесены методом атомно-слоевого осаждения (ALD) при температуре 280°C в системе Oxford Instruments OPAL. Для оксидов гафния и циркония использовались прекурсоры тетраakis[этилметиламино]гафний ($\text{Hf}[\text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)\text{CH}_3]_4$) и трис[диметиламино]циклопентадиенилцирконий ($(\text{C}_5\text{H}_5)_3\text{Zr}[\text{N}(\text{CH}_3)_2]_3$) соответственно. В качестве окислителя для всех ALD-циклов использовалась H_2O . Затем пленки были подвержены быстрому термическому отжигу при температуре 600°C в течение 20 с в атмосфере N_2 . Дополнительно на верхние контакты были нанесены слои Ti толщиной 10 нм в качестве адгезионного слоя и Pt толщиной 25 нм путем электронно-лучевого испарения через теньевую маску. Диаметр металлического контакта круглой формы составлял 200 мкм. Для формирования рисунка было проведено «мокрое» химическое травление TE с использованием методики SC1 (растворы 5 % NH_3 и 2 % H_2O_2 в H_2O при температуре 50°C). Схематически структуры исследуемых образцов с различными электродами показаны на рис. 1. Для получения об-

Таблица. Структуры всех образцов с различными нижним (BE) и верхним (TE) электродами

Образец	Структура	BE	TE
S1	TiN/ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /TiN	TiN	TiN
S2	TiN/ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /RuO _x	TiN	RuO _x
S3	TiN/ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /TiAlN	TiN	TiAlN
S4	TiN/ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /NbN	TiN	NbN
S5	W/ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /TiN	W	TiN
S6	W/ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /W	W	W
S7	TiN/ $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /W	TiN	W

разцов S2, S6 и S7 вместо верхнего электрода TiN на пленки $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ методом физического осаждения из паровой фазы через теневую маску были нанесены электроды RuO₂ или W.

Экспериментальное исследование эволюции сегнетоэлектрических свойств при переключении состояния структуры проводилось путем циклического приложения трапециевидных импульсов напряжения с положительной и отрицательной амплитудами. Вместо нескольких переключающих циклов были проведены измерения характеристик поляризация–напряжение (P – V) методом PUND с последующим измерением вольт-амперных характеристик I – V (BAX) с той же амплитудой напряжения для выделения токов утечек. Измерения методом PUND заключаются в последовательном приложении к структуре двух положительных импульсов (Positive/Up) и двух отрицательных (Negative/Down). Последовательности PUND и циклические импульсы напряжения схематично показаны на рис. 2. Изменение значения остаточной поляризации P_r во время циклирования было получено из измерений PUND. Для PUND-циклов время нарастания/спада напряжения t_{rf} , задержка между импульсами t_d и время приложения постоянного напряжения t_p были одинаковыми и составляли 100 мкс. Времена импульсов циклирования составляли $t_{rf} = 0.5$ мкс, $t_p = 2.0$ мкс и $t_d = 1.0$ мкс. Данная длительность циклических импульсов напряжения обеспечивает достижение более 80 % максимального возможного значения поляризации. Напряжение всех импульсов составляло 3.0 В, поскольку при таком значении амплитуды наблюдалось компромиссное соотношение значения остаточной поляризации и общей длительности циклирования [24]. Измерения BAX проводились от -0.2 до $+3.0$ В с шагом 0.1 В в течение 7 с. Такая длительная развертка напряжения позволила уменьшить вклад токов смещения и извлечь их значения при нулевом напря-

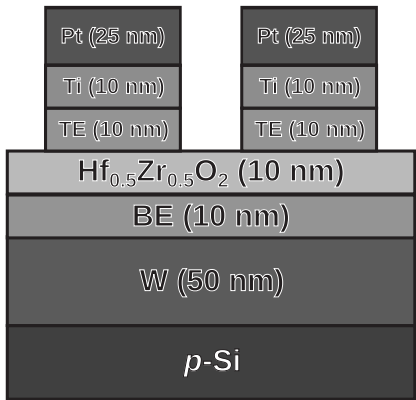


Рис. 1. Схема структуры исследуемых образцов с разными нижним (BE) и верхним (TE) электродами

жении. Измерения проводились с использованием параметрического анализатора Keithley 4200-SCS с модулями 4225-PMU (циклирование и PUND-измерения) и SMU-4210 (BAX) при комнатной температуре. Измерения каждой структуры проводились до ее пробоя или до достижения P_r пренебрежимо малого значения.

Измерения BAX, следующие за PUND-разверткой, позволили выделить токи утечки. В результате усреднения токов, измеренных во время прямой ($0 \rightarrow +V$) и обратной ($+V \rightarrow 0$) разверток напряжения, были исключены токи смещения и получены токи утечки:

$$I_{leakage}(V) = (I_{0 \rightarrow +V}(V) + I_{+V \rightarrow 0}(V)) / 2. \quad (1)$$

Процедура определения тока утечки проиллюстрирована на рис. 3.

Среднее расстояние между соседними ловушками a было получено из моделирования зависимостей токов утечки I – V с использованием модели фонон-облегченного туннелирования электронов (дырок) между соседними ловушками (PATENT) [25]. Ранее было продемонстрировано, что эта модель переноса адекватно описывает утечки как в аморфных, так и в сегнетоэлектрических пленках на основе HfO_2 [26–28], а также в структурах на основе $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ [29–31]. Процедура определения среднего расстояния между ловушками подробно описана в работах [31–33].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Наличие сегнетоэлектрических свойств пленки $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ подтверждается наблюдением гистерезиса в P – V -характеристиках всех структур M1/FE/M2. На рис. 4 показана эволюция сегнетоэлектрических и транспортных свойств

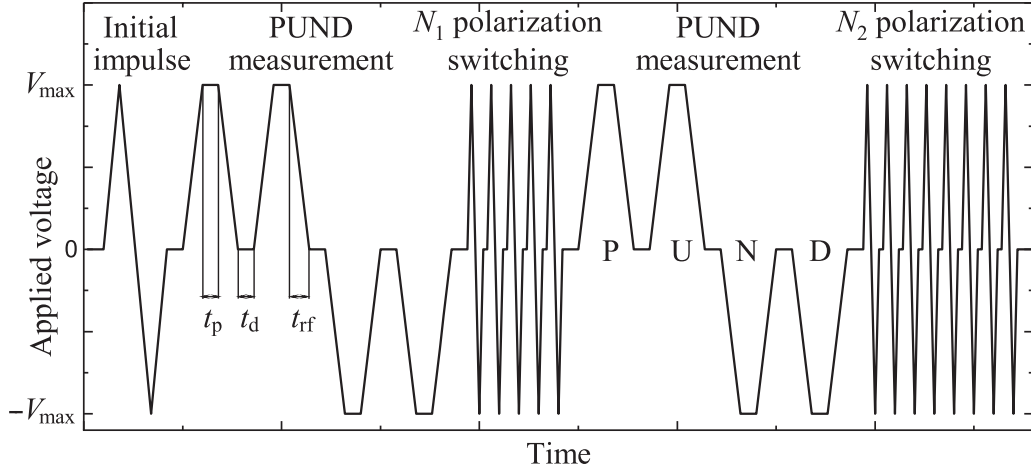


Рис. 2. Схема развертки напряжения во времени при циклировании. Следующее за PUND измерение ВАХ не показано на схеме. Синие буквы P, U, N и D обозначают импульсы PUND-развертки

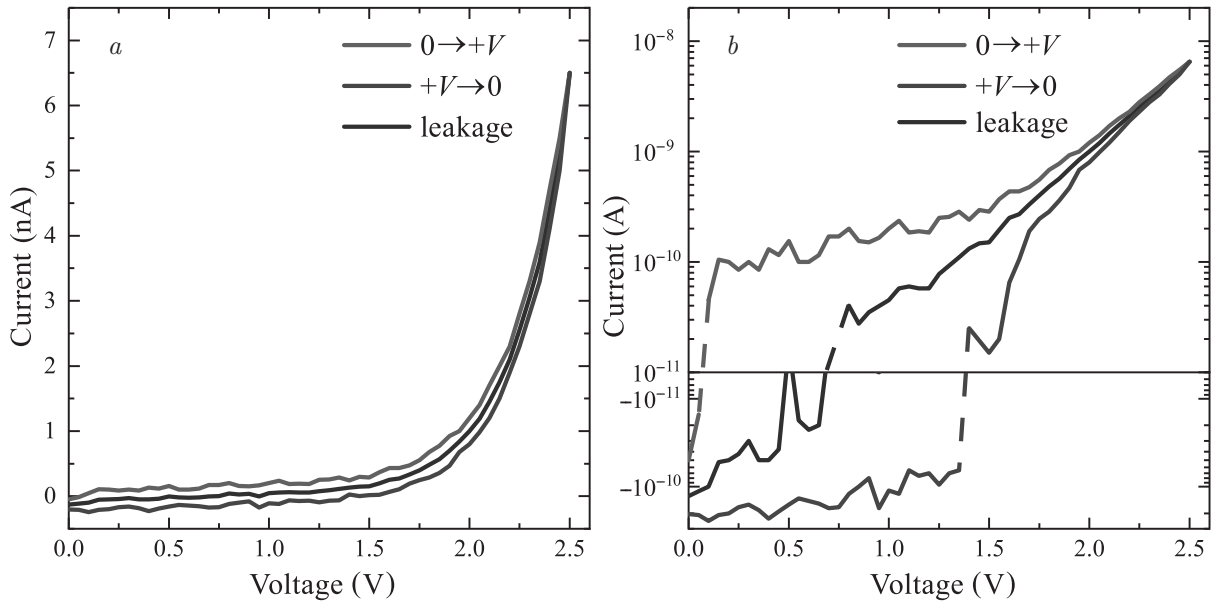


Рис. 3. *a* — Токи, протекающие при увеличении напряжения $I_{0 \rightarrow +V}(V)$ (красные линии) и при уменьшении напряжения $I_{+V \rightarrow 0}(V)$ (синие линии). Токи смещения $\pm C(V) dV/dt$ меняют знак при увеличении и уменьшении напряжения, в то время как токи утечки $I_{leakage}(V)$ не зависят от направления развертки. В результате усреднения от токов $I_{0 \rightarrow +V}(V)$ и $I_{+V \rightarrow 0}(V)$ остаются только токи утечки (черные линии). *b* — Те же данные в полулогарифмическом масштабе. Штриховые линии соединяют положительные и отрицательные значения тока

структур M1/FE/M2 с различными нижними и верхними металлическими электродами. Образец S1 с нижним и верхним электродами из TiN демонстрирует типичную эволюцию остаточной поляризации $P_r^\pm$ (черные символы на рис. 4*a*) в соответствии с литературными данными [31, 34]: он выдерживает более чем 10^6 переключений с небольшими эффектами «wake-up» и «fatigue» с $MW = |P_r^+| + |P_r^-| \approx 20$ мКл/см², после чего необратимо пробивается, как показано на рис. 4 черным крестиком. Значения $P_r^\pm$ образцов S2 и S3 меньше,

чем 10 мКл/см², и сегнетоэлектрический отклик исчезает после 10^8 – 10^9 циклов переключения. У структуры S5 наблюдается наибольшее значение остаточной поляризации $MW \approx 60$ мКл/см². После выраженного эффекта «fatigue» образец достигает пробоя после 10^7 циклов переключения. Значения MW для образцов S1, S4, S6 и S7 близки, и все они, кроме S4, были пробиты после 10^5 – 10^7 циклов переполаризации. Структура с верхним контактом из NbN (S4) выдержала более чем 10^{10} циклов переключения поля с $MW \approx 30$ – 40 мКл/см².

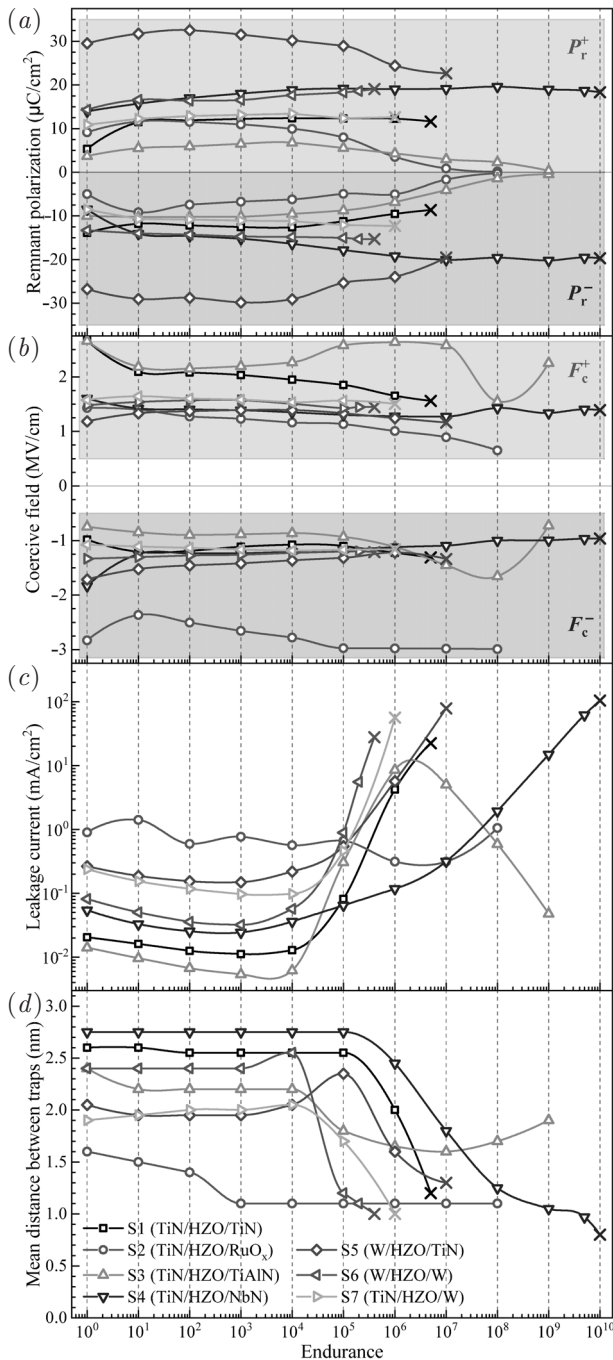


Рис. 4. Эволюция сегнетоэлектрических и транспортных свойств структур M1/FE/M2 с различными нижним (BE) и верхним (TE) электродами: сегнетоэлектрические окна памяти (a), коэрцитивные поля (b), значения токов утечки при 3.0 В (c) и средние расстояния между ловушками (d). Крестиками показаны последние полученные данные перед пробоем структуры. Вертикальные штриховые линии являются наглядными ориентирами

Значения коэрцитивного поля $F_c^\pm$ (рис. 4b) постоянны с небольшими отклонениями почти для всех исследуемых структур, за исключением образцов S2

и S3. Поскольку MW этих структур уменьшается до пренебрежимо малых значений, $F_c^\pm$ теряет свой физический смысл. Можно видеть, что измеренные значения $F_c^\pm$ имеют небольшую асимметрию. Это может быть вызвано встроенным электрическим полем из-за различных значений работы выхода металлических электродов. Кроме того, границы раздела M1/FE и FE/M2 асимметричны из-за воздействия на все BE повышенной температуры процессов ALD и отжига, что может вносить дополнительные искажения в измерения $F_c^\pm$.

Токи утечки, измеренные при напряжении 3.0 В, показаны на рис. 4c. Видно, что утечки возрастают после 10^4 циклов для всех структур кроме образца S2, ток утечки которого сохраняется на одном уровне. Ток утечки структуры S3 демонстрирует сложную эволюцию: до 10^4 циклов переключения его значение снижается, далее увеличивается и после 10^6 циклов уменьшается до исходного.

Значения определенных средних расстояний между соседними ловушками показаны на рис. 4d. Видно, что расстояния между ловушками в сегнетоэлектриках почти всех структур остаются на одном уровне вплоть до 10^4 циклов переполаризации. Уменьшение средних расстояний между ловушками после 10^4 – 10^5 циклов переключения сопровождается увеличением токов утечки из-за их экспоненциальной зависимости [25].

Ранее было показано, что в роли ловушек в $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ выступают вакансии кислорода, поэтому уменьшение расстояния между ловушками связано с образованием новых кислородных вакансий [29, 31]. Ионы кислорода, покинувшие кристаллическую решетку, могут мигрировать во внешнем электрическом поле и даже покинуть пленку $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ с последующим внедрением в металлический электрод [35]. Структура S4 сформирована с верхним электродом из NbN, который более устойчив к окислению, чем TiN [36]. Таким образом, электрод TiN в структурах поглощает больше кислорода, чем NbN. Этот эффект приводит к большей долговечности структуры S4 при переполаризации даже при большом количестве дефектов.

Трудно определить, где расположены новые кислородные вакансии. Мы предполагаем, что изначально ловушки сосредоточены на границах кристаллитов, и лишь малая их часть распределена по объему пленок. Таким образом, ток утечки обусловлен ловушками на границах кристаллитов. После 10^4 циклов в объеме кристаллитов образуются новые ловушки из-за миграции ионов кислорода во время циклического переключения, и некоторые

ионы могут достигать границ кристаллитов или даже границы раздела $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ /металл с последующим поглощением электродами. Тогда токи утечки начинают ограничиваться ловушками в объеме кристаллитов. При этом часть приложенного напряжения падает на интерфейсном слое между $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ и электродом, таким как WO_x для W [37] или TiON для TiN [38]. Если ловушки расположены на границах кристаллитов, то среднее расстояние между ловушками a может быть преобразовано в поверхностную (2D) плотность $N_{2D} = a^{-2} \sim 10^{13}\text{--}10^{14}\text{ см}^{-2}$. Если ловушки распределены в объеме кристаллита, то объемная (3D) плотность ловушек составляет $N_{3D} = a^{-3} \sim 10^{19}\text{--}10^{21}\text{ см}^{-3}$.

Интересно отметить, что структура S5 с нижним электродом из W демонстрирует чрезвычайно высокое значение MW по сравнению с другими структурами. Мы предполагаем, что это вызвано присутствием межфазного подслоя WO_x с высокой статической диэлектрической проницаемостью после осаждения $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$. Это подтверждается РФЭС-анализом, проведенным для этого же набора структур в работе [37]. Циклирование приводит к быстрому образованию новых кислородных вакансий в сегнетоэлектрике, образуя межфазный подслей с последующим пробоем. Электроды RuO_x и TiAlN поглощают кислород активнее, чем другие металлы, подслей интерфейса формируется быстрее, и напряжение падает именно на нем [39]. Это приводит к исчезновению сегнетоэлектрического отклика в пленках $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ и уменьшению токов утечки. Следует отметить, что эти образцы не были пробиты за время измерений. Можно предположить, что электроды RuO_x и TiAlN более подходят для применения в DRAM, чем для FRAM.

Также интересно отметить, что структуры S5 и S7 симметричны друг другу, но демонстрируют различную эволюцию сегнетоэлектрических свойств во время процедуры циклирования. Мы предполагаем, что это вызвано различными температурными воздействиями на BE (280°C) и TE (комнатная температура) при формировании сегнетоэлектрической пленки и структуры в целом. Следует отметить, что не только материал электрода, но и его специфические характеристики, такие как размер кристаллитов, могут влиять на свойства пленки $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ и ее эксплуатационные качества. Изучение структурных свойств металлических электродов и их влияние на сегнетоэлектрические свойства пленки $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ выходит за рамки данной работы и является задачей на будущее.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, для структур на основе тонких сегнетоэлектрических пленок $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ с различными металлическими электродами были проведены экспериментальные измерения по транспорту заряда в сочетании с его моделированием. Обнаружено, что электроды RuO_x и TiAlN подавляют как сегнетоэлектрический отклик в пленках $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$, так и утечки через структуру. Использование NbN в качестве электрода в структурах M/FE/M позволяет получить более стабильный сегнетоэлектрический конденсатор, выдерживающий более 10^{10} циклов переполяризации.

Благодарности. Авторы выражают благодарность Prof. Thomas Mikolajick, Dr. Uwe Schroeder, Ruben Alcala и Monica Materano за предоставленные образцы. Авторы выражают признательность и благодарность Dr. Uwe Schroeder и Алексею Мионову за ценные обсуждения и критические замечания.

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ для Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Bondurant, *Ferroelectrics* **112**, 273 (1990).
2. T. S. Böske, J. Müller, D. Bräuhäus et al., *Appl. Phys. Lett.* **99**, 102903 (2011).
3. T. S. Böske, S. Teichert, D. Bräuhäus et al., *Appl. Phys. Lett.* **99**, 112904 (2011).
4. X. Sang, E. D. Grimley, T. Schenk et al., *Appl. Phys. Lett.* **106**, 162905 (2015).
5. M. Trentzsch, S. Flachowsky, R. Richter et al., *IEEE IEDM*, 11.5.1 (2016).
6. S. Mueller, J. Muller, U. Schroeder et al., *IEEE Trans. Device Mater. Reliab.* **13**, 93 (2013).
7. M. Pesič, F. P. G. Fengler, S. Slesazeck et al., *IEEE IRPS*, MY-3-1 (2016).
8. U. Schroeder, E. Yurchuk, J. Müller et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 08LE02 (2014).
9. H. J. Kim, M. H. Park, Y. J. Kim et al., *Nanoscale* **8**, 1383 (2016).
10. Y. Lee, H. Alex Hsain, S. S. Fields et al., *Appl. Phys. Lett.* **118**, 012903 (2021).

11. M. G. Kozodaev, A. G. Chernikova, E. V. Korostylev et al., *J. Appl. Phys.* **125**, 034101 (2019).
12. M. I. Popovici, A. M. Walke, J. Bizindavyi et al., *ACS Appl. Electron. Mater.* **4**, 1823 (2022).
13. M. H. Park, H. J. Kim, Y. J. Kim et al., *Phys. Status Solidi (RRL)* **8**, 532 (2014).
14. S. S. Fields, S. W. Smith, S. T. Jaszewski et al., *J. Appl. Phys.* **130**, 134101 (2021).
15. A. G. Chernikova, M. G. Kozodaev, R. R. Khakimov et al., *Appl. Phys. Lett.* **117**, 192902 (2020).
16. S. Migita, H. Ota, H. Yamada et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 04FB01 (2018).
17. S. W. Smith, A. R. Kitahara, M. A. Rodriguez et al., *Appl. Phys. Lett.* **110**, 072901 (2017).
18. M. H. Park, H. J. Kim, Y. J. Kim et al., *Appl. Phys. Lett.* **105**, 072902 (2014).
19. T. Shimizu, T. Yokouchi, T. Shiraishi et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 09PA04 (2014).
20. M. Hyuk Park, H. Joon Kim, Y. Jin Kim et al., *Appl. Phys. Lett.* **102**, 112914 (2013).
21. M. H. Park, H. J. Kim, Y. J. Kim et al., *Appl. Phys. Lett.* **104**, 072901 (2014).
22. T. Shimizu, T. Yokouchi, T. Oikawa et al., *Appl. Phys. Lett.* **106**, 112904 (2015).
23. G. Karbasian, R. dos Reis, A. K. Yadav et al., *Appl. Phys. Lett.* **111**, 022907 (2017).
24. T. M. Zalyalov and D. R. Islamov, 2022 IEEE EDM, 48 (2022).
25. К. А. Насыров, В. А. Гриценко, *ЖЭТФ* **139**, 1172 (2011).
26. D. R. Islamov, V. A. Gritsenko, C. H. Cheng et al., *Appl. Phys. Lett.* **105**, 222901 (2014).
27. V. A. Gritsenko, T. V. Perevalov, and D. R. Islamov, *Phys. Rep.* **613**, 1 (2016).
28. V. A. Gritsenko and A. A. Gismatulin, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 142901 (2020).
29. D. R. Islamov, T. V. Perevalov, V. A. Gritsenko et al., *Appl. Phys. Lett.* **106**, 102906 (2015).
30. Д. Р. Исламов, А. Г. Черникова, М. Г. Козодаев и др., *Письма в ЖЭТФ* **102**, 610 (2015).
31. D. R. Islamov, V. A. Gritsenko, T. V. Perevalov et al., *Acta Mater.* **166**, 47 (2019).
32. Д. Р. Исламов, В. А. Гриценко, А. Чин, *Автометрия* **53**, 102 (2017).
33. A. A. Pil'nik, A. A. Chernov, and D. R. Islamov, *Sci. Rep.* **10**, 15759 (2020).
34. J. Müller, T. S. Böске, D. Bräuhäus et al., *Appl. Phys. Lett.* **99**, 112901 (2011).
35. P. Nukala, M. Ahmadi, Y. Wei et al., *Science* **372**, 630 (2021).
36. H. C. Barshilia, M. S. Prakash, A. Poojari et al., *Thin Solid Films* **460**, 133 (2004).
37. R. Alcala, M. Materano, P. D. Lomenzo et al., *Adv. Funct. Mater.* **33**, 2303261 (2023).
38. E. D. Grimley, T. Schenk, X. Sang et al., *Adv. Electron. Mater.* **2**, 1600173 (2016).
39. R. Alcala, F. Mehmood, P. Vishnumurthy et al., *IEEE IMW* (2022).

ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНАЯ ЖИДКОСТЬ В МОНОСЛОЙНЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ НА ОСНОВЕ ДИХАЛЬКОГЕНИДОВ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ

*П. В. Ратников**

*Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 3 мая 2024 г.,
после переработки 12 июля 2024 г.
Принята к публикации 18 июля 2024 г.

Рассмотрена возможность возникновения диэлектрической электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) в монослоях дихалькогенидов переходных металлов и гетероструктурах на их основе. Показано, что когерентное спаривание электронов и дырок в них приводит к образованию диэлектрической ЭДЖ при превышении степени циркулярной поляризации возбуждающего света определенного порогового значения. Ниже этого значения реализуется металлическая ЭДЖ. Отмечены некоторые возможные физические проявления перехода между этими двумя типами ЭДЖ.

DOI: 10.31857/S0044451024110142

1. ВВЕДЕНИЕ

Последние два десятилетия физика двумерных (2D) материалов, в частности, дихалькогенидов переходных металлов (ДПМ), привлекает внимание многих исследователей. ДПМ являются слоистыми материалами и описываются химической формулой MX_2 , где М — атом переходного металла (обычно $\text{M}=\text{Mo}, \text{W}$) и X — атом халькогена ($\text{X}=\text{S}, \text{Se}, \text{Te}$). Подобно расщеплению графита на слои графена [1] ДПМ можно расщепить на тонкие пленки. Пленка наименьшей толщины состоит из двух слоев атомов X, между которыми вставлен слой атомов М. Такие пленки принято называть монослоями ДПМ.

Особенности зонной структуры делают монослой ДПМ привлекательными для использования их в долинотронике [2]. В них оказывается возможным селективное по долинам возбуждение электрон-дырочных пар в зависимости от типа циркулярной поляризации света: при поглощении правополяризованного света оптические переходы идут в одной долине, а для левополяризованного — в другой [3].

Предположение о существовании диэлектрической электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) было

высказано в работе [4]. Такое состояние может реализоваться за счет когерентного спаривания электронов и дырок.

В первых теоретических работах, посвященных вычислению энергии основного состояния ЭДЖ (см., например, обзор [5]), в качестве нулевого приближения использовался свободный электронно-дырочный газ, энергия которого обращается в нуль в пределе нулевой плотности, а не стремится к энергии экситона. Это указывало на некорректный учет электрон-дырочных корреляций в области малых плотностей носителей заряда.

Давно известно, что металлическое состояние оказывается неустойчивым из-за электрон-дырочных корреляций, что приводит к открытию энергетической щели на поверхности Ферми, величина которой при нулевой плотности совпадает с энергией связи экситона [6]. Оценка вклада электрон-дырочных корреляций в энергию ЭДЖ при введении металлической экранировки была сделана в работе [7]. Однако и это приближение выглядит неудовлетворительным.

В работе [8] впервые было показано, что когерентное спаривание электронов и дырок в трехмерных (3D) полупроводниках с изотропными зонами приводит к образованию диэлектрической ЭДЖ. Для построения нулевого приближения системы электронов и дырок, взаимодействующих по закону

* E-mail: ratnikov@lpi.ru

Кулона, было использовано каноническое преобразование [9].

В настоящей работе нами исследована диэлектрическая ЭДЖ в монослоях ДПМ и гетероструктурах на их основе с учетом специфики их зонной структуры. Нами адаптировано к этой задаче каноническое преобразование и показано, что диэлектрическая ЭДЖ может быть более энергетически выгодной, чем металлическая, за счет уменьшения кратности вырождения носителей заряда.

2. МОДЕЛЬНЫЕ ПОЛОЖЕНИЯ

Гамильтониан системы электронов и дырок, взаимодействующих по закону Кулона, с учетом особенности зонной структуры монослоев ДПМ имеет вид, аналогичный гамильтониану в работе [9]

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{\mathbf{p}s\tau} (\varepsilon_{\mathbf{p}}^e - \mu_e) a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}sK\tau} + \\ & + \sum_{\substack{\mathbf{p}s \\ \tau=\text{sgn}(s)}} (\varepsilon_{\mathbf{p}}^h - \mu_h) b_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger b_{\mathbf{p}sK\tau} + \\ & + \frac{1}{2} \sum_{\substack{\mathbf{p}\mathbf{p}'\mathbf{k} \\ s s' \tau \tau'}} V_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K\tau'} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK\tau} + \\ & + \frac{1}{2} \sum_{\substack{\mathbf{p}\mathbf{p}'\mathbf{k}s s' \\ \tau=\text{sgn}(s) \\ \tau'=\text{sgn}(s')}} V_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger b_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K\tau'} b_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK\tau} - \\ & - \sum_{\substack{\mathbf{p}\mathbf{p}'\mathbf{k} \\ s s' \tau \\ \tau'=\text{sgn}(s')}} V_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger b_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K\tau'} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK\tau}. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь $a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger$ ($a_{\mathbf{p}sK\tau}$) и $b_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger$ ($b_{\mathbf{p}sK\tau}$) — операторы рождения (уничтожения) электронов и дырок с квазиимпульсом $\mathbf{p}$ и проекцией спина s ($s = \pm 1/2$) в долине точки зоны Бриллюэна K_τ , $\tau = \pm$ — долинный индекс (для дырок он совпадает со знаком проекции спина $\text{sgn}(s)$, что явно отражено в (1)); $\mu_{e(h)}$ — химический потенциал электронов (дырок), определяемый условием

$$\sum_{\mathbf{p}s\tau} \langle a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}sK\tau} \rangle = \sum_{\substack{\mathbf{p}s \\ \tau=\text{sgn}(s)}} \langle b_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger b_{\mathbf{p}sK\tau} \rangle = n, \quad (2)$$

где n — 2D-плотность электронов и дырок¹⁾, $\langle \rangle$ означает усреднение по основному состоянию.

¹⁾ В случае неравного заселения долин следует ввести 2D-плотности частиц n_+ в долине точки K_+ и n_- в долине точки

Кулоновское взаимодействие выбирается в виде потенциала Келдыша²⁾ [10, 11]

$$V_{\mathbf{k}} = \frac{2\pi}{|\mathbf{k}|(1+r_0|\mathbf{k}|)} \quad (3)$$

с параметром экранирования r_0 , который определяется наилучшим совпадением расчетной энергии связи экситона в пределе нулевой плотности с экспериментально измеренной.

Законы дисперсии носителей заряда

$$\varepsilon_{\mathbf{p}}^e = \frac{\mathbf{p}^2}{1+\sigma}, \quad \varepsilon_{\mathbf{p}}^h = \frac{\sigma \mathbf{p}^2}{1+\sigma}, \quad \sigma = \frac{m_e}{m_h}. \quad (4)$$

Мы используем систему единиц с $e^2/\varepsilon_{\text{eff}} = \hbar = 2m = 1$, где $\varepsilon_{\text{eff}} = (\varepsilon_1 + \varepsilon_2)/2$ — эффективная статическая диэлектрическая проницаемость, определяемая диэлектрическими проницаемостями сред, окружающих монослой ДПМ (например, вакуум и подложка); $m = m_e m_h / (m_e + m_h)$ — приведенная масса электрона (с эффективной массой m_e) и дырки (с эффективной массой m_h). Как и ранее [13], мы полагаем в гамильтониане (1) m_e и m_h не зависящими от s и τ .

Энергия связи 2D-экситона с обычным кулоновским взаимодействием $2\pi e^2/\varepsilon_{\text{eff}}|\mathbf{k}|$ принята нами в качестве единицы измерения энергии E и температуры T

$$E_x = \frac{2m e^4}{\hbar^2 \varepsilon_{\text{eff}}^2}, \quad (5)$$

а в качестве единицы измерения расстояния — его боровский радиус

$$a_x = \frac{\hbar^2 \varepsilon_{\text{eff}}}{2m e^2}. \quad (6)$$

2D-плотность частиц n измеряется в единицах a_x^{-2} . Площадь системы полагаем равной единице.

При переводе величин в размерные используется ранее примененный нами прием [12], когда вычисленные безразмерные значения плотности делятся

K_- ($n_+ + n_- = n$):

$$\sum_{\mathbf{p}s} \langle a_{\mathbf{p}sK\pm}^\dagger a_{\mathbf{p}sK\pm} \rangle = \sum_{\mathbf{p}} \langle b_{\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K\pm}^\dagger b_{\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K\pm} \rangle = n_{\pm}.$$

Неравное заселение долин достигается при возбуждении светом со степенью циркулярной поляризации, отличной от 0. Если она стремится к 1, монослой ДПМ ведет себя как однодолинный полупроводник.

²⁾ Ранее для металлической ЭДЖ нами был принят обычный кулоновский 2D-потенциал, что дало весьма хорошее согласие с экспериментом. При этом для расчетов экситонов использовался потенциал Келдыша. Для обоснования такого выбора потребовались дополнительные аргументы (см. наши работы [12, 13]). Здесь же исходным состоянием (при $n \rightarrow 0$) является разреженный экситонный газ и для него следует взять потенциал (3).

на квадрат численно найденного боровского радиуса, а энергия (температура) умножается на численно найденную энергию связи экситона. Боровский радиус и энергия связи экситона зависят от диэлектрического окружения монослоев ДПМ. Для одного и того же материала монослоя безразмерные величины одни и те же, но их размерные значения зависят от $\epsilon_{\text{эф}}$. В частности, размерные ответы для монослоя ДПМ на подложке SiO_2 и того же монослоя, инкапсулированного тонкими слоями гексагонального нитрида бора, различны (во втором варианте равновесная плотность, энергия связи ЭДЖ, критическая температура перехода газ–жидкость меньше).

Отметим некоторые допущения, сделанные при выборе гамильтониана (1).

Во-первых, мы полагали процессы рассеяния электронов и дырок с переворотом спина подавленными благодаря отсутствию магнитного момента атомов, составляющих кристалл, и магнитных примесей. Следует, однако, отметить, что процессы переворота спина могут быть разрешены в бислоях ДПМ, которые составлены из двух монослоев, при переходе носителей заряда между монослоями в поперечном электрическом поле [14].

В гамильтониане (1) учтена специфика зонной структуры монослоев ДПМ. Напомним, что имеется большое спин-орбитальное расщепление валентной зоны $\Delta_v \gtrsim 100$ мэВ [15]. Расщепление зоны проводимости составляет $\Delta_c = 1 - 30$ мэВ [16, 17]. Последним можно пренебречь при температурах, сравнимых с комнатной, считая электроны вырожденными по спину. При энергии возбуждающих фотонов $\hbar\omega$ в пределах $E_g < \hbar\omega < E_g + \Delta_v$ (E_g — зонная щель) дырки рождаются только на верхних спиновых ветвях валентной зоны: со спином вверх в долине точки K_+ и со спином вниз в долине точки K_- (см. рис. 1). Таким образом, суммирование по проекциям спина дырок в (1) эквивалентно суммированию по долинам.

Отметим, что порядок следования спиновых ветвей в зоне проводимости, показанный на рис. 1, для определенности принят таким, какой он имеется в системах с молибденом; в системах же с вольфрамом порядок следования обратный [3]. Но это не оказывает влияния на окончательные ответы из-за того, что температура считается заметно превышающей спиновое расщепление зоны проводимости.

Во-вторых, мы не принимали явно в расчет процессы междолинного переброса носителей заряда. Волновые функции носителей из разных долин ортогональны, а матричные элементы, отвечающие процессам междолинного переброса, малы по срав-

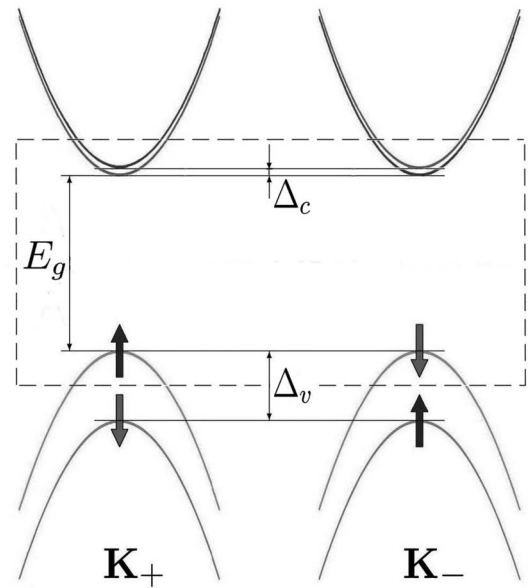


Рис. 1. (В цвете онлайн) Зонная структура монослоев ДПМ. Показаны нижняя зона проводимости и верхняя валентная зона при двух точках K_+ и K_- . Стрелками указаны спиновые ориентации ветвей валентной зоны. Спиновое расщепление валентной зоны равно Δ_v . Ввиду малого расщепления по спину в зоне проводимости Δ_c спиновые ветви в ней выделены тоном: более светлые соответствуют спину вверх, более темные — спину вниз. Зонная щель равна E_g . Штриховыми линиями отмечены ветви, заселяемые при фотовозбуждении

нению с матричными элементами, оставленными нами в гамильтониане (1) [18]. Однако, в отношении монослоев ДПМ известно, что долинная поляризация экситонов теряется очень быстро вследствие обменного взаимодействия электронов и дырок [3].

В-третьих, мы не учитывали явным образом рекомбинацию электронов и дырок. Хотя она была учтена косвенно в выборе основного состояния системы взаимодействующих электронов и дырок в виде разреженного экситонного газа. При этом более низколежащими по энергии, чем экситоны, являются биэкситоны и трионы³⁾. Однако из-за конечности времени жизни всех типов частиц (как свободных носителей, так и составных) число биэкси-

³⁾ Например, в инкапсулированных нитридом бора монослоях WSe_2 энергия связи биэкситона (т. е. выигрыш энергии при образовании биэкситона по отношению к энергии двух экситонов) равна 17 мэВ [19], что составляет $\simeq 10\%$ от энергии связи экситона $E_b^{(exc)} = 167 \pm 3$ мэВ [20], в то время как энергия связи внутримолекулярного электронного триона (т. е. выигрыш энергии при захвате экситоном электрона) составляет 35 мэВ [19], что $\simeq 20\%$ от $E_b^{(exc)}$.

тонов и трионов мало по сравнению с числом экситонов, поскольку они не успевают образоваться из вторых в большом количестве в течение малых времен жизни. Эти соображения подтверждаются тем, что гашение экситонных линий в спектре фотолюминесценции монослоев ДПМ происходит при достаточно высокой интенсивности фотовозбуждения и электронном (дырочном) легировании (превышение числа одних носителей над числом других носителей составляло вплоть до $\sim 10^{13} \text{ см}^{-2}$) [21–23].

С другой стороны, вопрос о стабильности основного состояния в 2D-случае качественно подобен таковому в 3D-случае. В области плотностей $n_B \lesssim n \lesssim n_{dm}$ ($n_B \simeq 10^{-3}$ — плотность, при которой состояние, построенное из биэкситонов становится неустойчивым; n_{dm} — плотность перехода металл-диэлектрик) основное состояние системы электронов и дырок, взаимодействующих по закону Кулона, построено из экситонов [4, 24].

В дальнейшем предполагается, что плотность n попадает в указанный выше интервал плотностей (плотность n_{dm} для монослоев ДПМ была нами рассчитана в предыдущей работе [13]). Основное состояние, построенное из трионов, реализуется в условиях электронного (дырочного) легирования (см. также работы [21–23, 25]). В рассматриваемом нами случае такого легирования нет.

Равновесное состояние успевает установиться, если время жизни носителей заряда существенно превышает время термализации [26].

Среднее время между двумя последовательными столкновениями $\sim 1/(n^{1/2}v_T)$ (v_T — тепловая скорость носителей или экситонов). По нашим расчетам, представленным ниже, $n \simeq 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Для эффективных масс носителей заряда $m_{e,h}^* \simeq 0.5m_0$ (m_0 — масса свободного электрона) и температуры, сравнимой с комнатной, $v_T \simeq 10^7 \text{ см/с}$, откуда среднее время между столкновениями $\sim 1 \text{ пс}$. Откуда время образования диэлектрической ЭДЖ можно оценить как $\gtrsim 10 \text{ пс}$.

В области малых температур присущее время излучательной рекомбинации (intrinsic radiative decay time) оказывается $\sim 1 \text{ пс}$, а в высокотемпературной области вводится эффективное излучательное время жизни (effective radiative lifetime), которое уже на три порядка величины больше первого, $\sim 1 \text{ нс}$ [27, 28]. Мы видим, что критерий малости времени термализации (образования диэлектрической ЭДЖ) по сравнению с временем рекомбинации выполняется с большим запасом в области высоких температур. Причем сначала формируются экситоны, а затем из них образуется диэлектрическая

ЭДЖ, поскольку время релаксации экситонов всегда меньше указанных первых двух времен — оно субпикосекундного масштаба [29].

Рекомбинация также качественно учитывается, когда подразумевается динамическое равновесие между числом рождаемых электрон-дырочных пар в режиме непрерывного фотовозбуждения и рекомбинируемых частиц. Это позволяет считать n заданной величиной.

Зонная щель полупроводниковых монослоев ДПМ $E_g \simeq 2 \text{ эВ}$ [3] велика по сравнению с характерными значениями энергии (например, энергия связи экситона не превосходит 0.4 эВ [20, 30–32]), поэтому мы используем однозонное приближение.

3. КОГЕРЕНТНОЕ СПАРИВАНИЕ ЭЛЕКТРОНОВ И ДЫРОК

Как указано выше, основное состояние системы электронов и дырок, взаимодействующих по закону Кулона, построено из экситонов. Для учета этого положения сделаем каноническое преобразование [9] гамильтониана (1)

$$\Lambda_{\mathbf{p}} = S L_{\mathbf{p}} S^{\dagger}, \quad (7)$$

где для удобства записи введены следующие столбцы операторов:

$$L_{\mathbf{p}} = \begin{pmatrix} A_{\mathbf{p}+} \\ A_{\mathbf{p}-} \\ B_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}, \quad A_{\mathbf{p}\tau} = \begin{pmatrix} a_{\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_{\tau}} \\ a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_{\tau}} \end{pmatrix}, \quad B_{\mathbf{p}} = \begin{pmatrix} b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_{+}}^{\dagger} \\ b_{-\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_{-}}^{\dagger} \end{pmatrix}.$$

Столбец $\Lambda_{\mathbf{p}}$ составлен из «новых» фермиевских операторов, которые для отличия их от «старых» операторов обозначаем соответствующими греческими буквами с теми же индексами и в том же порядке, что и в столбце $L_{\mathbf{p}}$.

В случае равного заселения долин⁴⁾ унитарный оператор S определяется как

$$S = \exp \left\{ \frac{i}{\sqrt{2}} \sum_{\mathbf{p}\tau} L_{\mathbf{p}\tau}^{\dagger} \hat{F}_{\mathbf{p}} L_{\mathbf{p}\tau} \right\}, \quad (8)$$

⁴⁾ Случай неравного заселения долин рассмотрен ниже отдельно.

где

$$\begin{aligned} L_{\mathbf{p}\tau} &= \begin{pmatrix} A_{\mathbf{p}\tau} \\ B_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}, \\ \hat{F}_{\mathbf{p}} &= \begin{pmatrix} O & \hat{\Phi}_{\mathbf{p}} \\ \hat{\Phi}_{\mathbf{p}}^\dagger & O \end{pmatrix}, \\ \hat{\Phi}_{\mathbf{p}} &= -i \begin{pmatrix} \delta_{\mathbf{p}} & \gamma_{\mathbf{p}} \\ \gamma_{\mathbf{p}} & \delta_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}, \end{aligned}$$

$\gamma_{\mathbf{p}}$ и $\delta_{\mathbf{p}}$ — функции квазиимпульса, определяющиеся из условия минимальности энергии и устойчивости основного состояния системы.

Прямыми вычислениями находим

$$\Lambda_{\mathbf{p}} = \hat{R}_{\mathbf{p}} L_{\mathbf{p}}, \quad (9)$$

где матрица 6×6

$$\hat{R}_{\mathbf{p}} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(M_{\mathbf{p}} + I) & \frac{1}{2}(M_{\mathbf{p}} - I) & N_{\mathbf{p}} \\ \frac{1}{2}(M_{\mathbf{p}} - I) & \frac{1}{2}(M_{\mathbf{p}} + I) & N_{\mathbf{p}} \\ -N_{\mathbf{p}} & -N_{\mathbf{p}} & M_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}$$

задается матрицами 2×2 (I — единичная матрица)

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= \begin{pmatrix} \cos \gamma_{\mathbf{p}} \cos \delta_{\mathbf{p}} & -\sin \gamma_{\mathbf{p}} \sin \delta_{\mathbf{p}} \\ -\sin \gamma_{\mathbf{p}} \sin \delta_{\mathbf{p}} & \cos \gamma_{\mathbf{p}} \cos \delta_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}, \\ N_{\mathbf{p}} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \cos \gamma_{\mathbf{p}} \sin \delta_{\mathbf{p}} & \sin \gamma_{\mathbf{p}} \cos \delta_{\mathbf{p}} \\ \sin \gamma_{\mathbf{p}} \cos \delta_{\mathbf{p}} & \cos \gamma_{\mathbf{p}} \sin \delta_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Возможны два типа спаривания: синглетное $\gamma_{\mathbf{p}} = \varphi_{\mathbf{p}}$ и $\delta_{\mathbf{p}} \equiv 0$ (суммарный спин электрона и дырки $\tilde{S} = 0$) или триплетное $\gamma_{\mathbf{p}} \equiv 0$ и $\delta_{\mathbf{p}} = \varphi_{\mathbf{p}}$ ($\tilde{S} = 1$). Операторы принимают вид

$$\begin{aligned} \alpha_{\mathbf{p}sK\tau} &= \\ &= \frac{1}{2}(\cos \varphi_{\mathbf{p}} + 1) a_{\mathbf{p}sK\tau} + \frac{1}{2}(\cos \varphi_{\mathbf{p}} - 1) a_{\mathbf{p}sK-\tau} + \\ &+ \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} \left(\delta_{\tilde{S}0} b_{-\mathbf{p}-sK-\text{sgn}(s)}^\dagger + \delta_{\tilde{S}1} b_{-\mathbf{p}sK\text{sgn}(s)}^\dagger \right), \\ \beta_{\mathbf{p}sK\text{sgn}(s)} &= \cos \varphi_{\mathbf{p}} b_{\mathbf{p}sK\text{sgn}(s)} - \\ &- \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} \left[\delta_{\tilde{S}0} \left(a_{-\mathbf{p}-sK+}^\dagger + a_{-\mathbf{p}-sK-}^\dagger \right) + \right. \\ &\left. + \delta_{\tilde{S}1} \left(a_{-\mathbf{p}sK+}^\dagger + a_{-\mathbf{p}sK-}^\dagger \right) \right]. \end{aligned} \quad (10)$$

Матрица $\hat{R}_{\mathbf{p}}$ является, как это и должно быть, матрицей поворота. В частности, непосредственным вычислением получается $\det \hat{R}_{\mathbf{p}} \equiv 1$. Чтобы показать,

какой поворот она осуществляет при конкретном типе спаривания, введем столбцы

$$\begin{aligned} \tilde{L}_{\mathbf{p}s} &= \begin{pmatrix} \tilde{L}_{\mathbf{p}s+} \\ \tilde{L}_{\mathbf{p}s-} \end{pmatrix}, \quad \tilde{L}_{\mathbf{p}s\pm} = \begin{pmatrix} a_{\mathbf{p}sK+} \\ a_{\mathbf{p}sK-} \\ b_{-\mathbf{p}\pm sK\pm\text{sgn}(s)}^\dagger \end{pmatrix}, \\ \tilde{\Lambda}_{\mathbf{p}s} &= \begin{pmatrix} \tilde{\Lambda}_{\mathbf{p}s+} \\ \tilde{\Lambda}_{\mathbf{p}s-} \end{pmatrix}, \quad \tilde{\Lambda}_{\mathbf{p}s\pm} = \begin{pmatrix} \alpha_{\mathbf{p}sK+} \\ \alpha_{\mathbf{p}sK-} \\ \beta_{-\mathbf{p}\pm sK\pm\text{sgn}(s)}^\dagger \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Знак «+» в $\tilde{L}_{\mathbf{p}s}$ и $\tilde{\Lambda}_{\mathbf{p}s}$ соответствует триплетному спариванию, знак «-» — синглетному спариванию. Тогда преобразование (10) перепишется

$$\tilde{\Lambda}_{\mathbf{p}s} = \hat{R}'_{\mathbf{p}} \tilde{L}_{\mathbf{p}s}, \quad \hat{R}'_{\mathbf{p}} = \begin{pmatrix} \mathcal{R}_{\mathbf{p}} & O \\ O & \mathcal{R}_{\mathbf{p}} \end{pmatrix},$$

где матрица

$$\mathcal{R}_{\mathbf{p}} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(\cos \varphi_{\mathbf{p}} + 1) & \frac{1}{2}(\cos \varphi_{\mathbf{p}} - 1) & \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} \\ \frac{1}{2}(\cos \varphi_{\mathbf{p}} - 1) & \frac{1}{2}(\cos \varphi_{\mathbf{p}} + 1) & \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} & -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} & \cos \varphi_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}$$

является матрицей поворота в трехмерном пространстве на угол $\varphi_{\mathbf{p}}$ вокруг оси, лежащей в плоскости xy под углом $-\pi/4$ к оси x . Матрица $\hat{R}'_{\mathbf{p}}$ отличается от матрицы $\hat{R}_{\mathbf{p}}$ лишь четной перестановкой строк и столбцов.

С точки зрения теории групп представление матрицами $\hat{R}'_{\mathbf{p}}$ подгруппы вращений в шестимерном пространстве, индуцированной рассматриваемым каноническим преобразованием, является прямой суммой двух представлений подгруппы вращений в трехмерном пространстве, в которую входят только вращения вокруг одной определенной оси.

Гамильтониан (1) после преобразования (7) принимает вид⁵⁾ [9, 24]

$$\hat{\mathcal{H}} = S \hat{H} S^\dagger = \tilde{U} \{ \varphi_{\mathbf{p}} \} + \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{H}}_i - \mu n, \quad (11)$$

где $\mu = \mu_e + \mu_h$, $\tilde{U} \{ \varphi_{\mathbf{p}} \}$ — числовой функционал, возникающий от приведения гамильтониана к нормальному виду:

$$\begin{aligned} \tilde{U} \{ \varphi_{\mathbf{p}} \} &= 2 \sum_{\mathbf{p}} \varepsilon_{\mathbf{p}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}} - \\ &- 2 \sum_{\mathbf{p}\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} (\sin^2 \varphi_{\mathbf{p}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}'} + \\ &+ \cos \varphi_{\mathbf{p}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} \cos \varphi_{\mathbf{p}'} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}), \end{aligned} \quad (12)$$

⁵⁾ Забегая вперед, укажем, что для выделения последнего члена в (11) было использовано равенство (16).

где $\varepsilon_{\mathbf{p}} = \varepsilon_{\mathbf{p}}^e + \varepsilon_{\mathbf{p}}^h$. Двойки возникли из-за суммирования по s .

Операторы $\hat{\mathcal{H}}_0$ и $\hat{\mathcal{H}}_i$ приведены в Приложении А.

Плотность «новых» квазичастиц должна определяться таким же образом, как и плотность исходных квазичастиц (2):

$$\sum_{\mathbf{p}s\tau} \langle \alpha_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} \alpha_{\mathbf{p}sK_{\tau}} \rangle = \sum_{\mathbf{p}s} \langle \beta_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} \beta_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}} \rangle = n. \quad (13)$$

Подставив выражения «новых» операторов (10) в (13) и взяв полусумму обеих сумм в (13), находим

$$\begin{aligned} & \sum_{\mathbf{p}s\tau} \left[\frac{1}{2} \cos^2 \varphi_{\mathbf{p}} \langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}sK_{\tau}} \rangle - \right. \\ & - \frac{1}{2} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}} \langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}sK_{-\tau}} \rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \varphi_{\mathbf{p}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} \times \\ & \times \left(\delta_{\tilde{S}0} \langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^{\dagger} + b_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}} a_{\mathbf{p}sK_{\tau}} \rangle + \right. \\ & + \delta_{\tilde{S}1} \langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} + b_{-\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}} a_{\mathbf{p}sK_{\tau}} \rangle \left. \right) + \\ & \left. + \frac{1}{4} \cos 2\varphi_{\mathbf{p}} \langle b_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}} \rangle + \frac{1}{2} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}} \right] = n. \end{aligned} \quad (14)$$

Средние значения $\langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}sK_{\tau}} \rangle$ и $\langle b_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}} \rangle$ равны нулю: все уровни одностичных ферми-возбуждений $|\mathbf{p}sK_{\tau}\rangle$ (электроны) и $|\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}\rangle$ (дырки) лежат выше μ_e и μ_h и для «новых» квазичастиц состояния не заняты [9]. Второй и третий члены в (14) также можно положить равными нулю, поскольку мы можем воспользоваться произволом в выборе функции $\varphi_{\mathbf{p}}$ и ввести для нее условие подобно работе [9]

$$\begin{aligned} & \langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}sK_{-\tau}} \rangle = \langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^{\dagger} \rangle = \\ & = \langle b_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}} a_{\mathbf{p}sK_{\tau}} \rangle = \langle a_{\mathbf{p}sK_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} \rangle = \\ & = \langle b_{-\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}} a_{\mathbf{p}sK_{\tau}} \rangle = 0. \end{aligned} \quad (15)$$

Таким образом, приходим к равенству

$$2 \sum_{\mathbf{p}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}} = n. \quad (16)$$

При выполнении (15) средние $\langle \hat{\mathcal{H}}_0 \rangle$ и $\langle \hat{\mathcal{H}}_i \rangle$ равны нулю. Это означает, что в самосогласованном приближении энергия системы определяется минимизацией числового функционала (12).

Чтобы условие (16) было учтено автоматически, перейдем от суммирования по $\mathbf{p}$ к интегрированию по $q = p/\tilde{p}$ по аналогии с 3D-случаем [24]

$$\tilde{p} = \frac{1}{p_0} \sqrt{\frac{2\pi n}{\nu_e}}, \quad (17)$$

где

$$p_0 = \sqrt{\frac{2}{\nu_e} \int_0^{\infty} \frac{q dq}{1+z_q^2}}, \quad z_q = \text{ctg } \varphi_q.$$

Энергия E_0 , приходящаяся на одну электрон-дырочную пару, находится путем минимизации функционала

$$\begin{aligned} E_0 \{z_q\} = & \frac{4}{\nu_e r_s^2 p_0^4} \int_0^{\infty} \frac{q^3 dq}{1+z_q^2} - \\ & - \frac{8\sqrt{2}}{\pi \nu_e r_s p_0^3} \int_0^{\infty} \frac{q^2 dq}{1+z_q^2} \int_0^1 \frac{1+z_q z_{q\xi}}{1+z_{q\xi}^2} \times \\ & \times \left[K(\xi) - \frac{1}{1+\xi} \tilde{K} \left(\frac{2\sqrt{\xi}}{1+\xi}; \tilde{r}_0 q(1+\xi) \right) \right] \xi d\xi, \end{aligned} \quad (18)$$

где введено среднее расстояние между электронами

$$r_s = \sqrt{\frac{\nu_e}{\pi n}},$$

$K(k)$ — полный эллиптический интеграл первого рода, введена функция

$$\tilde{K}(k; \rho) = \int_0^{\pi/2} \frac{\rho dx}{\rho \sqrt{1 - k^2 \sin^2 x} + 1},$$

которая в пределе $\rho \rightarrow \infty$ переходит в $K(k)$, и введено обозначение $\tilde{r}_0 = r_0 \tilde{p}$.

В качестве пробных функций выбирались функции вида

$$z_q = A(1+q^2)^{\alpha} + B \quad (19)$$

с вариационными параметрами A и B , $\alpha \approx 2$ (обычно $\alpha = 1.94 - 1.97$).

Расчет корреляционных поправок, связанных с многократным рождением и уничтожением электрон-дырочных пар, проводился по методу Нозьера–Пайнса [8, 33]. Ранее этим методом нами была рассчитана корреляционная энергия для металлической ЭДЖ в гетероструктурах на основе основе монослоев ДПМ [12, 13]. Существенным отличием нынешних расчетов является использование потенциала (3) также при вычислении корреляционного вклада. Ввиду громоздкости формул и отсутствия принципиально новых результатов мы не приводим здесь соответствующие выражения. Отметим к тому же, что этот вклад в области малых n оказывается малым по сравнению с обменным вкладом (по модулю). Типичная зависимость E_0 (после минимизации функционала (12)) от n представлена на рис. 2 а. Видно, что в случае

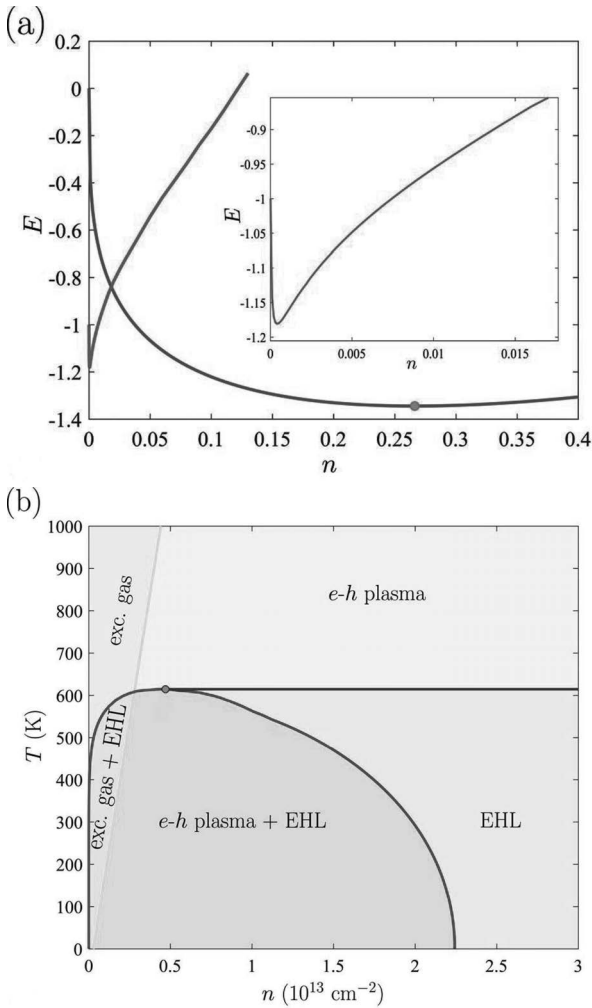


Рис. 2. (В цвете онлайн) *a* — Зависимость энергии диэлектрической ЭДЖ (красная кривая) и металлической ЭДЖ (светло-синяя кривая) от плотности носителей заряда n в монослое MoS_2 на подложке SiO_2 в случае равного заселения долин. Желтой точкой отмечен минимум энергии металлической ЭДЖ (ее энергия связи со знаком минус). На вставке показан увеличенный участок хода кривой для диэлектрической ЭДЖ. *b* — Фазовая диаграмма металлической ЭДЖ в той же гетероструктуре. Красная кривая — кривая сосуществования газ–жидкость, в вершине которой находится критическая точка (отмечена зеленым цветом). Желтая кривая соответствует температурной зависимости плотности перехода металл–диэлектрик, расчетные данные взяты из работы [13]. Обозначения: exc. gas — экситонный газ; EHL — ЭДЖ; *e-h plasma* — электрон-дырочная плазма

равного заселения долин энергетически выгодной оказывается металлическая ЭДЖ. На рис. 2 *b* приведена фазовая диаграмма металлической ЭДЖ, расчет которой был проведен в работе [13].

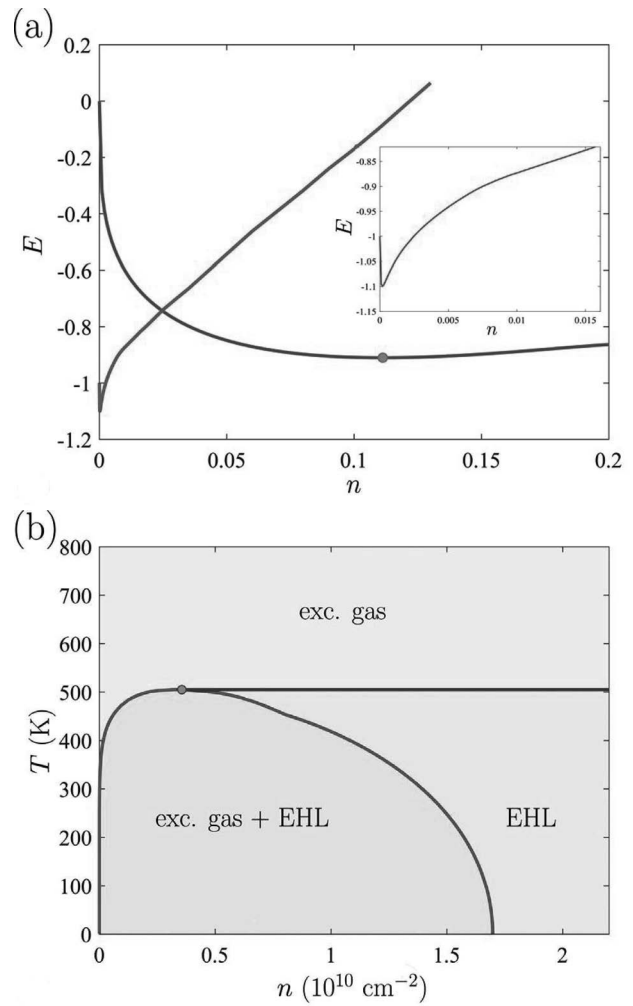


Рис. 3. (В цвете онлайн) *a* — Зависимость энергии диэлектрической ЭДЖ (красная кривая) и металлической ЭДЖ (светло-синяя кривая) от плотности носителей заряда n в монослое MoS_2 на подложке SiO_2 в случае заселения одной долины. Желтой точкой отмечен минимум энергии металлической ЭДЖ (ее энергия связи со знаком минус). На вставке показан увеличенный участок хода кривой для диэлектрической ЭДЖ в той же гетероструктуре. Кривая плотности перехода металл–диэлектрик располагается значительно правее ($\sim 10^{11} - 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) и имеет значение только для области выше синей прямой, когда $T > T_c$

4. НЕРАВНОЕ ЗАСЕЛЕНИЕ ДОЛИН

В унитарном операторе (8) мы должны явно учесть различие между долинами при точке K_+ (она заселена электрон-дырочными парами с плотностью n_+) и при точке K_- (плотность пар n_-). Это означает, что в выражении, стоящем в экспоненте (8), нам следует выделить разные функции

для когерентного спаривания электронов и дырок, когда они оба находятся в долине при точке K_+ или в долине при точке K_- , либо одна частица находится в одной долине, а другая частица — в другой долине. Например, члену $\gamma_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_+}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger$, который описывает процесс рождения электрон-дырочной пары в долине при точке K_+ с синглетным спариванием, следует сопоставить член $\gamma_{\mathbf{p}}^{(+)} a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_+}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger$, а члену $\gamma_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_-}^\dagger$ (рождение пары в долине при точке K_-) — член $\gamma_{\mathbf{p}}^{(-)} a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_-}^\dagger$; в случае междолинного спаривания — член $\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger b_{-\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger$ или $\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger$. Аналогично для триплетного спаривания:

$$\begin{aligned}\delta_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger &\rightarrow \delta_{\mathbf{p}}^{(+)} a_{\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\frac{1}{2}K_+}^\dagger, \\ \delta_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger b_{-\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger &\rightarrow \delta_{\mathbf{p}}^{(-)} a_{\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger b_{-\mathbf{p}-\frac{1}{2}K_-}^\dagger, \\ \delta_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K_\mp}^\dagger b_{-\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K_\pm}^\dagger &\rightarrow \tilde{\delta}_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K_\mp}^\dagger b_{-\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K_\pm}^\dagger.\end{aligned}$$

Для процессов уничтожения пар замены производятся таким же образом.

В соответствии с этими заменами матрица $\hat{F}_{\mathbf{p}}$ в (8) становится зависящей от долинного индекса:

$$\begin{aligned}\hat{F}_{\mathbf{p}\tau} &= \begin{pmatrix} O & \hat{\Phi}_{\mathbf{p}\tau} \\ \hat{\Phi}_{\mathbf{p}\tau}^\dagger & O \end{pmatrix}, \\ \hat{\Phi}_{\mathbf{p}+} &= -i \begin{pmatrix} \delta_{\mathbf{p}}^{(+)} & \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}} \\ \gamma_{\mathbf{p}}^{(+)} & \tilde{\delta}_{\mathbf{p}} \end{pmatrix}, \\ \hat{\Phi}_{\mathbf{p}-} &= -i \begin{pmatrix} \tilde{\delta}_{\mathbf{p}} & \gamma_{\mathbf{p}}^{(-)} \\ \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}} & \delta_{\mathbf{p}}^{(-)} \end{pmatrix}.\end{aligned}$$

Рассмотрим синглетное спаривание. «Новые» операторы выражаются через «старые» следующим образом:

$$\begin{pmatrix} \alpha_{\mathbf{p}sK_+} \\ \alpha_{\mathbf{p}sK_-} \\ \beta_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger \end{pmatrix} = M_{\text{sgn}(s)} \begin{pmatrix} a_{\mathbf{p}sK_+} \\ a_{\mathbf{p}sK_-} \\ b_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger \end{pmatrix}, \quad (20)$$

где матрица поворота $M_{\text{sgn}(s)}$ зависит от двух углов (она приведена в Приложении Б). Угол $\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}$ определяет положение оси вращения в плоскости xy (она лежит под углом $-\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}$ к оси x , причем $0 < \phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} < \pi/2$), а угол $\varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}$ является углом поворота вокруг нее. Эти величины выражаются че-

рез введенные нами функции следующим образом:

$$\begin{aligned}\varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} &= \sqrt{\frac{\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}}^2 + \gamma_{\mathbf{p}}^{(\mp)^2}}{2}}, \\ \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(+)} &= \frac{\gamma_{\mathbf{p}}^{(-)}}{\sqrt{\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}}^2 + \gamma_{\mathbf{p}}^{(-)^2}}, \\ \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(-)} &= \frac{\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}}}{\sqrt{\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}}^2 + \gamma_{\mathbf{p}}^{(+)^2}}.\end{aligned} \quad (21)$$

Для триплетного спаривания, когда вместо $\beta_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger$ и $b_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger$ в (20) стоят соответственно $\beta_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^\dagger$ и $b_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^\dagger$, функции $\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}$ и $\varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}$ выберем так, чтобы матрица $M_{\text{sgn}(s)}$ осталась той же:

$$\begin{aligned}\varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} &= \sqrt{\frac{\tilde{\delta}_{\mathbf{p}}^2 + \delta_{\mathbf{p}}^{(\pm)^2}}{2}}, \\ \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(+)} &= \frac{\tilde{\delta}_{\mathbf{p}}}{\sqrt{\tilde{\delta}_{\mathbf{p}}^2 + \delta_{\mathbf{p}}^{(+)^2}}, \\ \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(-)} &= \frac{\delta_{\mathbf{p}}^{(-)}}{\sqrt{\tilde{\delta}_{\mathbf{p}}^2 + \delta_{\mathbf{p}}^{(-)^2}}.\end{aligned} \quad (22)$$

Соотношения (21) и (22) раскрывают взаимную зависимость углов $\varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}$ и $\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}$ соответственно для синглетного и триплетного типа спаривания.

Выражения (10) обобщаются на случай неравного заселения долин следующим образом:

$$\begin{aligned}\alpha_{\mathbf{p}sK_\tau} &= \frac{1}{2} \left(1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} + \right. \\ &\quad \left. + \left(1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \right) \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \right) a_{\mathbf{p}sK_\tau} + \\ &\quad + \frac{1}{2} \sin 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \left(\cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - 1 \right) a_{\mathbf{p}sK_{-\tau}} + \\ &\quad + \sqrt{\frac{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}}{2}} \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \times \\ &\quad \times \left(\delta_{\tilde{S}0} b_{-\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger + \delta_{\tilde{S}1} b_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}}^\dagger \right), \\ \beta_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}} &= \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} b_{\mathbf{p}sK_{\text{sgn}(s)}} - \\ &\quad - \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sum_{\tau} \sqrt{\frac{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}}{2}} \times \\ &\quad \times \left(\delta_{\tilde{S}0} a_{-\mathbf{p}-sK_\tau}^\dagger + \delta_{\tilde{S}1} a_{\mathbf{p}sK_\tau}^\dagger \right).\end{aligned} \quad (23)$$

Если положить $\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \equiv \pi/4$, то мы возвращаемся к формулам (10).

Отметим особенность «новых» квазичастиц, следующую из формул (20)–(23). Для разных проекций

спина s спаривание электрона и дырки (как синглетное, так и триплетное) происходит по-разному — они описываются разными поворотами. Это является отражением того факта, что ансамбль «старых» квазичастиц исходно был частично спин-поляризованным (число дырок со спином вверх не равно числу дырок со спином вниз при неравном заселении долин).

Преобразованный гамильтониан $\hat{\mathcal{H}} = S\hat{H}S^\dagger$ имеет вид

$$\hat{\mathcal{H}} = \tilde{U} \left\{ \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)}, \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \right\} + \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{H}}_i - \mu n. \quad (24)$$

Первый член в (24) является обобщением числового функционала (12)

$$\begin{aligned} \tilde{U} \left\{ \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)}, \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \right\} = & \sum_{\mathbf{p}s} \varepsilon_{\mathbf{p}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \\ & - \sum_{\mathbf{p}\mathbf{p}'s} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \left[\frac{1}{2} \left(1 + \cos^2 \left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right) \right) \times \right. \\ & \times \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} + \\ & \left. + \cos \left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right) \times \right. \\ & \left. \times \cos \varphi_{\mathbf{p}} \sin \varphi_{\mathbf{p}} \cos \varphi_{\mathbf{p}'} \sin \varphi_{\mathbf{p}'} \right]. \quad (25) \end{aligned}$$

Операторы $\hat{\mathcal{H}}_0$ и $\hat{\mathcal{H}}_i$ приведены в Приложении В.

При выполнении равенств (15) условие (16) в случае неравного заселения долин принимает вид

$$\sum_{\mathbf{p}s} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} = n. \quad (26)$$

Чтобы учесть соотношение между плотностями носителей заряда n_+ и n_- , принадлежащими долинам при точках K_+ и K_- , соответственно, необходимо переписать (26) более детально [согласно примечанию 1)]

$$\sum_{\mathbf{p}s} \langle \alpha_{\mathbf{p}sK_\pm}^\dagger \alpha_{\mathbf{p}sK_\pm} \rangle = \sum_{\mathbf{p}} \langle \beta_{\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K_\pm}^\dagger \beta_{\mathbf{p}\pm\frac{1}{2}K_\pm} \rangle = n_\pm. \quad (27)$$

После подстановки (23) в (27) получаем равенства

$$\begin{aligned} \sum_{\mathbf{p}s} \sin^2 \phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} &= n_+, \\ \sum_{\mathbf{p}s} \cos^2 \phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} &= n_-. \end{aligned} \quad (28)$$

Перейдем от суммирования по $\mathbf{p}$ к интегрированию по $q = p/\tilde{p}$. Величина $\tilde{p}$ определяется по соотношению (17) с p_0 , теперь равным

$$p_0 = \frac{1}{\sqrt{\nu_e}} \sqrt{\int_0^\infty \frac{qdq}{1+z_q^2} + \int_0^\infty \frac{qdq}{1+z_q^{-2}}}$$

с функциями $z_{q\pm} = \text{ctg} \varphi_q^{(\pm)}$.

Энергия электрон-дырочной пары определяется минимизацией функционала

$$\begin{aligned} E_0 \left\{ z_{q+}, z_{q-}; \phi_q^{(+)}, \phi_q^{(-)} \right\} = & \frac{2}{\nu_e r_s^2 p_0^4} \sum_s \int_0^\infty \frac{q^3 dq}{1+z_{q\text{sgn}(s)}^2} - \\ & - \frac{2\sqrt{2}}{\pi \nu_e r_s p_0^3} \sum_s \int_0^\infty \frac{q^2 dq}{1+z_{q\text{sgn}(s)}^2} \int_0^1 \frac{1}{1+z_{q\xi\text{sgn}(s)}^2} \times \\ & \times \left(1 + \cos^2 \left(\phi_q^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{q\xi}^{(\text{sgn}(s))} \right) + \right. \\ & \left. + 2 \cos \left(\phi_q^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{q\xi}^{(\text{sgn}(s))} \right) z_{q\text{sgn}(s)} z_{q\xi\text{sgn}(s)} \right) \times \\ & \times \left[K(\xi) - \frac{1}{1+\xi} \tilde{K} \left(\frac{2\sqrt{\xi}}{1+\xi}; \tilde{r}_0 q(1+\xi) \right) \right] \xi d\xi. \end{aligned} \quad (29)$$

Пробные функции $z_{q\pm}$ выбираются аналогично (19) соответственно с вариационными параметрами $A_\pm$ и $B_\pm$. Функции $\phi_q^{(\pm)}$ выбираются согласно соотношениям (21) или (22) [с точностью до переобозначений оба соотношения приводят к одинаковому результату]

$$\phi_q^{(\pm)} = \arccos \left(\frac{\arccos \left[A^{(\pm)}(1+q^2)^\alpha + B^{(\pm)} \right]}{\sqrt{2} \arccos \left[A_\pm(1+q^2)^\alpha + B_\pm \right]} \right). \quad (30)$$

При этом использовано предположение о подобии функций $\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}}^{(\pm)}$ и $\gamma_{\mathbf{p}}^{(\pm)}$ ($\tilde{\delta}_{\mathbf{p}}$ и $\delta_{\mathbf{p}}^{(\pm)}$).

Значения параметров $A^{(\pm)}$ и $B^{(\pm)}$ ограничены по отношению к значениям параметров $A_\pm$ и $B_\pm$ условием непревышения дроби в (30) единицы. Также они ограничены условиями (28).

Корреляционные поправки считаются таким же способом, что и при равном заселении долин. Ввиду их малости мы считаем такое приближение допустимым.

5. ПЕРЕХОД МЕЖДУ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ И ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ЭДЖ

Как показывают численные расчеты (см. рис. 2), при равном заселении долин металлическая ЭДЖ в монослойных гетероструктурах на основе ДПМ всегда оказывается более энергетически выгодной, чем диэлектрическая ЭДЖ, что согласуется с нашими предыдущими результатами [12, 13]. Однако из работы [13] также можно увидеть, что имеется существенная зависимость энергии связи металлической ЭДЖ от числа долин: для однодолинного полупроводника (при условии спинового вырождения и

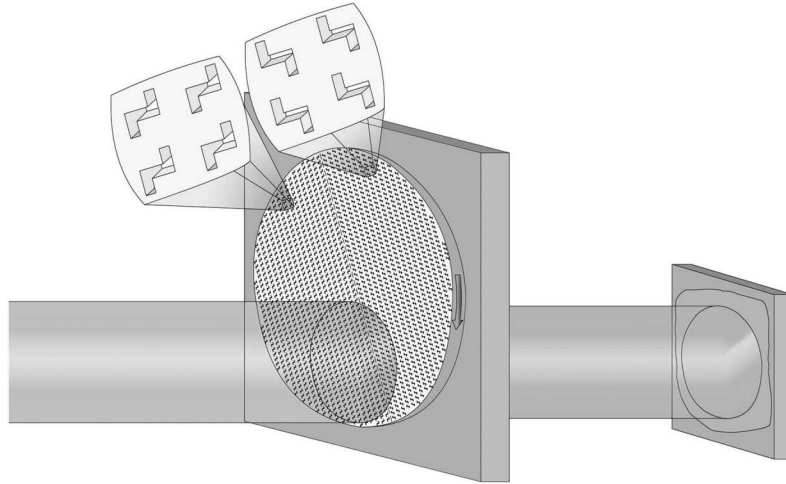


Рис. 4. (В цвете онлайн) Вращающийся диск с перфорированной алмазной мембраной толщиной в несколько микрон, позади которого расположен столик с облучаемым образцом (выделен цветом морской волны). Отверстия в мембране имеют ось вращения C_2 . Одна половина диска представляет собой поляризатор для правополяризованного света, а вторая половина — поляризатор для левополяризованного света. Массив отверстий одного поляризатора переходит в таковой другого поляризатора операцией зеркального отражения относительно плоскости, проходящей через разделяющий их диаметр (показан штрихами). Теоретическое исследование оптического отклика неподвижной свободно висящей алмазной мембраны с двумерным периодическим массивом отверстий с осью вращения C_2 для инфракрасных приложений было проведено в работе [36]

электронов, и дырок) она превосходит энергию связи экситона лишь на 9%. Это наводит на мысль, что дальнейшее уменьшение кратности вырождения за счет снятия спинового вырождения для дырок приведет к еще меньшему значению энергии связи металлической ЭДЖ.

Введем степень циркулярной поляризации света

$$P_e = \frac{|I_+ - I_-|}{I_+ + I_-}, \quad (31)$$

где I_+ и I_- — интенсивности право-поляризованной и лево-поляризованной компонент света, соответственно. Значение $P_e = 0$ отвечает случаю линейной поляризации или неполяризованному свету, а $P_e = 1$ — полностью циркулярно-поляризованному свету. В определении (31) поставлен модуль, поскольку наша задача инвариантна относительно двойной замены $I_+ \rightleftharpoons I_-$ (важна пропорция заселенностей долин).

В численных расчетах удобно оперировать эффективным числом долин для электронов

$$\nu_e^* = 1 + \min \left\{ \frac{n_-}{n_+}, \frac{n_+}{n_-} \right\}. \quad (32)$$

При преобладании оптических переходов в долине точки K_+ к ним добавляется относительно меньшая доля переходов в долине точки K_- : первые дают 1 в ν_e^* , а вторые — отношение заселенностей n_-/n_+

($n_+ > n_-$). Наоборот, если переходы преобладают в долине точки K_- , они дают 1, а переходы в долине точки K_+ — отношение заселенностей n_+/n_- ($n_- > n_+$).

Воспользовавшись зависимостью $n_{\pm} \propto I_{\pm}$, перепишем определение (31) через заселенности

$$P_e = \frac{|n_+ - n_-|}{n_+ + n_-}. \quad (33)$$

Тогда эффективное число долин для электронов равно

$$\nu_e^* = \frac{2}{1 + P_e}. \quad (34)$$

Эффективное число долин для дырок всегда вдвое меньше, чем для электронов, из-за снятого вырождения по спину:

$$\nu_h^* = \frac{1}{1 + P_e}. \quad (35)$$

Численные расчеты показали, что для ряда монослоев ДПМ и гетероструктур на их основе при степени циркулярной поляризации возбуждающего света P_e , стремящейся к 1, металлическая ЭДЖ перестает существовать (ее энергия связи становится меньше энергии связи экситона). При этом энергия связи диэлектрической ЭДЖ уменьшается примерно на треть, но она остается энергетически выгодной по сравнению с экситоном (см. рис. 3).

Отсюда следует, что при некоторой разнице в заполнении долин, когда P_e лежит между 0 и 1, энергии связи обоих типов ЭДЖ сравниваются. Это означает, что имеется пороговое значение степени циркулярной поляризации возбуждающего излучения P_{e0} , ниже которого существует металлическая ЭДЖ, а выше — диэлектрическая ЭДЖ. Например, наши расчеты показали, что для MoS_2 $P_{e0} = 0.45$.

Для экспериментального наблюдения фазового перехода между двумя типами ЭДЖ можно использовать несколько схем. Первая схема с двумя источниками: один правополяризованного излучения, другой — левополяризованного. Изменение интенсивности обоих источников осуществляется синхронно так, чтобы суммарная интенсивность оставалась постоянной. Второй вариант — использовать один источник линейно-поляризованного света. Луч от него разделить на два луча, один из которых усилить с модуляцией интенсивности во времени, а затем сложить его со вторым (неусиленным). Таким путем можно получить излучение с модулированной во времени P_e . Также можно использовать электрооптический преобразователь — ячейку Поггеля. Тогда модуляция P_e задается переменным электрическим полем.

Для относительно малых частот модуляции (десятки и сотни Герц) помимо ячейки Поггеля можно также использовать вращающийся поляризатор в форме диска, одна половина которого преобразует лазерное излучение в правополяризованный свет, а вторая половина — в левополяризованный. Пятно падающего излучения смещено от оси диска (см. рис. 4). Когда луч полностью падает на одну из двух половин, прошедший свет имеет P_e , близкую к 1. Изменение степени циркулярной поляризации прошедшего света происходит на интервале времени, когда граница между двумя поляризаторами перемещается по пятну падающего на диск излучения (при делении пятна пополам можно считать, что прошедший свет не является циркулярно поляризованным).

Превышение P_e порогового значения P_{e0} будет приводить к распаду капель металлической ЭДЖ с образованием более «рыхлой» фазы — диэлектрической ЭДЖ. Наоборот, при уменьшении P_e , когда P_e станет меньше P_{e0} , будут вновь образовываться капли металлической ЭДЖ.

При переходе между двумя типами ЭДЖ качественно меняется спектр люминесценции. Ширина линии ЭДЖ порядка энергии Ферми E_F — при низких температурах она равна E_F с хорошей точно-

стью, в то время как при комнатной температуре может превосходить ее примерно вдвое [35]. Металлической ЭДЖ соответствует широкая линия, а диэлектрической — достаточно узкая (в меру малости равновесной плотности). Таким образом, переход через пороговое значение степени циркулярной поляризации возбуждающего света P_{e0} должен сопровождаться резким изменением ширины линии, отстоящей от экситонной линии в красную сторону: при $P_e < P_{e0}$ линия широкая, а при $P_e > P_{e0}$ линия узкая.

При анализе формы линии фотолуминесценции ЭДЖ обычно используется стандартное выражение для интенсивности [37–40]

$$I(\omega) = A \int \int D_e(E_e) D_h(E_h) f_e(E_e) f_h(E_h) \times \delta(E_e + E_h + E_{gL} - \Omega - \omega) dE_e dE_h, \quad (36)$$

где D_e и D_h — плотности состояний в зоне проводимости и валентной зоне, соответственно, f_e и f_h — фермиевские функции для электронов и дырок, E_e и E_h — энергии электронов и дырок, отсчитанные от краев соответствующих зон в жидкости, E_{gL} — величина перенормированной зонной щели в области образца, занимаемой жидкостью, $E_{gL} = E_g^{(0)} + E_0 - E_F$ ($E_g^{(0)}$ — значение перенормированной зонной щели, E_0 — энергия ЭДЖ на одну электрон-дырочную пару, E_F — энергия Ферми электронов и дырок), Ω — частота фонона, испускаемого при электронном переходе. Константа A имеет размерность, соответствующую размерности интенсивности, измеряемой на эксперименте. В случае прямозонных полупроводников, коими являются монослои ДПМ, наиболее вероятными являются переходы без участия фононов, поэтому можно положить $\Omega = 0$.

В идеализированной картине параболических зон вблизи экстремумов для 2D-случая значительно упрощаются расчеты по формуле (36). Интенсивность $I(\omega)$ находится аналитически [35]

$$I(\omega) = \frac{A}{\pi^2} \nu_e \nu_h m_e m_h \times \frac{\left(e^{\frac{2\pi n_L}{(1+\sigma)\nu_e T}} - 1 \right) \left(e^{\frac{2\pi \sigma n_L}{(1+\sigma)\nu_h T}} - 1 \right) \theta(\omega - E_{gL})}{e^{(\omega - E_{gL})/T} - \left(e^{\frac{2\pi n_L}{(1+\sigma)\nu_e T}} - 1 \right) \left(e^{\frac{2\pi \sigma n_L}{(1+\sigma)\nu_h T}} - 1 \right)} \times \left\{ T \ln \left[\left(e^{(\omega - E_{gL})/T} + e^{\frac{2\pi n_L}{(1+\sigma)\nu_e T}} - 1 \right) \times \left(e^{(\omega - E_{gL})/T} + e^{\frac{2\pi \sigma n_L}{(1+\sigma)\nu_h T}} - 1 \right) \right] - \frac{\nu_h + \sigma \nu_e}{1 + \sigma} \frac{2\pi n_L}{\nu_e \nu_h} - \omega + E_{gL} \right\}. \quad (37)$$

Результат расчетов профиля линий в спектре фотолюминесценции по формуле (37) для монослоя MoS_2 приведены на рис. 5. Экситонная линия не рассчитывалась (ее положение показано желтыми штриховыми линиями по энергии связи экситона).

При характерных для образования металлической ЭДЖ интенсивностях возбуждающего света диэлектрическая ЭДЖ скорее всего будет заполнять весь образец, а не формироваться в виде отдельных капель, между которыми находится экситонный газ. В таком случае свободные экситоны отсутствуют, как и экситонная линия в спектре фотолюминесценции. Однако имеется линия рекомбинации диэлектрической ЭДЖ, которая может быть очень похожа по своему профилю интенсивности на экситонную линию, но она смещена в красную сторону на величину энергии связи диэлектрической ЭДЖ по отношению к свободному экситону.

При интенсивностях фотовозбуждения, когда плотность рождаемых электрон-дырочных пар n заметно превосходит равновесную плотность диэлектрической ЭДЖ $n_0^{(d)}$, «избыточные» электрон-дырочные пары конденсируются в капли металлической ЭДЖ, понижая плотность диэлектрической ЭДЖ до $n_0^{(d)}$. Возникает динамическое равновесие между каплями металлической ЭДЖ и диэлектрической ЭДЖ, занимающей всю остальную площадь образца, — скорость конденсации электрон-дырочных пар в капли металлической ЭДЖ равна скорости их испарения.

Такое сосуществование двух типов ЭДЖ приводит к существованию обеих линий в спектре фотолюминесценции (см. рис. 5 *с*). Расчеты показали, что линии хорошо спектроскопически различимы вплоть до температур, сравнимых с комнатной. Линия рекомбинации металлической ЭДЖ смещена в красную сторону по отношению к линии рекомбинации диэлектрической ЭДЖ и между ними всегда имеется провал интенсивности вследствие того, что пороговое значение частоты с красной стороны E_{gL} для обоих типов ЭДЖ с хорошей точностью равно энергии Ферми металлической ЭДЖ (энергия Ферми диэлектрической ЭДЖ мала по сравнению с ней, а энергии жидкости E_0 близки).

Наблюдение отдельно стоящей линии диэлектрической ЭДЖ может оказаться весьма проблематичным из-за малого значения $n_0^{(d)}$ — электрон-дырочные пары не успевают сконденсироваться в эту фазу. Существует поэтому естественный порог по интенсивности, начиная с которого появляется соответствующая линия в спектре фотолюминесценции. При этом плотность n может сильно превосхо-

дить $n_0^{(d)}$, что и приводит к указанному выше сосуществованию двух типов ЭДЖ и характерному для него профилю линии.

Экспериментальные исследования ЭДЖ в монослойных гетероструктурах на основе ДПМ [42–45], по-видимому, проведены с низкой степенью циркулярной поляризации или с линейной поляризацией возбуждающего света, когда энергетически выгодной оказывается металлическая ЭДЖ. Эксперименты убедительно продемонстрировали металлический характер наблюдавшейся фазы. Мы предсказываем, что, если использовать для возбуждения образца свет с достаточно высокой степенью циркулярной поляризации, возникнет качественно новый профиль соответствующей линии, описанный нами выше.

Наконец отметим, что фазовые диаграммы обоих типов ЭДЖ становятся зависящими от значения степени циркулярной поляризации P_e , т.е. они представляют собой поверхности в пространстве (n, P_e, T) . Как показали наши расчеты для MoS_2 , равновесная плотность диэлектрической ЭДЖ изменяется почти в 1.5 раза при изменении P_e от P_{e0} до 1. Однако на эксперименте такие изменения практически не заметны. Энергия связи изменяется с 367 мэВ до 353 мэВ, а критическая температура — с 525 К до 504 К (второе значение представлено на рис. 3 *б*). Последнее хорошо измеряется на эксперименте, однако относительное изменение все же весьма мало. Такая картина типична для монологов ДПМ. По нашему мнению, в свете этого построение фазовых диаграмм в виде поверхностей выглядит несколько избыточным. В особенности это становится ясным, если принять во внимание, что точность расчетов все же не позволяет различать столь малые относительные изменения, какие получаются для энергии связи и критической температуры.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе мы показали, что диэлектрическая ЭДЖ оказывается возможной в монослоях ДПМ и гетероструктурах на их основе благодаря когерентному спариванию электронов и дырок. Для построения правильного нулевого приближения использовано адаптированное соответствующим образом каноническое преобразование. Численными расчетами показано, что в случае равного заселения долин металлическая ЭДЖ более энергетически выгодна, чем диэлектрическая ЭДЖ. Однако в случае неравного заселения долин, когда

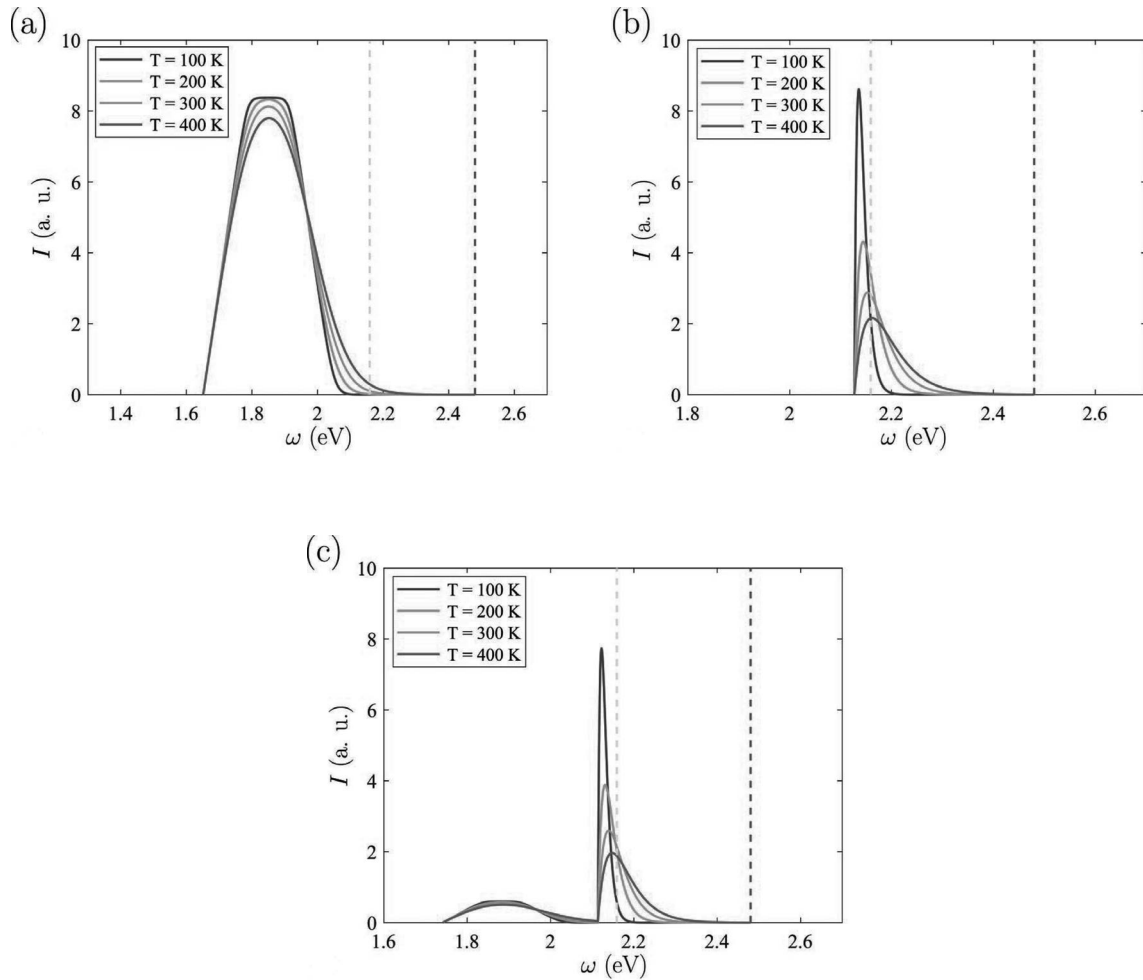


Рис. 5. (В цвете онлайн) Расчет линий рекомбинации ЭДЖ в спектре фотолюминесценции монослоя MoS_2 для четырех значений температуры. Желтыми и фиолетовыми пунктирными линиями отмечены соответственно положения линии экситона и края непрерывного спектра. Энергия связи экситона вычислена вариационно и равна 321 мэВ. Эффективные массы носителей заряда ($m_e^* = 0.55m_0$, $m_h^* = 0.56m_0$, m_0 — масса свободного электрона) и значение зонной щели ($E_g^{(0)} = 2.48$ эВ) взяты из работы [41]. *a* — Профиль линии рекомбинации металлической ЭДЖ для $P_e = 0$. *b* — Профиль линии рекомбинации диэлектрической ЭДЖ для $P_e = 1$. *c* — Результирующий профиль в случае сосуществования обоих типов ЭДЖ для $P_e = 0.5$. Доля электрон-дырочных пар в металлической фазе принята равной 0.2 от общего числа пар (она зависит от интенсивности фотовозбуждения — насколько сильнее накачка по сравнению с оптимальной, когда имеется точное совпадение плотности фотовозбужденных носителей заряда с равновесной плотностью диэлектрической ЭДЖ)

разница между заселенностями долин достаточно велика, более энергетически выгодной становится диэлектрическая ЭДЖ. Это происходит при превышении порогового значения степени циркулярной поляризации возбуждающего света. Нами также вкратце описаны возможные способы экспериментального наблюдения перехода металлическая ЭДЖ–диэлектрическая ЭДЖ.

Благодарности. Автор очень благодарен своему учителю А. П. Силину за вдохновение на эту работу. Автор выражает С. Г. Тиходеву глубокую признательность за плодотворные дискуссии. Работа поддержана Фондом развития теоретической физики и математики «БАЗИС» (грант № 20-1-3-68-1).

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Оператор $\hat{\mathcal{H}}_0$ содержит члены, билинейные по фермиевским операторам (в отличие от работы [9] здесь учтено, что $m_e \neq m_h$, и учтена специфика зонной структуры монослоев ДПМ):

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_0 = & \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{p}\mathbf{s}\tau} \left\{ \left[\cos 2\varphi_{\mathbf{p}} \left(\frac{1}{2} \xi_{\mathbf{p}} - \mathcal{V}_{\mathbf{p}} \right) + \sin 2\varphi_{\mathbf{p}} \tilde{\mathcal{V}}_{\mathbf{p}} \right] \left(a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}} + b_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\text{sgn}(s)}} \right) - \right. \\ & - \left[\xi_{\mathbf{p}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}} + \cos 2\varphi_{\mathbf{p}} \mathcal{V}_{\mathbf{p}} - \sin 2\varphi_{\mathbf{p}} \tilde{\mathcal{V}}_{\mathbf{p}} \right] a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{-\tau}} + \frac{1}{2} \delta \xi_{\mathbf{p}} \left(a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}} - b_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\text{sgn}(s)}} \right) + \\ & \left. + \xi_{\mathbf{p}}^e a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}} \right\} + \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{\mathbf{p}\mathbf{s}\tau} \left[\sin 2\varphi_{\mathbf{p}} \left(\frac{1}{2} \xi_{\mathbf{p}} - \mathcal{V}_{\mathbf{p}} \right) - \cos 2\varphi_{\mathbf{p}} \tilde{\mathcal{V}}_{\mathbf{p}} \right] \left(a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}-\mathbf{s}K_{-\text{sgn}(s)}}^{\dagger} + b_{-\mathbf{p}-\mathbf{s}K_{-\text{sgn}(s)}} a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}} \right), \end{aligned}$$

где введены обозначения $\xi_{\mathbf{p}} = \varepsilon_{\mathbf{p}} - \mu$, $\xi_{\mathbf{p}}^{e,h} = \varepsilon_{\mathbf{p}}^{e,h} - \mu_{e,h}$ ($\xi_{\mathbf{p}} \equiv \xi_{\mathbf{p}}^e + \xi_{\mathbf{p}}^h$), $\delta \xi_{\mathbf{p}} = \xi_{\mathbf{p}}^e - \xi_{\mathbf{p}}^h$,

$$\mathcal{V}_{\mathbf{p}} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}'} \quad \text{и} \quad \tilde{\mathcal{V}}_{\mathbf{p}} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \cos \varphi_{\mathbf{p}'} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}.$$

Оператор $\hat{\mathcal{H}}_i$ содержит четверные комбинации ферми-операторов:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_i = & \frac{1}{4} \sum_{\substack{\mathbf{p}\mathbf{p}'\mathbf{k} \\ s s' \tau \tau'}} V_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{1}{2} (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} + 1) (\gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} + 1) a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{\tau}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{\tau}} + \right. \\ & + \frac{1}{2} (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} - 1) (\gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} + 1) a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{\tau}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \\ & + \frac{1}{2} (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} + 1) (\gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} - 1) a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{-\tau}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{\tau}} + \\ & + \frac{1}{2} (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} - 1) (\gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} - 1) a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{-\tau}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \\ & + \frac{1}{2} \gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} b_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}'s'K_{\text{sgn}(s')}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{\text{sgn}(s')}} b_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{\text{sgn}(s)}} - \\ & - (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} + 1) \gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}'s'K_{\text{sgn}(s')}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{\text{sgn}(s')}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{\tau}} - \\ & - (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} - 1) \gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}'s'K_{\text{sgn}(s')}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{\text{sgn}(s')}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \\ & + \sqrt{2} (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} + 1) \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} \left[a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{\tau}} + \text{H.c.} \right] + \\ & + \sqrt{2} (\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} - 1) \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} \left[a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \text{H.c.} \right] - \\ & - \sqrt{2} \gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} \left[a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\text{sgn}(s)}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{\text{sgn}(s)}} + \text{H.c.} \right] + \\ & + \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} \left[a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} a_{\mathbf{p}'s'K_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}+\mathbf{k}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^{\dagger} + \right. \\ & \left. + a_{\mathbf{p}\mathbf{s}K_{\tau}}^{\dagger} b_{-\mathbf{p}+\mathbf{k}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^{\dagger} b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^{\dagger} a_{-\mathbf{p}'s'K_{\tau}} + \text{H.c.} \right] \left. \right\}. \end{aligned}$$

Здесь, как и в работе [9], введены функции

$$\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'} = \cos(\varphi_{\mathbf{p}} - \varphi_{\mathbf{p}'}), \quad \text{и} \quad \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'} = \sin(\varphi_{\mathbf{p}'} - \varphi_{\mathbf{p}}).$$

Учитывая, что $\sin \varphi_{\mathbf{p}} \sim \sqrt{n}$ и $\cos \varphi_{\mathbf{p}} \sim 1 - \mathcal{O}(n)$ (согласно условию (16)), находим $\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'} \sim 1 - \mathcal{O}(n)$ и $\tilde{\gamma}_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'} \sim \sqrt{n}$ [9]. Отсюда получаем, что члены, ответственные за «переброс» электрона из одной долины в другую, подавлены как $\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} - 1 \sim n$, а члены с двойным междолинным «перебросом» электрона подавлены как $(\gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}} - 1)(\gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}} - 1) \sim n^2$.

ПРИЛОЖЕНИЕ Б

Матрица поворота в (20) равна

$$M_{\text{sgn}(s)} \equiv M_{\pm} \left(\varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)}, \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \right) = \\ = \begin{pmatrix} \cos^2 \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} + \sin^2 \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} & \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \sin \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} (\cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} - 1) & \sin \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \\ \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \sin \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} (\cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} - 1) & \sin^2 \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} + \sin^2 \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} & \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \\ -\sin \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} & -\cos \phi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} & \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\pm)} \end{pmatrix}.$$

Здесь, как и в основном тексте статьи, $\pm$ совпадает с $\text{sgn}(s)$.

ПРИЛОЖЕНИЕ В

Оператор $\hat{\mathcal{H}}_0$ в выражении (24) есть

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{p} s \tau} \left\{ \left(1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \right) \left(\frac{1}{2} \xi_{\mathbf{p}} - \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(1)} \right) \cos^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \left(\sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \times \right. \right. \\ \times \left. \frac{1}{2} \xi_{\mathbf{p}} - \mathcal{V}_{\mathbf{p}s\tau} \right) \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \left(1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \right) \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(2)} + \tau \sin 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(3)} + \\ + \left(1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \right) \sin 2\varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(4)} - 4\tau \sin 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(5)} + \frac{1}{2} \left(1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \right) \delta \xi_{\mathbf{p}} + \\ + \left(1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \right) \xi^e \left. \right\} a_{\mathbf{p}s K \tau}^\dagger a_{\mathbf{p}s K \tau} + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{p} s \tau} \left\{ -\sin 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \left[\xi_{\mathbf{p}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} + \cos^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(1)} - \right. \right. \\ - \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(2)} - \sin 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(4)} \left. \right] + \sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s-\tau} + \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \left(\cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(3)} - \right. \\ - 4 \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(5)} \left. \right) \left. \right\} a_{\mathbf{p}s K \tau}^\dagger a_{\mathbf{p}s K -\tau} + \sum_{\mathbf{p} s} \left\{ \frac{1}{2} \xi_{\mathbf{p}} - \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(1)} - \cos^2 \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(2)} + \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sin \phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \tilde{\mathcal{V}}_{\mathbf{p}s+} + \right. \right. \\ + \cos \phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \tilde{\mathcal{V}}_{\mathbf{p}s-} \left. \right) \sin 2\varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \frac{1}{2} \delta \xi_{\mathbf{p}} \left. \right\} b_{\mathbf{p}-s K -\text{sgn}(s)}^\dagger b_{\mathbf{p}-s K -\text{sgn}(s)} + \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{\mathbf{p} s \tau} \left[\sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \times \right. \\ \times \left(\frac{1}{2} \xi_{\mathbf{p}} - \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(1)} - \frac{1}{2} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(2)} \right) \sin 2\varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} + \frac{1}{2} \tau \sqrt{1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(3)} - \sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \times \\ \times \cos 2\varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(4)} + \tau \sqrt{1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(5)} \left. \right] \left(a_{\mathbf{p}s K \tau}^\dagger b_{-\mathbf{p}-s K -\text{sgn}(s)}^\dagger + b_{-\mathbf{p}-s K -\text{sgn}(s)} a_{\mathbf{p}s K \tau} \right),$$

где введены функции

$$\mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(1)} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \cos^2 \left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right) \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(2)} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \sin^2 \left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right) \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(3)} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \sin 2 \left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right) \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(4)} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \cos \left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right) \cos \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \mathcal{V}_{\mathbf{p}s}^{(5)} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \sin \left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right) \cos \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \mathcal{V}_{\mathbf{p}s\tau} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sin^2 \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \tilde{\mathcal{V}}_{\mathbf{p}s\tau} = \sum_{\mathbf{p}'} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} \sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \cos \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}.$$

Оператор $\hat{\mathcal{H}}_i$ в выражении (24) есть

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_i = \frac{1}{4} \sum_{\substack{\mathbf{p}\mathbf{p}'\mathbf{k} \\ s s' \tau \tau'}} V_{\mathbf{k}} \bigg\{ & \frac{1}{2} \mathcal{F}_{s\tau}^{(+)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \mathcal{F}_{s'\tau'}^{(+)}(\mathbf{p}', \mathbf{p}' + \mathbf{k}) a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K\tau'} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK\tau} + \\ & + \frac{1}{2} \mathcal{F}_{s\tau}^{(+)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \mathcal{F}_{s'\tau'}^{(-)}(\mathbf{p}', \mathbf{p}' + \mathbf{k}) a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{-\tau'}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK\tau} + \\ & + \frac{1}{2} \mathcal{F}_{s\tau}^{(-)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \mathcal{F}_{s'\tau'}^{(+)}(\mathbf{p}', \mathbf{p}' + \mathbf{k}) a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K\tau'} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \\ & + \frac{1}{2} \mathcal{F}_{s\tau}^{(-)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \mathcal{F}_{s'\tau'}^{(-)}(\mathbf{p}', \mathbf{p}' + \mathbf{k}) a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger a_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}s'K_{-\tau'}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \\ & + \frac{1}{2} \gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}, s} \gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}, s'} b_{\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger b_{\mathbf{p}'-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^\dagger b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}} b_{\mathbf{p}-\mathbf{k}-sK_{-\text{sgn}(s)}} - \\ & - \mathcal{F}_{s\tau}^{(+)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}, s'} a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger b_{\mathbf{p}'-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^\dagger b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK\tau} - \\ & - \mathcal{F}_{s\tau}^{(-)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \gamma_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}, s'} a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger b_{\mathbf{p}'-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^\dagger b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}} a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \\ & + \sqrt{2} \mathcal{F}_{s\tau}^{(+)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}, s', \tau'} \left[a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^\dagger a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK\tau} + \text{H.c.} \right] + \\ & + \sqrt{2} \mathcal{F}_{s\tau}^{(-)}(\mathbf{p}, \mathbf{p} - \mathbf{k}) \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}, s', \tau'} \left[a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^\dagger a_{\mathbf{p}-\mathbf{k}sK_{-\tau}} + \text{H.c.} \right] - \\ & - \sqrt{2} \gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}, s} \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}, s', \tau'} \left[a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^\dagger b_{\mathbf{p}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger b_{\mathbf{p}-\mathbf{k}-sK_{-\text{sgn}(s)}} + \text{H.c.} \right] + \\ & + \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}, \mathbf{p}-\mathbf{k}, s, \tau} \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}', \mathbf{p}'+\mathbf{k}, s', \tau'} \left[a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger a_{\mathbf{p}'s'K\tau'}^\dagger b_{-\mathbf{p}'-\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\mathbf{k}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger + \right. \\ & \left. + a_{\mathbf{p}sK\tau}^\dagger b_{-\mathbf{p}+\mathbf{k}-sK_{-\text{sgn}(s)}}^\dagger b_{\mathbf{p}'+\mathbf{k}-s'K_{-\text{sgn}(s')}} a_{-\mathbf{p}'s'K\tau'} + \text{H.c.} \right] \bigg\}, \end{aligned}$$

где введены функции

$$\begin{aligned} \mathcal{F}_{s\tau}^{(\pm)}(\mathbf{p}, \mathbf{p}') &= \sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sqrt{1 \mp \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}-\mathbf{k}}^{(\text{sgn}(s))}} \gamma'_{\mathbf{p}, \mathbf{p}', s \pm} \\ &\pm \sqrt{1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sqrt{1 \pm \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}} \cos\left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}\right) \pm \\ &\pm \tau \sin\left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}\right) \left[\sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sqrt{1 \pm \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}} \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \mp \right. \\ &\left. \mp \sqrt{1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sqrt{1 \mp \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}-\mathbf{k}}^{(\text{sgn}(s))}} \cos \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} \right], \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \gamma_{\mathbf{p}, \mathbf{p}', s} &= \cos\left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}\right) \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} + \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \cos \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \gamma'_{\mathbf{p}, \mathbf{p}', s} &= \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} + \cos\left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}\right) \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \cos \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}, \mathbf{p}', s, \tau} &= \sqrt{1 - \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}, \mathbf{p}', s} - \tau \sqrt{1 + \tau \cos 2\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))}} \sin\left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}\right) \sin \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}, \\ \tilde{\gamma}_{\mathbf{p}, \mathbf{p}', s} &= \cos\left(\phi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} - \phi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}\right) \cos \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \sin \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))} - \sin \varphi_{\mathbf{p}}^{(\text{sgn}(s))} \cos \varphi_{\mathbf{p}'}^{(\text{sgn}(s))}. \end{aligned}$$

ЛИТЕРАТУРА

1. П. В. Ратников, А. П. Силин, УФН **188**, 1249 (2018).
2. B. Urbaszek and X. Marie, Nature Phys. **11**, 94 (2015).
3. М. В. Дурнев, М. М. Глазов, УФН **188**, 913 (2018).
4. Л. В. Келдыш, *Коллективные свойства экситонов в полупроводниках*, в кн. *Экситоны в полупроводниках*, Наука, Москва (1971), с. 5.
5. P. Vashishta, P. Bhattacharyya, and K. S. Singwi, Nuovo Cim. **23B**, 172 (1974).
6. Л. В. Келдыш, Ю. В. Копаев, ФТТ **6**, 2791 (1964).
7. W. F. Brinkman and T. M. Rice, Phys. Rev. B **7**, 1508 (1973).
8. Л. В. Келдыш, А. П. Силин, КСФ №8, 33 (1975).
9. Л. В. Келдыш, А. Н. Козлов, ЖЭТФ **54**, 978 (1968).
10. Н. С. Рытова, Вестн. Моск. ун-та, сер. 3, Физ. Астрон. №3, 30 (1967).
11. Л. В. Келдыш, Письма в ЖЭТФ **29**, 716 (1979).
12. П. Л. Пех, П. В. Ратников, А. П. Силин, Письма в ЖЭТФ **111**, 80 (2020).
13. П. Л. Пех, П. В. Ратников, А. П. Силин, ЖЭТФ **160**, 572 (2021).
14. C. M. Gilardoni et al., Phys. Rev. B **103**, 115410 (2021).
15. G. Wang, C. Robert, A. Suslu et al., Nature Comm. **6**, 10110 (2015).
16. K. Kośmider, J. W. González, and J. Fernández-Rossier, Phys. Rev. B **88**, 245436 (2013).
17. A. Kormányos, V. Zólyomi, N. D. Drummond, and G. Burkard, Phys. Rev. X **4**, 011034 (2014).
18. А. Н. Лобаев, А. П. Силин, ФТТ **26**, 2910 (1984).
19. Z. Li, T. Wang, Z. Lu et al., Nature Comm. **9**, 3719 (2018).
20. M. Goryca, J. Li, A. V. Stier et al., Nature Comm. **10**, 4172 (2019).
21. K. F. Mak, K. He, C. Lee et al., Nature Mater. **12**, 207 (2013).
22. J. S. Ross, S. Wu, H. Yu et al., Nature Comm. **4**, 1474 (2013).
23. J. Yang, T. Lü, Y. W. Myint et al., ACS Nano **9**, 6603 (2015).
24. А. Н. Лобаев, А. П. Силин, Труды ФИАН **188**, 53 (1988).
25. A. P. Silin and P. V. Ratnikov, Phys. Rev. B **109**, 195157 (2024).
26. С. Г. Тиходеев, УФН **145**, 3 (1985).
27. C. Robert, D. Lagarde, F. Cadiz et al., Phys. Rev. B **93**, 205423 (2016).
28. G. Moody, J. Schaibley, and X. Xu, J. Opt. Soc. Am. B **33**, C39 (2016).
29. F. Ceballos, Q. Cui, M. Z. Bellusa, and H. Zhao, Nanoscale **8**, 11681 (2016).
30. T. Eknapakul, P. D. C. King, M. Asakawa et al., Nano Lett. **14**, 1312 (2014).
31. K. He, N. Kumar, L. Zhao et al., Phys. Rev. Lett. **113**, 026803 (2014).
32. A. F. Rigosi, H. M. Hill, K. T. Rim et al., Phys. Rev. B **94**, 075440 (2016).
33. M. Combescot and P. Nozières, J. Phys. C **5**, 2369 (1972).
34. Е. А. Андрюшин, Л. В. Келдыш, А. П. Силин, ЖЭТФ **73**, 1163 (1977).
35. P. V. Ratnikov, Phys. Lett. A **444**, 128235 (2022).
36. Н. В. Валенко, О. А. Дмитриева, С. Г. Тиходеев, Компьютерная оптика **48** (принята к публикации).
37. Т. Райс, Дж. Хенсел, Т. Филлипс, Г. Томас, *Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках*, Мир, Москва (1980).
38. *Электронно-дырочные капли в полупроводниках*, под ред. К. Д. Джеффрис, Л. В. Келдыша, Наука, Москва (1988).
39. Н. Н. Сибельдин, ЖЭТФ **149**, 678 (2016).
40. Н. Н. Сибельдин, УФН **187**, 1236 (2017).
41. F. A. Rasmussen and K. S. Thygesen, J. Phys. Chem. C **119**, 13169 (2015).
42. Y. Yu, A. W. Bataller, R. Younts et al., ACS Nano **13**, 10351 (2019).
43. T. B. Arp, D. Pleskot, V. Aji, and N. M. Gabor, Nature Photon. **13**, 245 (2019).
44. Y. Yu, G. Li, Y. Xu et al., ACS Nano **17**, 15474 (2023).
45. P. Dey, T. Dixit, V. Mishra et al., Adv. Opt. Mater. **11**, 2202567 (2023).

РАВНОВЕСИЯ И ПРОЦЕССЫ В ДИССОЦИИРОВАННОМ ВОЗДУХЕ

Б. М. Смирнов *

*Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 1 марта 2024 г.,
после переработки 28 июня 2024 г.
Принята к публикации 8 июля 2024 г.

Для атмосферного воздуха как смеси молекулярных газов, находящихся в термодинамическом равновесии, представлен алгоритм вычисления плотности атомов и молекул в случае разделения областей диссоциативного перехода для каждой из компонент. Результат сравнивается с приближением, для которого парциальные давления азота и кислорода не зависят от температуры. Ионизационное равновесие при температурах ниже 7000 К происходит через образование молекулярного иона NO^+ , а при более высоких температурах доминирует образование атомных ионов кислорода и азота. Показано, что при давлении порядка атмосферного с точностью выше 10 % при анализе ионизационного равновесия вплоть до полной ионизации воздуха можно пренебречь электронно-возбужденными состояниями атомов. Для анализа плазмы воздуха в проводящем канале молнии использование результатов, а также экспериментальных данных показывает, что прохождение основного электрического тока на стадии возвратного удара отделено по времени от последующего расширения нагретого канала. Показано, что температура плазмы проводящего канала между соседними вспышками, а также перед прохождением основного электрического тока составляет примерно 4 кК. Эта температура поддерживается небольшими внешними электрическими полями.

DOI: 10.31857/S0044451024110154

1. ВВЕДЕНИЕ

Интерес к свойствам диссоциированного и ионизованного воздуха при атмосферном и близком к нему давлении возникал многократно в последнее столетие в связи с атмосферными процессами, при использовании воздуха в химическом производстве и процессах обработки материалов струей воздуха, истекающей из проточного плазмотрона, при электрическом и лазерном возбуждении воздуха, а также при анализе прохождения космических аппаратов и космических тел через атмосферу. На одно этих явлений — прохождение электрического тока через проводящий канал молнии, мы будем далее ориентироваться.

При возбуждении атмосферного воздуха до его диссоциации и ионизации, частичной или полной, в нем при определенных условиях устанавливается термодинамическое равновесие по отношению к

его компонентам, хотя это равновесие может относиться к ограниченной области пространства (локальное термодинамическое равновесие) и поддерживаться в течение ограниченного времени. Характер этого равновесия может меняться в процессе эволюции возбужденного воздуха в зависимости от внешних условий и процессов, определяющих развитие возбужденного воздуха. Тем не менее при анализе состояния возбужденного воздуха его параметры в данный момент времени можно выразить через температуру и давление.

При этих условиях в первом приближении степень диссоциации и ионизации возбужденного воздуха определяется формулой Саха [1, 2] в соответствии с параметрами молекул, атомов и ионов азота и кислорода. При этом в силу большого статистического веса состояний непрерывного спектра заметная диссоциация газа начинается при температурах, которые, будучи выражены в единицах энергии, оказываются на порядок величины ниже энергий диссоциации молекул воздуха. То же относится к ионизации атомного газа. Исходя из этого полу-

* E-mail: bmsmirnov@gmail.com

чим, что диссоциация молекул воздуха становится заметной при температурах в несколько тысяч градусов, а ионизация атомов начинается с десятка тысяч градусов. Однако в диссоциированном воздухе возникает новый канал ионизации, связанный с образованием молекулярного иона NO^+ из атомов азота и кислорода [3, 4] в силу высокой энергии диссоциации этого молекулярного иона. Поэтому начальная ионизация воздуха в процессе повышения температуры сопровождается диссоциацией молекул азота.

Характер термодинамического равновесия в воздухе выбирает простой алгоритм вычисления термодинамических параметров горячего воздуха, но до появления персональных компьютеров такие вычисления были громоздкой вычислительной задачей. Поэтому параметры равновесного возбужденного воздуха обычно представлялись в виде таблиц или аппроксимированных функций [5–8]. Теперь такие расчеты доступны для современных персональных компьютеров, и в данной статье будут проанализированы алгоритмы для анализа диссоциативного и ионизационного равновесий в равновесном возбужденном воздухе.

Темой данной статьи является анализ процессов, протекающих в плазме воздуха. При высокой степени ионизации плазма, создаваемая внешним электрическим полем, является нестабильной в силу токово-конвективной неустойчивости. Эта неустойчивость имеет ту же природу, что и в случае использования магнитного поля для стабилизации плазмы [9, 10]. Именно, возмущение температуры, приводящее к возмущению скорости расширения плазмы, создает вихри, которые разрушают плазму. Соответственно, время развития токово-конвективной неустойчивости немного превышает характерное время перемещения плазмы, в нашем случае время расширения проводящего канала молнии. Для установления термодинамического равновесия в такой плазме необходимо, чтобы за это время упругие столкновения между атомами и электронами привели к термодинамическому равновесию внутри атомной и электронной подсистем. Равновесие между атомной и электронной подсистемами является результатом неупругих столкновений электронов с атомами азота и кислорода, отвечающих переходам между состояниями тонкой структуры атомов и ионов.

Анализ плазмы, образуемой при прохождении электрического тока через газ, упрощается в случае термодинамического равновесия в ней. В данной статье это используется для анализа прохождения через атмосферу электрического тока молнии.

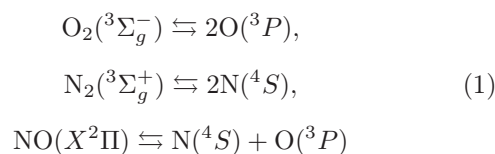
Молния — сложное физическое явление, отдельные аспекты которого подробно исследованы в последнее столетие. В силу сложности понимание основных элементов этого явления следует из экспериментальных исследований, и далее на основе их и общих физических принципов проводятся оценки и создаются модели, позволяющие более глубоко понять физическую природу отдельных аспектов этого явления.

В данной статье результаты, полученные из анализа равновесного горячего воздуха, используются для исследования двух стадий прохождения электрического тока молнии по проводящему каналу молнии. Это относится к стадии возвратного удара, когда по проводящему каналу протекает максимальный электрический ток, а сам канал расширяется и распадается. Другая стадия связана с промежутком времени между соседними вспышками молнии. Это время определяется перемещением заряда на нижнем краю облака. Именно, разделение заряда в облаке создает атмосферное электрическое поле и вызывает последующий разряд молнии. Связывая разные параметры рассматриваемых процессов, можно оценить параметры плазмы в промежутке времени между соседними вспышками молнии, а также напряженность внешнего электрического поля, которое должно поддерживать плазму проводящего канала молнии до следующей вспышки.

2. ДИССОЦИАТИВНОЕ РАВНОВЕСИЕ В НАГРЕТОМ ВОЗДУХЕ

Рассматривая диссоциативное равновесие в воздухе при давлении порядка атмосферного и при высоких температурах вплоть до 30 кК, максимальной температуре в проводящем канале молнии, представим сначала алгоритм вычисления в общем случае, который может быть использован и для других газовых смесей. При этом будем считать, что атомы и молекулы находятся в основных электронных состояниях, и в случае воздуха используем значения их параметров, представленные в таблице.

Диссоциативное равновесие в воздухе описывается уравнениями



и ведет к следующему соотношению между плотно-

Таблица. Параметры молекулярных частиц, представляющих интерес для равновесия в горячем воздухе [11]

Параметр	$N_2(X^1\Sigma_g^+)$	$O_2(X^3\Sigma_g^-)$	$NO(X^2\Pi_{1/2})$	$NO^+(X^2\Sigma^+)$
$B, \text{см}^{-1}$	1.998	1.445	1.672	1.43
$\hbar\omega, \text{см}^{-1}$	2359	1580	1904	2377
$D, \text{эВ}$	9.58	5.12	6.50	10.85
$J_m, \text{эВ}$	15.58	12.07	9.26	—
$J_a, \text{эВ}$	14.53	13.62	—	—

стями молекул и атомов в соответствии с формулой Саха [1, 2]

$$f(T) \equiv \frac{[X]^2}{[X_2]} = \frac{1}{2} \frac{g_a^2}{g(X_2)} \frac{g_c(X-X)}{g_m} \exp\left(-\frac{D}{T}\right), \quad (2)$$

$$g_c(X-X) = \left(\frac{\mu T}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2},$$

$$g_m = \frac{T}{B} \left[1 - \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{T}\right)\right]^{-1}.$$

Здесь $[X]$ — плотность атомов X , g_a и $g(X_2)$ — статистические веса электронных состояний атома X и молекулы X_2 соответственно, $g_c(X-X)$ — статистический вес для непрерывного спектра двух атомов X , g_m — статистический вес вращательного и колебательного состояний молекулы X_2 . При этом коэффициент $1/2$ учитывает симметрию молекулы X_2 , μ — приведенная масса атомов, равная половине массы атома, B — вращательная постоянная, $\hbar\omega$ — энергия колебательного возбуждения молекулы, D — энергия диссоциации молекулы X_2 . Значения последних трех параметров, а также потенциалов атомов J_a и молекул J_m приведены в таблице.

Для простоты будем считать, что воздух состоит из двух компонент — азота и кислорода, причем концентрации ядер азота c_N и кислорода c_O равны соответственно $c_N = 0.79$ и $c_O = 0.21$ в каждом макроскопическом элементе воздуха. В соответствии с уравнением состояния воздуха как газа для полной плотности N атомных частиц имеем

$$N(T) \equiv [N_2] + [N] + [O_2] + [O] = \frac{p}{T} \quad (3)$$

В дополнение к этому, поскольку при диссоциации относительное число ядер для каждой компоненты сохраняется в каждом элементе воздуха, имеем следующее соотношение:

$$\frac{2[N_2] + [N]}{2[O_2] + [O]} = \frac{c_N}{c_O}. \quad (4)$$

Раскрывая уравнение (2) отдельно для диссоциативного равновесия в азоте и кислороде, получим

следующие уравнения:

$$f_N(T) \equiv \frac{[N]^2}{[N_2]} = \xi_N \sqrt{T} B_N [1 - \exp(-\hbar\omega_N/T)] \exp(-D_N/T),$$

$$f_O(T) \equiv \frac{[O]^2}{[O_2]} = \xi_O \sqrt{T} B_O [1 - \exp(-\hbar\omega_O/T)] \exp(-D_O/T), \quad (5)$$

где

$$\xi_N = g(N)^2/g(N_2) = 16,$$

$$\xi_O = g(O)^2/g(O_2) = 27,$$

$g(X)$ — статистический вес частицы X , отвечающий ее электронному состоянию, а индексы указывают молекулы, к которым относятся рассматриваемые величины. Объединяя формулы (3), (4) и (5), определим далее плотности атомов и молекул азота и кислорода в переходной области температур, где происходит переход к диссоциированному воздуху.

Четыре уравнения, (3), (4) и (5) позволяют определить четыре плотности атомных частиц, именно, $[N]$, $[N_2]$, $[O]$, $[O_2]$. Анализ этой системы уравнений упрощается, поскольку области температур для диссоциативного перехода кислорода и азота разделены. Действительно, переход кислорода в диссоциированное состояние происходит при температурах, при которых атомы азота практически отсутствуют в термодинамически равновесном воздухе, а диссоциация азота происходит при температурах, при которых молекулы кислорода в равновесном воздухе практически отсутствуют. Это позволяет исключить из рассмотрения второе уравнение (5) при анализе диссоциативного равновесия азота, а также первое уравнение (5) при анализе диссоциативного равновесия кислорода. В результате имеем

$$c_N N = (1 + c_O)[N_2] + [N], \quad [O_2] \ll [O],$$

$$c_O N = [O_2] + (1 + c_O)[O]/2, \quad [N] \ll [N_2]. \quad (6)$$

Решая систему уравнений (5) и (6) отдельно для азота и кислорода в областях диссоциативного пере-

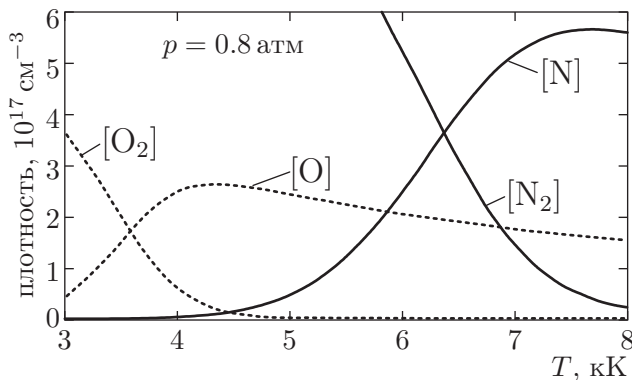


Рис. 1. Температурные зависимости плотности атомов и молекул азота и кислорода в равновесном горячем воздухе при давлении $p = 0.8$ атм в соответствии с формулами (7)

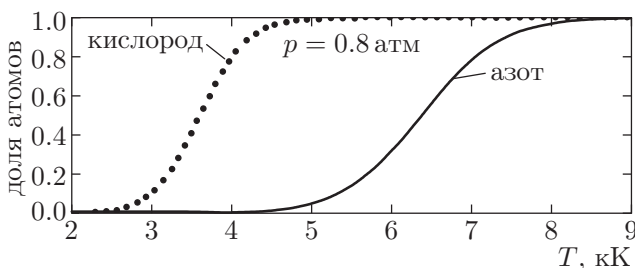


Рис. 2. Температурные зависимости долей атомов азота $C_N(T)$ и кислорода $C_O(T)$, определяемых формулами (8), в равновесном горячем воздухе при давлении $p = 0.8$ атм

да для каждой из этих компонент, для плотностей атомов в этих областях получим

$$\begin{aligned}
 [N] &= \sqrt{\frac{f_N^2}{4(1+c_O)^2} + \frac{f_N c_N N}{1+c_O}} - \frac{f_N}{2(1+c_O)}, \\
 [N_2] &= \frac{c_N N}{1+c_O} - \frac{[N]}{1+c_O}, \quad [N] \ll [N_2], \\
 [O] &= \sqrt{\frac{(1+c_O)^2 f_O^2}{4} + f_O c_O N} - \frac{(1+c_O)f_O}{2}, \\
 [O_2] &= c_O N - (1+c_O)[O]/2, \quad [O] \gg [O_2].
 \end{aligned} \quad (7)$$

На рис. 1 представлена зависимость плотности атомов кислорода и азота от температуры в равновесном горячем воздухе при давлении $p = 0.8$ атм в области диссоциативного перехода для соответствующей компоненты. Это давление для стандартной атмосферы, т. е. для атмосферы с усредненными параметрами по времени и земному шару, реализуется на высоте $h = 2$ км. Относя результаты конкретных расчетов к этому давлению, тем самым мы ориентируемся на горячий равновесный воздух, образуемый на указанной высоте при прохождении электрического тока через атмосферу в канале линейной молнии. Последующие конкретные расчеты относятся именно к этому давлению.

Введем доли атомов C_N и C_O для соответствующих компонент как относительное число атомов данного сорта в соответствии с выражениями

$$C_N(T) = \frac{[N]}{[N] + [N_2]}, \quad C_O(T) = \frac{[O]}{[O] + [O_2]}, \quad (8)$$

где выражения для плотностей атомов и ионов даются формулами (7). На рис. 2 приводятся температурные зависимости степени диссоциации азота и кислорода в горячем воздухе.

Отметим, что представленный алгоритм для определения степени диссоциации молекул в смеси газов справедлив в случае, если диссоциативный переход для каждой из его компонент происходит в разных температурных областях. При этом атомы и молекулы находятся в основных электронных состояниях, что справедливо для температур диссоциативного перехода азота и кислорода. Кроме того, полученные результаты подтверждают общие положения для характера перехода равновесного молекулярного газа в диссоциированное состояние, согласно которому этот переход происходит при температурах, выраженных в энергетических единицах, которые при давлении воздуха порядка атмосферного на порядок величины меньше энергии диссоциации молекулы. Это связано с большим статистическим весом состояний непрерывного спектра молекулярного газа.

Представленные выше точные решения для плотности атомов и молекул азота и кислорода справедливы в ограниченной области температур. Удобно использовать приближенный метод, когда взаимодействие между компонентами отсутствует, т. е. вклад в полное давление газа со стороны каждой компоненты не зависит от температуры. Это приближение соответствует замене точного соотношения (4) следующими:

$$\begin{aligned}
 c_N N &= [N] + [N_2], \\
 c_O N &= [O] + [O_2].
 \end{aligned}$$

Это для плотностей атомов вместо (6) дает

$$\begin{aligned}
 [N] &= \sqrt{f_N^2/4 + f_N c_N N} - f_N/2, \\
 [O] &= \sqrt{f_O^2/4 + f_O c_O N} - f_O/2.
 \end{aligned} \quad (9)$$

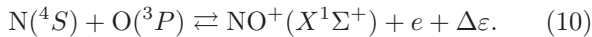
Как видно, взаимодействие между компонентами в процессе диссоциативного перехода происходит в результате изменения вклада в давление за счет разных компонент в процессе диссоциации каждой из них. В случае воздуха имеем, что вклад кислорода в давление меняется от 21 % для молекулярного

кислорода до 35 % для диссоциированного кислорода и молекулярного азота. При этом приближенный метод определения степени диссоциации, в котором пренебрегается взаимодействием между компонентами через их вклад в давление, дает близкие к точному значения плотностей атомов в равновесном атмосферном воздухе.

Оценим точность приближенного метода, сравнивая парциальное давление азота при температурах, при которых плотности атомов кислорода или азота равны. В первом случае парциальное давление азота для приближенного решения уравнений (9) при температуре, при котором кислород диссоциирован наполовину, в $(1 + c_0/3)$ ниже точного, а при температуре, при которой азот диссоциирован наполовину, в $(1 + c_0/2)$ выше, чем дает точное решение. Отсюда точность приближенного метода оценивается в 10 %.

3. ИОНИЗАЦИОННОЕ РАВНОВЕСИЕ В ВОЗДУХЕ С УЧАСТИЕМ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ИОНОВ

Ионизационный переход в равновесном воздухе ожидается при более высоких температурах, чем диссоциативный переход, поскольку потенциалы ионизации атомов заметно превышают энергии диссоциации молекул. Однако в воздухе как в многокомпонентной системе существует дополнительный канал ионизации, связанный с образованием молекулярного иона окиси азота [3, 4]. Этот канал ионизации реализуется при более низких температурах, чем в случае чистого азота или кислорода. Этот канал отвечает процессу



При этом энергия перехода $\Delta\varepsilon$ для рассматриваемого процесса в случае основного состояния участвующих в нем частиц может быть найдена двумя способами:

$$\begin{aligned} \Delta\varepsilon &= J(\text{NO}) - D(\text{NO}) = \\ &= J(\text{O}) - D(\text{NO}^+) = 2.77 \text{ эВ}, \end{aligned} \quad (11)$$

где $J(\text{NO}) = 9.264 \text{ эВ}$ — потенциал ионизации молекулы NO, $D(\text{NO}) = 6.497 \text{ эВ}$ — энергия диссоциации молекулы NO, $J(\text{O}) = 13.62 \text{ эВ}$ — потенциал ионизации атома кислорода, $D(\text{NO}^+) = 10.85 \text{ эВ}$ — энергия диссоциации молекулярного иона NO^+ [11]. Как видно, энергия (11) заметно меньше, чем энергии диссоциации и потенциалы ионизации атомных частиц, образуемых в воздухе. Поэтому ионизация

на основе канала (10) происходит при температурах, приводящим к диссоциации молекул воздуха. Кроме того, только Σ -состояние молекулярного иона NO^+ может участвовать в этом процессе, что соответствует основному электронному состоянию образующих его атома азота и иона кислорода.

Основываясь на равновесии процесса (10) в горячем воздухе и на распределении Больцмана для плотностей участвующих в нем атомных частиц и считая, что образование молекулярного иона NO^+ не влияет на плотность атомов, для равновесия в процессе (10) имеем

$$\frac{[\text{NO}^+]N_e}{[\text{N}][\text{O}]} = \frac{g_m g_c(e-\text{NO}^+)}{g g_c(\text{N-O})} \exp\left(-\frac{\Delta\varepsilon}{T}\right). \quad (12)$$

Здесь $[\text{N}]$, $[\text{O}]$, $[\text{NO}^+]$ — текущие плотности указанных атомных частиц, N_e — плотность электронов, g — комбинация статистических весов для электронных состояний атомных частиц, участвующих в процессе (10), g_m — статистический вес вращательного и колебательного состояний молекулярного иона окиси азота, выражающийся через ее параметры в соответствии с формулой (2), g_c — статистический вес состояний непрерывного спектра для атомных частиц, указанных в скобках.

Статистический вес вращательного и колебательного состояний молекулярного иона NO^+ определяется формулой

$$g_m = \frac{T}{B} \frac{1}{1 - \exp(-\hbar\omega/T)}, \quad (13)$$

где вращательная постоянная B и энергия $\hbar\omega$ возбуждения колебаний в молекуле приведены выше в таблице. Для статистического веса состояний непрерывного спектра имеем следующие выражения в соответствии с формулой Саха:

$$\begin{aligned} g_c(e-\text{NO}^+) &= \xi T^{3/2}, \\ g_c(\text{N-O}) &= \left(\frac{\mu}{m_e}\right)^{3/2} \xi T^{3/2}, \\ \xi &= \left(\frac{m_e}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2}, \end{aligned} \quad (14)$$

где m_e — масса электрона. Комбинация статистических весов для электронных состояний атома азота $\text{N}(^4S)$, иона кислорода $\text{O}^+(^4S)$ и электрона $g_e = 2$, которые участвуют в рассматриваемом равновесии, составляет

$$g = \frac{g(\text{N})g(\text{O})}{g(\text{NO}^+)g_e} = 18,$$

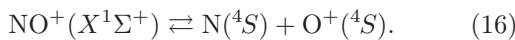
где в скобках указаны частицы, к электронным состояниям которых относится статистический вес.

Учитывая квазинейтральность плазмы воздуха ($[\text{NO}^+] = N_e$), на основании формулы (12) для плотности электронов в равновесном горячем воздухе в рассматриваемой области температур в соответствии со схемой (10), в том числе в случае, если ион NO^+ является промежуточным продуктом данного процесса, получим

$$N_e = \sqrt{\frac{g_m}{18} \left(\frac{m_e}{\mu}\right)^{3/2}} [\text{N}][\text{O}] \exp\left(-\frac{\Delta\varepsilon}{2T}\right). \quad (15)$$

Здесь $\mu = 7.5$ ат. ед. — приведенная масса атомов азота и кислорода. Формула (15) дает плотность электронов при относительно низкой температуре, когда воздух частично диссоциирован и ионизация соответствует схеме (10).

Очевидно, что при более высоких температурах имеет место распад молекулярных ионов NO^+ с образованием атомных ионов кислорода, который происходит по схеме



При этом диссоциация молекулярного иона окиси азота происходит при относительно высокой температуре в равновесном воздухе в силу большой энергии диссоциации молекулярного иона, причем диссоциативное равновесие между атомными и молекулярными ионами в горячем равновесном воздухе определяется формулой (2)

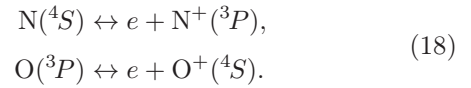
$$\frac{[\text{O}^+][\text{N}]}{[\text{NO}^+]} = \frac{g'g_c(\text{N-O}^+)}{g_m} \exp\left(-\frac{D}{T}\right), \quad (17)$$

$$g_c(\text{N-O}^+) = \left(\frac{\mu}{m_e}\right)^{3/2} \xi T^{3/2},$$

где статистический вес g_m молекулярного иона дается формулой (13). Параметры молекулярного иона NO^+ , взятые из таблицы, равны $B = 1.43 \text{ см}^{-1}$ — вращательная постоянная, $\hbar\omega = 2377 \text{ см}^{-1}$ — энергия колебательного возбуждения, $D = 10.85 \text{ эВ}$ — энергия диссоциации молекулярного иона, $g' = 16$ — комбинация статистических весов атомных частиц, относящаяся к их электронному состоянию, $\mu = 7.5$ ат. ед. — приведенная масса атомов азота и кислорода.

Как следствие процессов (10) и (16), максимальная плотность молекулярных ионов NO^+ отвечает температуре 6750 К при давлении горячего воздуха $p = 0.8$ атм и составляет $5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$. При этом равенство плотностей молекулярных ионов NO^+ и атомных ионов O^+ реализуется при температуре 7200 К.

При высоких температурах основным сортом ионов в плазме воздуха являются атомные ионы. Соответствующие ионизационные процессы равновесия отвечают схемам



Тогда формула Саха [1, 2] ведет к следующему соотношению между плотностями электронов, ионов и атомов кислорода в предположении, что атомы и ионы находятся в основных электронных состояниях:

$$\begin{aligned} \frac{N_e[\text{O}^+]}{[\text{O}]} &= F_{\text{O}}(T), \\ F_{\text{O}}(T) &= \frac{g_e g(\text{O}^+)}{g(\text{O})} \xi \exp\left(-\frac{J_{\text{O}}}{T}\right). \end{aligned} \quad (19)$$

Здесь $[\text{O}]$ и $[\text{O}^+]$ — плотности атомов и ионов кислорода соответственно, статистические веса этих атомных частиц равны

$$g(\text{O}) = 9, \quad g(\text{O}^+) = 4, \quad g_e = 2.$$

Далее $J_{\text{O}} = 13.62 \text{ эВ}$ — потенциал ионизации атома кислорода согласно данным таблицы. Отметим, что ионизационное равновесие (17) может быть получено как произведение распределений (12) и (15). Это означает, что ионизационное равновесие (10) с повышением температуры переходит в равновесие, описываемое вторым уравнением формулы (18). Подобно уравнению (19) для кислорода, для азота имеем

$$\begin{aligned} \frac{N_e[\text{N}^+]}{[\text{N}]} &= F_{\text{N}}(T), \\ F_{\text{N}}(T) &= \frac{g_e g(\text{N}^+)}{g(\text{N})} \xi \exp\left(-\frac{J_{\text{N}}}{T}\right). \end{aligned} \quad (20)$$

В это уравнение включены те же параметры, что и в уравнении (19), но они относятся к азоту.

Наряду с этим имеем условие квазинейтральности плазмы, которое описывается уравнением

$$N_e = [\text{N}^+] + [\text{O}^+] + [\text{NO}^+]. \quad (21)$$

К этому следует добавить уравнение для полного давления возбужденного воздуха, а также уравнение сохранения относительной массы азота и кислорода в любом макроскопическом объеме, которые аналогичны формулам (3) и (4) для диссоциативного равновесия и имеют вид

$$\begin{aligned} N(T) &= [\text{N}] + [\text{N}^+] + [\text{O}] + [\text{O}^+] + N_e, \\ \frac{[\text{N}] + [\text{N}^+]}{[\text{O}] + [\text{O}^+]} &= \frac{c_{\text{N}}}{c_{\text{O}}}. \end{aligned} \quad (22)$$

В результате мы получаем пять уравнений (19)–(22),

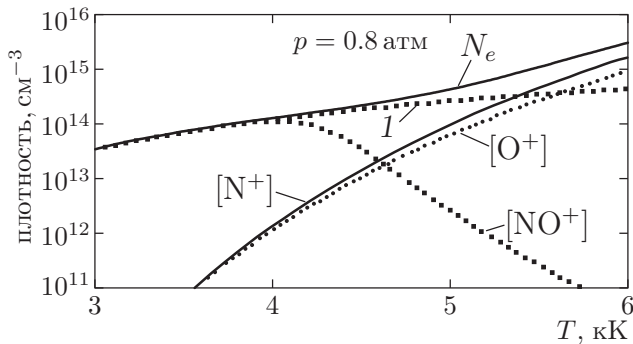


Рис. 3. Температурные зависимости плотности заряженных атомных частиц в равновесном горячем воздухе, отвечающие низкотемпературной части ионизационного равновесия. Цифрой 1 отмечена плотность электронов, возникающих в результате образования ионов $[NO^+]$

которые определяют пять плотностей частиц $[N]$, $[N^+]$, $[O]$, $[O^+]$, N_e . Тем самым на основе указанных уравнений можно определить плотности атомных частиц, находящиеся в равновесном частично ионизованном воздухе.

На рис. 3 приведены плотности электронов и ионов при относительно невысоких температурах, при которых диссоциация молекул азота не закончилась и основной или заметный вклад в ионизацию создается через образование молекулярных ионов $[NO^+]$. Плотность электронов за счет этого канала, как и плотность молекулярных ионов $[NO^+]$, на несколько порядков величины меньше плотности электронов при высоких температурах в силу малости параметра m_e/μ в формуле (15).

На рис. 4 представлены температурные зависимости плотности электронов, ионов и атомов в случае ионизационного равновесия (18). При этом ис-

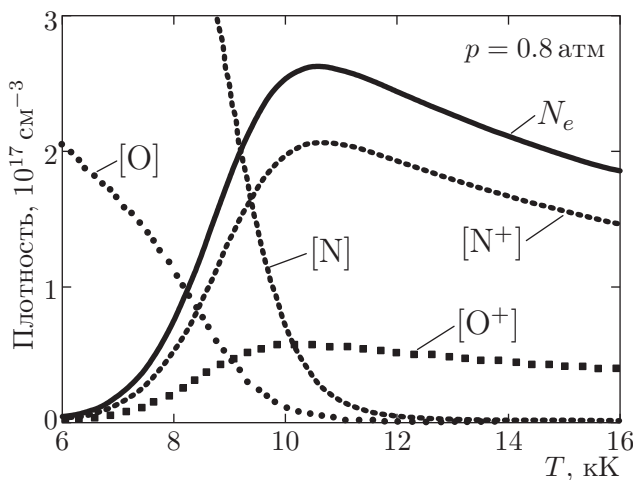


Рис. 4. Температурные зависимости плотностей атомов и ионов азота и кислорода, а также плотности электронов в равновесном ионизованном воздухе, рассчитанные по формулам (20), (21), (22) и (23) при давлении воздуха $p = 0.8$ атм

пользуется предположение, в рамках которого взаимодействием между компонентами пренебрегается. Тогда суммарная плотность ионов и атомов азота равна $c_N N$, а суммарная плотность ионов и атомов кислорода равна $c_O N$, так что второе уравнение формулы (22) автоматически выполняется. Это позволяет расцепить систему пяти уравнений, разделив ее на две независимые системы двух уравнений, отдельно для азота и кислорода. Соответственно плотности ионов азота и кислорода равны

$$\begin{aligned} [N^+] &= c_N \sqrt{F_N^2 + N F_N} - c_N F_N, \\ [O^+] &= c_O \sqrt{F_O^2 + N F_O} - c_O F_O. \end{aligned} \quad (23)$$

Отметим, что рассмотренный метод основан на предположении, что в ионизационном равновесии участвуют атомы и ионы в основном состоянии. Учет возбужденных электронных состояний атомов и ионов ведет к замене в соответствующих формулах статистических весов атомов и ионов в основных состояниях статистическими суммами, причем роль возбужденных состояний в ионизационном равновесии возрастает по мере роста температуры. Однако при температурах, при которых происходит ионизационный переход, учет роли возбужденных электронных состояний атомов и ионов приводит к увеличению их статистических весов на несколько процентов, что не превышает точности приведенных расчетов.

Как следует из рис. 3 и 4, первая стадия ионизационного равновесия происходит при температурах диссоциативного перехода через образование молекулярного иона NO^+ . Соответственно, плотность ионов и электронов при этих температурах невелика. В частности, максимальная плотность молекулярных ионов NO^+ равна примерно 10^{14} см^{-3} . При более высоких температурах, когда ионизационное равновесие определяется ионизацией атомов, плотности электронов и ионов возрастают на три порядка величины.

Отметим, что, рассматривая ионизационное равновесие в воздухе, мы ориентируемся на плазму проводящего канала молнии, максимальная температура которой может достигать 30 кК. В области высоких температур эта плазма становится полностью ионизованной. Более того, начиная примерно с температуры 28 кК в этой плазме доминируют двухзарядные ионы.

4. ПЛАЗМА ПРОВОДЯЩЕГО КАНАЛА МОЛНИИ

При проведении данного анализа мы считали, что в плазме воздуха поддерживается термодина-

мическое равновесие. Однако при заметной степени ионизации плазмы в ней возникает токово-конвективная неустойчивость [9,10], если плазма создается электрическим током. Эта неустойчивость возникает при малой степени ионизации, при которой взаимодействие между заряженными частицами доминирует. Практически ионизованный воздух стабилен при степени ионизации менее 1 % [12]. При более высокой степени ионизации возможна стабилизация плазмы в струе, истекающей из плазмотрона [13, 14]. В других случаях имеем дело с импульсной плазмой, которая существует ограниченное время, но при достаточной плотности плазмы в ней устанавливается термодинамическое равновесие за более короткое время.

При этом в случае плазмы воздуха важную роль в установлении равновесия играют неупругие столкновения с участием ионов и атомов, в результате которых изменяется их электронное состояние при сохранении структуры электронной оболочки. В случае столкновения атомов и ионов в воздухе при атмосферном и близком к нему давлении характерное время установления этого равновесия оценивается как порядка 1 мкс. Поэтому, если характерное время изменения параметров плазмы превышает эту величину, в процессе эволюции плазмы поддерживается термодинамическое равновесие.

Действительно, в плазме воздуха при температуре в несколько тысяч градусов неупругие переходы при столкновении атомов и ионов происходят в результате пересечения соответствующих электронных термов сталкивающихся частиц [15, 16]. Сечение неупругого перехода σ составляет величину порядка атомной, $\sigma \sim 10^{-16} \text{ см}^2$, так что характерное время установления одинаковых газовой и электронной температур $\tau \sim (Nv\sigma)^{-1} \sim 10^{-6} \text{ с}$, где $N \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ — характерная плотность сталкивающихся атомных частиц (атомов и ионов) при атмосферном давлении и рассматриваемых температурах, $v \sim 10^5 \text{ см/с}$ — характерная скорость этих частиц.

Рассматривая эволюцию плазмы воздуха при атмосферном и сравнимом с ним давлении, имеем, что если заметное изменение ее состояния происходит за времена, превышающие микросекунды, можно считать, что в каждый момент времени в ней поддерживается термодинамическое равновесие, где газовая и электронная температуры одинаковы. Тогда характер эволюции плазмы воздуха описывается изменением температуры T плазмы, ее давления и состава. При этом мы ориентируемся на плазму проводящего канала молнии.

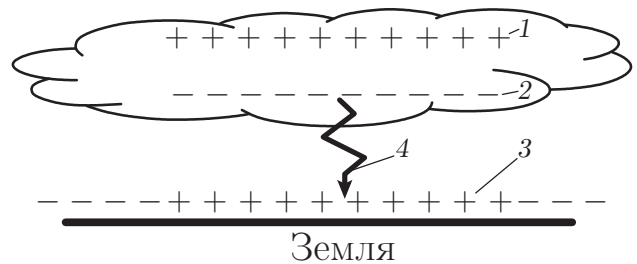


Рис. 5. Состояние атмосферы, приводящее к формированию молнии: 1, 2 — области, содержащие микрокапли воды указанного знака заряда; 3 — индуцируемый электрический заряд на поверхности Земли под действием заряда нижнего края облака; 4 — перенос заряда с нижнего края облака на поверхность Земли

Используем результаты рассмотрения равновесного атмосферного воздуха при высоких температурах для анализа плазмы проводящего канала молнии. Молния как одна из стадий атмосферного электричества является сложным явлением [17–24] и начинается с формирования электрического поля кучевого облака в результате дрейфа заряженных микрокапель воды [25] к поверхности Земли под действием ее гравитационного поля. Это ведет к разделению зарядов в кучевом облаке, так что на нижнем крае кучевого облака формируется чаще отрицательный заряд, который в силу высокой проводимости поверхности Земли индуцирует на ней положительный заряд, как показано на рис. 5. Этот характер переноса электрического заряда от нижнего края облака к поверхности Земли возможен в теплое время года, когда заряженные капли на нижнем крае облака теряют свой заряд в результате испарения молекулярных ионов. Тогда заряд нижнего края облака определяется молекулярными ионами, чаще отрицательно заряженными, так что дрейф заряда к поверхности Земли под действием ее гравитационного поля прекращается [26].

Рассматривая перенос заряда от облаков на поверхность Земли как глобальный процесс, будем считать, что, согласно измерениям [27], электрический потенциал U предгрозовых облаков составляет $U = 20\text{--}100 \text{ МВ}$. При этом типичная напряженность электрического поля в предгрозовую погоду составляет $E_0 = 300 \text{ В/см}$ [28–30], и как видно, эта напряженность поля может поддерживаться при расстоянии между облаками и поверхностью Земли в несколько километров. Далее, эта напряженность электрического поля отвечает плотности заряда на нижнем краю облака и наведенному на поверхности Земли, который составляет порядка 10^8 е/см^2 . Поскольку типичный заряд, переносимый средней

молнией, оценивается как $Q = 20$ Кл [17], имеем, что характерный размер облака, обеспечивающий перенос заряда для средней молнии, составляет порядка 10 км.

Первой стадией прохождения электрического тока молнии между облаком и поверхностью Земли является лидер — волна ионизации, которая создает проводящий канал между ними. На следующей стадии, при возвратном ударе, в течение короткого времени, порядка 1 мкс, переносится основная часть заряда и создается горячая равновесная плазма воздуха внутри проводящего канала молнии. Релаксация этой плазмы сопровождается охлаждением и разлетом плазмы, что описывается соответствующими моделями [31–33] с использованием предположения, что действие внешних полей на этой стадии развития молнии не существенно. В силу геометрии распределения электрического заряда (см. рис. 5) в результате импульса тока переносится только часть заряда, и электрический ток запирается, когда у горла проводящего канала скапливается достаточный положительный заряд в виде положительных ионов.

Однако этот заряд мал по сравнению с зарядом нижнего края облака, и поэтому, когда он растечется в пространстве, может произойти новая вспышка молнии, которая отличается от первой вспышки тем, что вместо ступенчатого лидера (stepped leader) проводящий канал создается стреловидным лидером (dart leader) в слабопроводящем воздухе. Очевидно, при отсутствии внешнего поля проводящий канал распадается за времена менее миллисекунды, и последующий перенос заряда из облаков на поверхность Земли мог бы произойти по новому проводящему каналу. Тем самым между соседними вспышками плазма проводящего канала поддерживается внешним полем. Нашей задачей является оценить параметры плазмы проводящего канала в промежутки времени между соседними вспышками молнии.

В силу сложности молнии как физического явления, экспериментальные результаты являются основой для понимания этого явления, и поэтому на рис. 6 приводятся данные по релаксации плазмы проводящего канала молнии, полезные для этой цели. При этом температура восстанавливается из отношения интенсивностей спектральных линий, относящихся к мультиплету, который находится в оптической области спектра и включает спектральные переходы для двухзарядных ионов. Поскольку плотность двухзарядных ионов резко падает по мере удаления от центра проводящего канала, приводимая

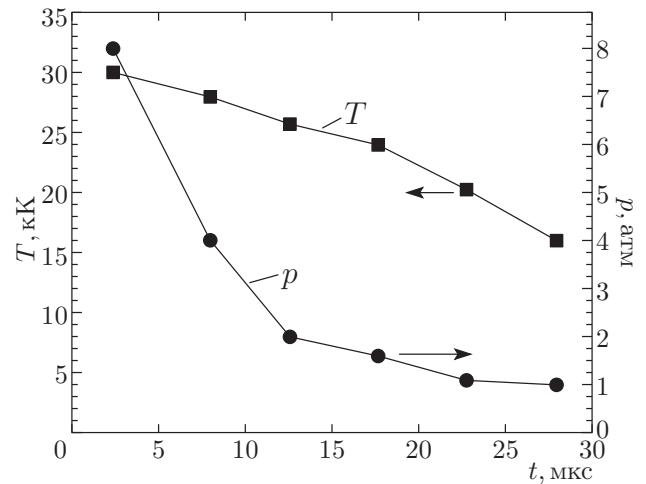


Рис. 6. Характер изменения температуры плазмы проводящего канала молнии и изменения давления в процессе ее релаксации на стадии возвратного канала [34]

температура относится к центру проводящего канала. Давление воздуха восстанавливается из ширины спектральных линий.

В соответствии с данными рис. 6 время релаксации температуры плазмы проводящего канала молнии равно $\tau_T \approx 54$ мкс на первой стадии эволюции плазмы, а время релаксации давления равно $\tau_p \approx 9$ мкс. Отсюда следует, что первая стадия релаксации плазмы возвратного удара молнии определяется расширением плазмы, тогда как релаксация температуры происходит гораздо медленнее. При этом характерное время установления ионизационного равновесия может быть оценено для квазинейтральной плазмы при высоких температурах как характерное время трехчастичной рекомбинации, составляющей по порядку величины [35, 36]

$$\frac{1}{\tau_{ion}} = N_e^2 K_{ion}, \quad (24)$$

$$K_{ion} = \frac{e^{10}}{m_e^{1/2} T^{9/2}}.$$

Отметим, что в соответствии с характером трехчастичного процесса для плазмы, содержащей многозарядные ионы заряда Z , константа скорости тройной рекомбинации $K_{ion} \sim Z^3$. Степень ионизации

$$\zeta = \frac{N_e}{[N] + [O]}$$

равна 0.02 при температуре 10 кК и $\zeta \approx 1$ при температуре 15 кК. При рассматриваемом давлении $p = 0.8$ атм характерное время установления ионизационного равновесия составляет $\tau_{ion} \sim 10^{-5}$ с при температуре 10 кК и $\tau_{ion} \sim 5 \cdot 10^{-5}$ с при температуре 15 кК. Эти времена сравнимы со временем

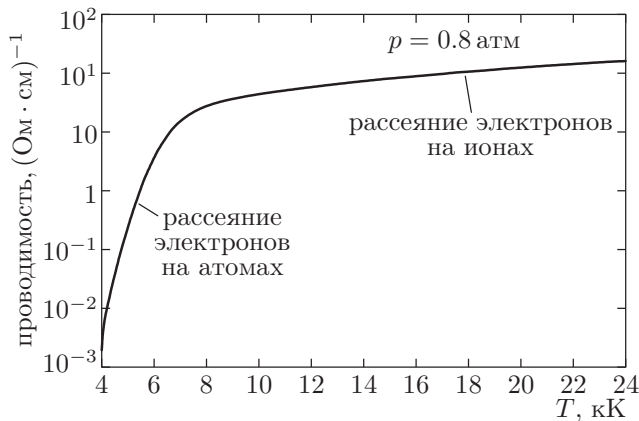


Рис. 7. Температурная зависимость проводимости равновесной плазмы

релаксации плазмы проводящего канала, образуемой при прохождении электрического тока на стадии возвратного удара.

Опишем эволюцию плазмы проводящего канала молнии на стадиях возвратного удара и непрерывного тока, т. е. между соседними вспышками, когда в плазме поддерживается термодинамическое равновесие. На этих стадиях имеем следующее уравнение для эволюции температуры:

$$Nc_p \frac{dT}{dt} = iE - \frac{Nc_p \Delta T}{\tau_T}, \quad (25)$$

где $c_p = 5/2$ — теплоемкость, приходящаяся на одну атомную частицу, N — суммарная плотность электронов, ионов и атомов, i — плотность электрического тока, E — напряженность электрического поля, ΔT — изменение температуры к данному моменту времени, τ_T — время релаксации температуры. К этому следует добавить закон Ома, имеющий вид

$$i = \Sigma E, \quad (26)$$

где E — напряженность электрического поля, которое поддерживает плазму, Σ — ее проводимость.

Поскольку плазма является равновесной, можно построить зависимость ее проводимости от температуры, $\Sigma(T)$, на основе стандартной процедуры [37], выражая проводимость плазмы через частоту столкновения электронов с нуклонами. Тогда при высоких температурах проводимость дается формулой Спитцера [38], которая учитывает только рассеяние электронов на ионах. При низких температурах проводимость плазмы определяется рассеянием электронов на атомах, причем измеренное диффузионное сечение столкновения электрона с атомом азота составляет $\sigma_{ea} \approx 2 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$ [39, 40] и слабо зависит от энергии электронов при энергии электрона порядка 1 эВ. На основе этого построим

представленную на рис. 7 зависимость проводимости равновесной плазмы от температуры для указанного давления.

Используем некоторые экспериментальные данные, относящиеся к плазме возвратного удара, в рамках модели, где равновесная плазма однородна внутри цилиндра радиуса R , а за пределами этого столба находится холодный воздух при рассматриваемом давлении $p = 0.8 \text{ атм}$. Будем считать, что на начальной стадии возвратного удара на плазму действует среднее электрическое поле, наблюдаемое в грозовую погоду, напряженность которого равна $E \approx 300 \text{ В/см}$ [28–30]. При высоких температурах проводимость плазмы воздуха атмосферного давления, как это следует из данных рис. 7, $\Sigma \sim 100 \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$. Отсюда для плотности тока имеем $i \simeq 2 \cdot 10^4 \text{ А/см}^2$. Для молнии средней интенсивности пиковый электрический ток на стадии возвратного удара составляет 10–20 кА [17, 18]. Соответственно, радиус плазменного столба на первой стадии возвратного удара составляет около 1 см. Этот размер формируется в результате расширения плазмы, которое происходит со скоростью звука $c_s \sim 10^5 \text{ см/с}$ и совершается за время $\tau \sim R/c_s \sim 10 \text{ мкс}$. Это время соответствует времени релаксации давления плазмы.

Рассмотрим также стадию непрерывного тока между соседними вспышками молнии, время которого находится в промежутке между 0.01 и 0.1 с, а сила электрического тока на этой стадии для молнии средней интенсивности составляет 10–100 А. Поэтому, чтобы сохранить плазму до следующей вспышки, необходимо поддерживать плазму внешним электрическим полем. Поскольку радиус проводящего канала после окончания возвратного удара согласно моделям возвратного удара молнии [31–33] составляет примерно $R \sim 10 \text{ см}$, формула (26) дает $\Sigma \sim 10^{-3} \text{--} 10^{-2} \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$, что соответствует температуре плазмы примерно 4–5 кК.

Очевидно, напряженность электрического поля, действующего на плазму проводящего канала молнии на стадии непрерывного тока, меньше ее средней величины в грозовую погоду, но превышает эту величину ($\sim 1 \text{ В/см}$) для спокойной атмосферы. При этом радиус проводящего канала значительно больше, чем на стадии возвратного удара, и из-за конвективного переноса в воздухе от него отрываются языки и струи. Однако электрический ток под действием внешнего электрического поля стабилизирует проводящий канал и поддерживает в нем подходящую проводимость и высокую температуру по сравнению с температурой окружающего возду-

ха. Отметим, что плотность электронов в проводящем канале на этой стадии превышает соответствующую величину для тлеющего разряда.

На основе данных рис. 6 можно также оценить температуру плазмы проводящего канала молнии перед прохождением основного импульса электрического тока. Длительность этого импульса относительно мала, и за время импульса ядра атомов и ионов не успевают заметно сдвинуться. Плотность атомов воздуха не изменяется. Для плазмы, характеристики которой представлены на рис. 6 энергия, вложенная в плазму, ведет к росту давления и температуры примерно в 8 раз. Соответственно, температура плазмы перед тем, как в нее вкладывается энергия электрического импульса, т.е. после прохождения лидера, составляет примерно 4 кК. Таким образом, использование экспериментальных данных для анализ равновесного атмосферного воздуха позволяет восстановить числовые параметры плазмы проводящего канала молнии.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Развитие компьютерной техники создает новые условия для решения физических задач, что приводит к переносу основной нагрузки с самого вычисления на алгоритм и точность расчета. В данной работе представлен алгоритм анализа диссоциативного и ионизационного равновесий в воздухе как двухкомпонентной молекулярной системы при давлении порядка атмосферного. В этом случае с точностью лучше 10 % можно считать, что атомные частицы, участвующие в равновесии, находятся в основном электронном состоянии.

При наличии термодинамического равновесия в газовой или плазменной системе ее параметры могут быть выражены через давление и температуру. В данной работе рассмотрено поведение плазмы проводящего канала молнии как плазменного шнура, через который протекает электрический ток. В процессе эволюции в этой плазме более или менее поддерживается термодинамическое равновесие за исключением начальных стадий создания проводящего канала в результате распространения ступенчатого лидера.

Анализ экспериментальных данных с позиций равновесного возбужденного воздуха позволяет понять отдельные аспекты молнии как сложного физического явления. Получено, что после прохождения ступенчатого лидера плазма проводящего канала молнии, остающаяся позади него, должна поддерживаться внешним электрическим полем. Далее, релаксация плазмы проводящего канала молнии на

первой стадии возвратного удара после прохождения основного электрического тока молнии происходит в результате расширения плазмы, что соответствует релаксации давления. Далее релаксация температуры плазмы развивается за счет переноса тепла и излучения.

Молния — сложное физическое явление, свойства которого на каждой стадии своего развития зависят от разных факторов. Одной из особенностей молнии является повторение вспышек молнии с прохождением импульса электрического тока по одному и тому же проводящему каналу. Как следует из рис. 5, это возможно в результате перераспределения зарядов на нижнем краю облака при большом размере облака. Для этого необходимо отсутствие полной релаксации плазмы проводящего канала после возвратного удара, так что в промежутке времени между соседними вспышками проводящий канал поддерживается слабым электрическим током под действием внешнего электрического поля.

Отметим, что анализ свойств молнии с использованием экспериментальных данных проводится на основе простой модели, в которой проводящий канал молнии представляет собой шнур с более или менее однородной плазмой внутри него, тогда как за пределами шнура находится холодный воздух. Радиус шнура и параметры плазмы внутри него изменяются в процессе развития молнии. Теоретические модели описания отдельных стадий развития молнии используют другой подход. В основе этих моделей берутся условия, которые более или менее соответствуют реальным, и в рамках этих условий подробно исследуются свойства плазмы, включая их радиальное распределение в процессе эволюции плазмы. Как видно, эти подходы для анализа плазмы проводящего канала молнии дополняют друг друга. Добавим к этому, что представленные выше числовые параметры плазмы проводящего канала относятся к молнии средней интенсивности в соответствии с [17, 41].

ЛИТЕРАТУРА

1. M. H. Saha, Proc. Roy. Soc. A **99**, 135 (1921).
2. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, т. 1, Москва, Наука (1976).
3. N. L. Aleksandrov, E. M. Bazelyan, I. V. Kochevov, and N. A. Dyatko, J. Phys. D: Appl. Phys. **30**, 1616 (1997).
4. N. A. Popov, Plasma Phys. Rep. **29**, 695 (2003).

5. А. С. Предводителей, Е. В. Ступоченко, А. С. Плешанов и др., *Таблицы термодинамических функций воздуха* Москва, Изд-во АН СССР (1959).
6. Н. М. Кузнецов, *Термодинамические функции и адиабаты ударных волн воздуха при высоких температурах*, Москва, Машиностроение (1965).
7. И. В. Авилова, Л. М. Биберман, В. С. Воробьев и др., *Оптические свойства горячего воздуха*, Москва, Наука (1970).
8. *Термодинамические свойства индивидуальных веществ*. Справочник под ред. В. П. Глушко, Москва, Наука (1978–1983).
9. В. В. Kadomtsev and A. V. Nedospasov, *J. Nucl. Energy* **C1**, 230 (1960).
10. А. В. Недоспасов, *УФН* **116**, 643 (1975).
11. A. A. Radzig and B. M. Smirnov, *Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions*, Berlin, Springer (1985).
12. B. M. Smirnov, *Plasma Processes and Plasma Kinetics*, Berlin, Wiley (2007).
13. М. Ф. Жуков, В. Я. Смоляков, Б. А. Урюков, *Электродуговые нагреватели газа (плазмотроны)*, Москва, Наука (1973).
14. Э. И. Асиновский, А. В. Кириллин, В. Л. Низовский, *Стабилизированные электрические дуги и их применение в теплофизическом эксперименте*, Москва, Физматлит (2008).
15. Б. М. Смирнов, *Атомные столкновения и элементарные процессы в плазме*, Москва, Атомиздат (1968).
16. В. Н. Кондратьев, Е. Е. Никитин, *Кинетика и механизмы газофазных реакций*, Москва, Наука (1974).
17. M. A. Uman, *Lightning*, New York, McGraw Hill (1969).
18. M. A. Uman, *The Lightning Discharge*, New York, Academ. Press (1987).
19. E. M. Bazelyan and Yu. P. Raizer, *Lightning Physics and Lightning Protection*, Bristol, IOP Publ. (2000).
20. V. A. Rakov and M. A. Uman, *Lightning, Physics and Effects*, Cambridge, Cambridge Univ. Press (2003).
21. Ю. П. Райзер, *Физика газового разряда*, Долгопрудный, Интеллект (2009).
22. V. Cooray, *An Introduction to Lightning*, Dordrecht, Springer (2015).
23. V. A. Rakov, *Fundamental of Lightning*, Cambridge, Cambridge Univ. Press (2016).
24. V. Mazur, *Principles of Lightning Physics*, Bristol, IOP Publ. (2016).
25. Я. И. Френкель, *Теория явления атмосферного электричества*, Ленинград, ГИТТЛ (1949).
26. Б. М. Смирнов, *ЖЭТФ* **163**, 873 (2023).
27. K. Berger, *The Earth Flash*, in *Lightning*, ed. by R. H. Golde, London, Acad. Press (1977), p. 119.
28. G. A. Bazilevskaya, M. B. Krainev, and V. S. Makhmutov, *J. Atmos. Sol.-Ter. Phys.* **62**, 1577 (2000).
29. G. A. Bazilevskaya, *Space Sci. Rev.* **94**, 25 (2000).
30. J. R. Dwyer and M. Uman, *Phys. Rep.* **534**, 147 (2014).
31. A. H. Paxton, R. I. Gardner, and L. Baker, *Phys. Fluids* **29**, 2736 (1986).
32. N. L. Aleksandrov, E. M. Bazelyan, and M. N. Shneider, *Plasma Phys. Rep.* **26**, 893 (2000).
33. V. Cooray, M. Rubinstein, and F. Rahidi, *Atmosphere* **13**, 593 (2022).
34. R. E. Orville, *J. Atm. Sci.* **25**, 852 (1968).
35. N. D'Angelo, *Phys. Rev.* **121**, 501 (1961).
36. E. Hinnov and J. G. Hirschberger, *Phys. Rev.* **125**, 792 (1962).
37. Ch. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, New York, Wiley (1986).
38. L. Spitzer, *Physics of Fully Ionized Gases*, New York, Wiley (1962).
39. L. G. H. Huxley, *Austral. J. Phys.* **10**, 240 (1957).
40. L. S. Frost and A. V. Phelps, *Phys. Rev.* **127**, 1621 (1962).
41. M. A. Uman, *About Lightning*, New York, Dover (1986).

ОСОБЕННОСТИ РАБОТЫ ПРОВОЛОЧНЫХ Х-ПИНЧЕЙ НА КОМПАКТНОМ СИЛЬНОТОЧНОМ ГЕНЕРАТОРЕ КИНГ

И. Н. Тиликин^{}, Т. А. Шелковенко, А. Р. Мингалеев, А. А. Мингалеев, А. Е. Тер-Оганесян,
С. А. Пикуз*

*Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 13 марта 2024 г.,
после переработки 17 мая 2024 г.
Принята к публикации 17 мая 2024 г.

Представлены экспериментальные исследования 4-проволочных Х-пинчей на модернизированном генераторе КИНГ, состоящем из четырех низкоиндуктивных конденсаторов, с максимумом тока 160–250 кА, временем нарастания тока 150–300 нс при зарядном напряжении 45 кВ. Продемонстрирована возможность использования генератора в качестве источника мягкого рентгеновского излучения при использовании стандартных Х-пинчей проволочек из Al, Cu или Mo диаметром 25 мкм. Показано, что модернизация привела к увеличению индуктивности, но не к ухудшению параметров Х-пинча. Это привело к возможности применения данного генератора для питания стандартных Х-пинчей и их использования в качестве источников излучения для точечной проекционной радиографии с пространственным разрешением порядка 13–23 мкм.

DOI: 10.31857/S0044451024110166

1. ВВЕДЕНИЕ

Х-пинчи различных конфигураций являются прекрасными источниками как рентгеновского [1–6], так и УФ-излучения [7, 8]. Подобные источники излучения являются одними из самых мощных малых источников мягкого (энергия квантов менее 5 кэВ) рентгеновского излучения с потоком 10^{15} – 10^{16} Вт/см² [9, 10]. Горячая точка, образующаяся при взрыве Х-пинча, имеет микронный размер и пикосекундную длительность [11–13]. Мягкое рентгеновское излучение (МРИ) из горячей точки позволяет использовать его для исследования большого числа физических [1, 5, 6, 10] и биологических [5, 14] объектов. Помимо этого, Х-пинч может быть использован в качестве интенсивного источника жесткого рентгеновского излучения [15, 16]. Большая часть этого излучения генерируется пучками ускоренных электронов, образующихся в процессе и сразу после взрыва горячей точки, взаимодействующими с плотной плазмой рядом с ней. Это излучение имеет энергию более 5 кэВ (часто до многих десятков кэВ) и

размер источника 40–200 мкм. Многочисленные эксперименты показывают, что для корректной работы стандартных Х-пинчей необходимо обеспечить ток порядка 50–100 кА и время нарастания около 50 нс [17, 18]. При токе свыше 200 кА широко исследовались гибридные Х-пинчи [19], представляющие собой короткую проволочку (длиной около 2 мм), помещенную между тугоплавкими коническими электродами, изготавливаемые из W с небольшой примесью Cu. При использовании подобной нагрузки наблюдается образование горячих точек [12]. Одним из наиболее важных факторов, влияющих на процесс образования горячих точек, является скорость нарастания тока. Как показало множество экспериментов, образование горячих точек возможно, только если скорость нарастания тока превышает значение 1 кА/нс [11]. В последнее время набирают популярность малогабаритные генераторы тока, построенные с использованием конденсаторов малой индуктивности, разряжающимися непосредственно через нагрузку, а не по традиционной схеме Маркса с использованием формирующей линии [12, 20, 21]. В данной схеме напряжение, обеспечиваемое генератором, намного меньше по сравнению с генератором Маркса, что

^{*} E-mail: ivan.tilikin@gmail.com

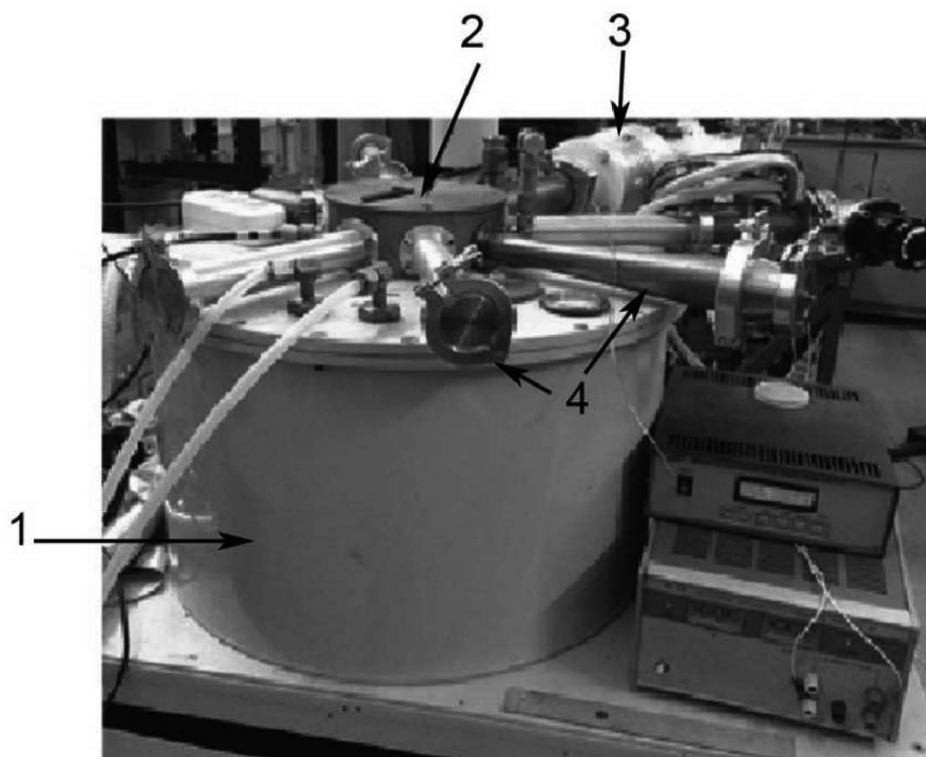


Рис. 1. Фотография внешнего вида генератора КИНГ: 1 — бак с конденсаторно-коммутаторными сборками, 2 — вакуумная камера, 3 — вакуумный насос, 4 — диагностические каналы

может не только влиять на эффективность формирования горячих точек, но и ограничить генерацию жесткого рентгеновского излучения. Низкое напряжение генератора ограничивает индуктивность используемых конфигураций Х-пинчей, что на практике означает очень близкое расстояние между путями обратного тока, снижающее доступ к диагностике. Одним из генераторов, построенных по схеме с использованием конденсаторно-коммутаторныхборок, был генератор МИНИ, имеющий максимум тока 250 кА, время нарастания тока не превышающее 220 нс, а напряжение на выходе 40 кВ [12]. Генератор прекрасно работал с Х-пинчами в качестве нагрузки. Однако конструкция генератора приводила к выходу из строя конденсаторов. По аналогичной схеме в Томском институте сильноточной электроники (ИСЭ СО РАН) был разработан генератор КИНГ [22, 23], имеющий максимум тока 200 кА и время нарастания тока около 200 нс при напряжении 45 кВ. Генератор КИНГ проектировался для работы со стандартными Х-пинчами как более надежная модификация генератора МИНИ [12]. Оба генератора имеют практически одинаковое устройство, но генератор КИНГ, не обладая такими выдающимися выходными параметрами и размером, является более

надежной и достаточно компактной установкой, используемой для исследовательских целей, в том числе для работы с нагрузкой в виде различных конфигураций Х-пинчей [24, 25]. Основной целью данных экспериментов является также изучение возможности применения данного низковольтного генератора питания стандартных Х-пинчей и их использования в качестве источника МРИ для проекционной рентгенографии различных объектов с высоким пространственным и временным разрешением.

2. ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Основной конструктивной особенностью генератора КИНГ является использование конденсаторов марки НСЕІсар 50–0.25 М, совмещенных с разрядниками, подключенными низкоиндуктивным подводом к нагрузке. Небольшие размеры вакуумной камеры позволяют быстро откачивать ее до рабочего давления ниже, чем $5 \cdot 10^{-4}$ Торр. При этом диаметр самой установки составляет всего 60 см. В дополнение к этому необходимо подключение генератора к вакуумной системе, системе накачки воздуха и к блоку питания. Внешний вид генератора представлен на рис. 1.

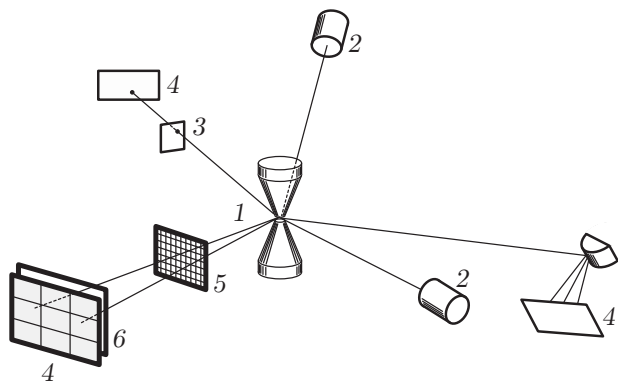


Рис. 2. Схема используемых методов диагностики: 1 — нагрузка генератора, 2 — алмазные фотодетекторы, 3 — камера-обскура, 4 — изобразительная пластина или фотопленка, 5 — тест-объект, 6 — фильтры, 7 — кристалл CsAP-спектрографа

Генератор КИНГ разрабатывался для питания X-пинчей и их использования в качестве источника мягкого рентгеновского излучения. Генератор имеет 8 диагностических каналов 4 (рис. 1). Все диагностические каналы сделаны таким образом, чтобы отводить излучение от источника для его использования. В сторону каждого канала сделано отверстие 8 мм (описано ниже). Подобная геометрия выходной части усложняет работу по диагностике источника излучения. Многочисленные эксперименты по диагностике источника излучения X-пинча показали, что в большинстве выстрелов образуется горячая точка или несколько ярких точек [12, 13]. Также на генераторе проводились серии экспериментов по исследованию УФ-излучения с поверхности взрывающихся фольг [7, 8, 25]. Данные эксперименты показали существенные недостатки в выходной части генератора, усложняющие работу по исследованию плазменного объекта. В связи с этим возникла необходимость модернизации выходной части генератора КИНГ. Генератор КИНГ оснащен широким спектром различных диагностических устройств. В каждом выстреле контролируется зарядное напряжение. Ток, протекающий через нагрузку, контролируется с помощью пояса Роговского. Помимо измерения электрических сигналов, использовались различные способы диагностики параметров источника излучения. Схема расположения диагностических устройств представлена на рис. 2.

Для регистрации длительности и интенсивности рентгеновского излучения с энергией фотонов от 10 эВ до 10 кэВ использовались калиброванные алмазные фотодетекторы 2 (PCD) [26] (рис. 2). Регистрация электрических сигналов проводилась на ос-

циллографы марки Tektronix с полосой пропускания 1 ГГц. Временное разрешение фотодетекторов с подводными кабелями составляет при использовании данных осциллографов около 1 нс. Для визуализации источников излучения использовалась камера-обскура 3 с отверстием от 30 мкм до 200 мкм (рис. 2). Для определения размера источника излучения использовалась схема проекционной рентгенографии для изображения металлических сеток в виде тест-объектов 5 (рис. 2). Для регистрации рентгеновского и УФ-излучения используются изобразительные пластины марки Fuji BAS TR или рентгеновские фотопленки марки Kodak DR-50. Для регистрации излученной энергии в различных спектральных диапазонах использовался фильтр из Ве толщиной 7 мкм, пропускающий фотоны с энергией более 700 эВ, из майлара толщиной 8 мкм, пропускающий фотоны с энергией выше 1 кэВ, и фильтр из Ti толщиной 12.5 мкм, пропускающей излучение от 2.5 до 5 кэВ, наиболее характерный участок спектра для мягкого рентгеновского излучения из горячей точки X-пинча. Для определения параметров плазмы источника излучения на генераторе КИНГ установлен спектрограф 7 с выпуклым кристаллом CsAP (рис. 2) с периодом кристаллической решетки 26.6 Å. Радиусом кривизны кристалла составляет 350 мм. На рис. 3 приведена схема получения спектра. Для регистрации спектра используются изобразительные пластины или рентгеновская фотопленка. Конструкция спектрографа позволяет изменять в широких пределах угол падения излучения на поверхность кристалла, который подбирается согласно формуле Брэгга – Вульфа: $2d \sin \theta = m\lambda$, где θ — угол отражения, d — межплоскостное расстояние кристалла, λ — длина волны излучения, m — порядок отражения. На входном отверстии спектрографа устанавливается тонкий алюминизированный фильтр (толщина Al < 1 мкм), отсекающий фоновую засветку, но несильно уменьшающий интенсивность излучения.

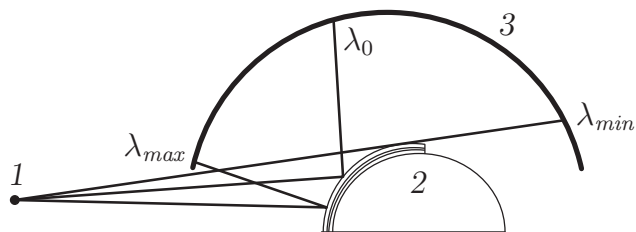


Рис. 3. Схема выпуклого спектрографа, установленного на генераторе КИНГ: 1 — источник излучения, 2 — выпуклый кристалл CsAP, 3 — изобразительная пластина для регистрации спектра

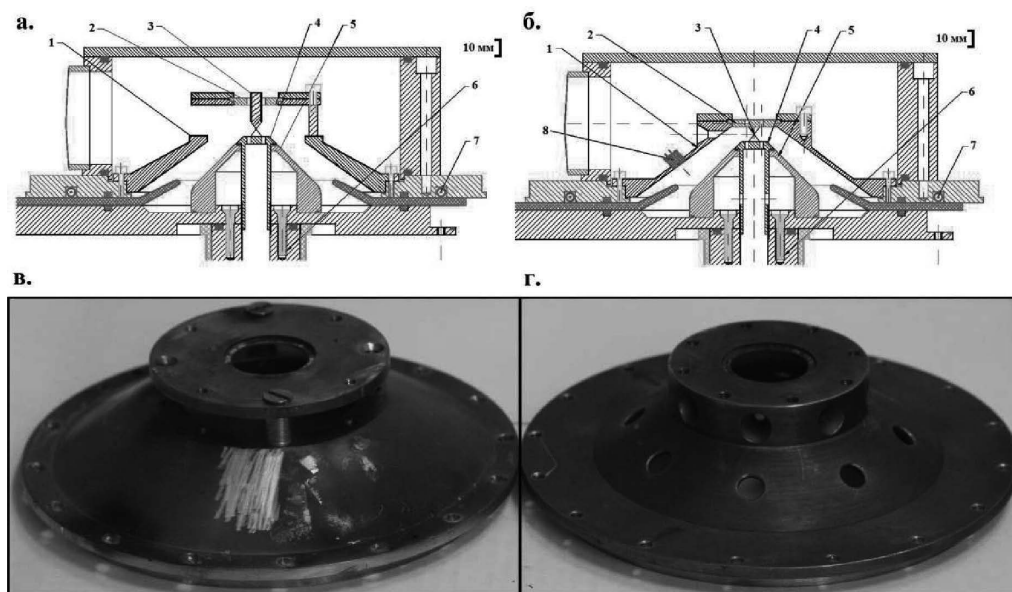


Рис. 4. а, б — Схемы выходной части генератора КИНГ. в, г — Фотографии обратного токопровода: исходной (б, г) и модернизированной (а, в). 1 — обратный токопровод, 2 — сменная часть обратного токопровода, 3 — нагрузка, 4 — сменная часть высоковольтного электрода, 5 — высоковольтный электрод, 6 — стакан для сбора грузов для натяжения стандартного Х-пинча, 7 — пояс Роговского, 8 — дифференциальный датчик тока («петля»)

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Как уже было сказано ранее, выходная часть генератора КИНГ имела несколько отверстий для вывода излучения диаметром 8 мм и максимальная длина нагрузки была ограничена 8 мм, что не позволяло использовать нагрузки большей длины или исследовать источники излучения больших размеров (см. рис. 3б, г). В частности, это ограничивало возможности по исследованию взрыва фольги на подобном генераторе. Для большего удобства использования диагностических устройств конструкция выходной части генератора была модернизирована. На рис. 4 приведены схемы выходной части генератора и фотографии обратного токопровода.

В экспериментах с новой выходной частью использовалось от 2 до 4 стержней обратного токопровода. Использование подобной схемы позволило изменять длину нагрузки в широком диапазоне (до 20 мм) и исследовать излучение с поверхности больших пространственных объектов [27, 28]. Новая конструкция выходной части генератора открывает больше возможностей для исследования Х-пинчей различных конфигураций на генераторе КИНГ. Были проведены серии экспериментов с различными проволочками в гибридном и стандартном 4-проволочном Х-пинче. В таблице приведена сводная информация о наличии мягкого рентгеновского излучения с энергией квантов более 1 кэВ при исполь-

зовании различных проволочек в нагрузке. Видно, что излучение регистрировалось во многих выстрелах. Однако было замечено, что в разных выстрелах наблюдается ток различной формы, при этом оказывается различная скорость нарастания тока. Как показали эксперименты, гибридные Х-пинчи работают гораздо лучше, чем стандартные проволоочные Х-пинчи, в широком диапазоне тока и скорости нарастания тока. Однако ранее было известно, что стандартные Х-пинчи более требовательны к параметрам тока. Генератор КИНГ после модернизации позволяет исследовать влияние параметров тока на процесс взрыва стандартных Х-пинчей.

На рис. 5 приведены характерные формы сигналов, которые регистрировались на генераторе КИНГ после модернизации выходной части при взрыве стандартных 4-проволочных Х-пинчей с проволочками из Cu толщиной 25 мкм. При этом приведены результаты тех выстрелов, при которых регистрировалось мягкое рентгеновское излучения за фильтром из Be толщиной 7 мкм ($E\gamma > 700$ эВ) и майлара толщиной 8 мкм ($E\gamma > 1$ кэВ). Видно, что максимум тока составляет от 160 до 230 кА. При этом время нарастания тока до максимума изменяется в пределах от 150 до 300 нс, что соответствует средней скорости нарастания тока до максимума от 0.7 до 1.2 кА/нс. Можно отметить характерные особенности формы тока, из которых следует, что иногда конденсаторы срабатывают не совсем синхрон-

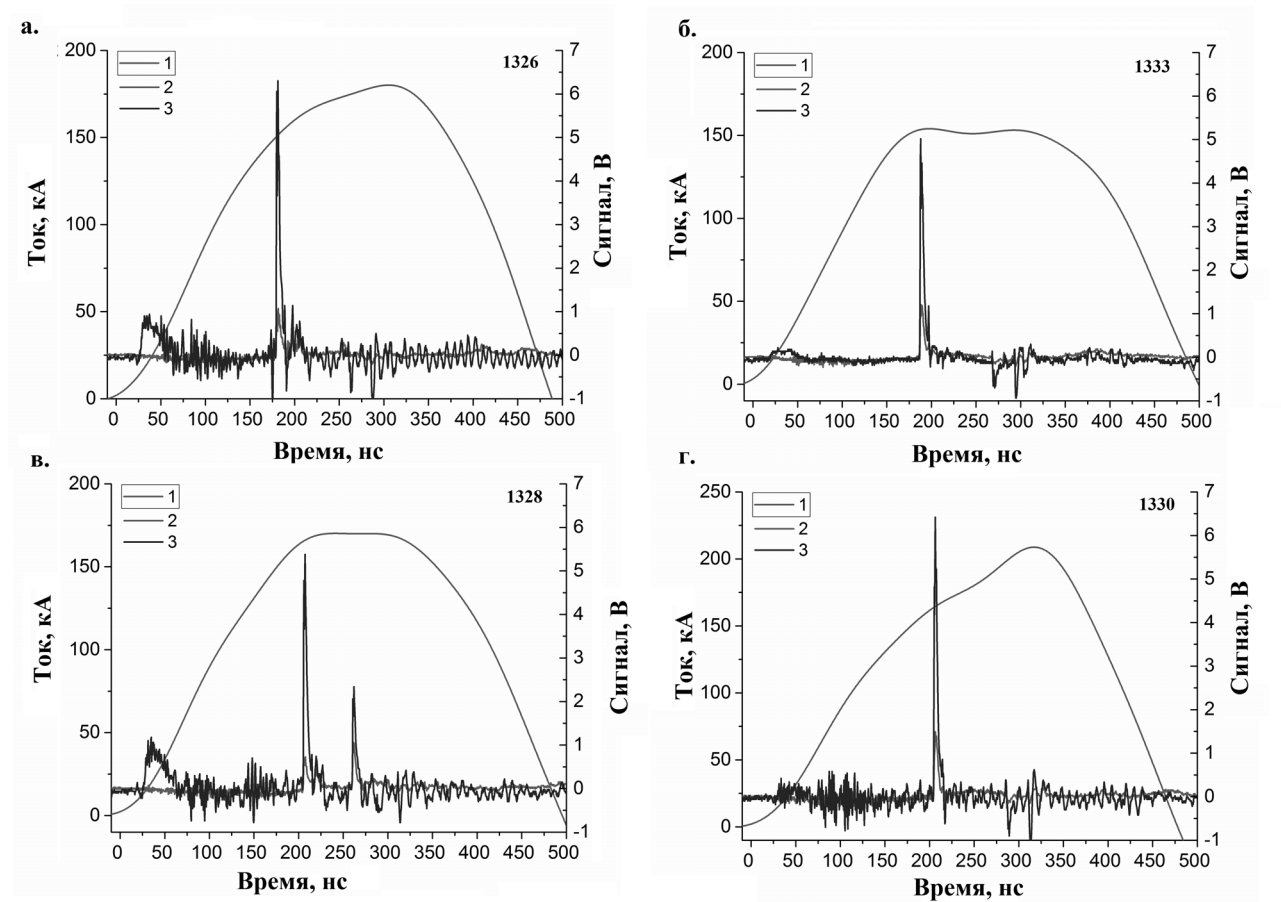


Рис. 5. Осциллограммы тока (1) и сигналы, зарегистрированные с помощью алмазных фотодетекторов за фильтром из майлара толщиной 8 мкм (2) и Ве-фильтром толщиной 7 мкм (3) при взрыве 4-проволочного X-пинча с проволочками из Cu толщиной 25 мкм. Приведены различные характерные формы сигналов (а,б,в,г), регистрируемые на генераторе КИНГ

Таблица. Процент выстрелов с наличием мягкого рентгеновского излучения с энергией более 1 кэВ при взрыве гибридных (ГХП) и стандартных 4-проволочных X-пинчей (СХП) на генераторе КИНГ			
X-пинч	Материал	Количество выстрелов	Процент выстрелов
СХП	Mo	4	50 %
	Al	6	30 %
	Cu	8	50 %
ГХП	Mo	30	90 %
	Al	10	100 %
	Cu	8	100 %

но. При этом иногда это влечет увеличение максимума тока (рис. 5б), а иногда приводит к более быстрому нарастанию тока, а потом ток остается постоянным (рис. 5б,в). В некоторых выстрелах наблюдается стандартная форма тока близкая к синусоидальной, но при этом могут различаться максимумы тока при одинаковой длительности (рис. 5а,в).

Исследования показывают, что если скорость нарастания тока оказывается более 1 кА/нс к моменту сжатия плазмы, то происходит образование ярких или горячих точек. Отдельно в экспериментах было исследовано влияние параметров стержней обратного токопровода на процесс взрыва X-пинча. Количество стержней изменялось от 2 до 4 штук. Длина стержней изменялась от 1 до 4 см. Выполнено по 4 выстрела в каждой из конфигураций. При этом параметры тока, напряжения и времени нарастания тока оставались в пределах стандартных отклонений. Генерация МРИ происходила также примерно в 50 % случаев, как и в остальных экспериментах (см.таблицу). Таким образом, показано, что изменение этих параметров не оказывает существенного влияния на процесс образования источников МРИ при взрыве X-пинчей. Возникающие источники излучения от горячих или ярких точек были исследованы на возможность их использования. Одним из наиболее важных параметров является размер излучающей области. Наиболее простым и действен-

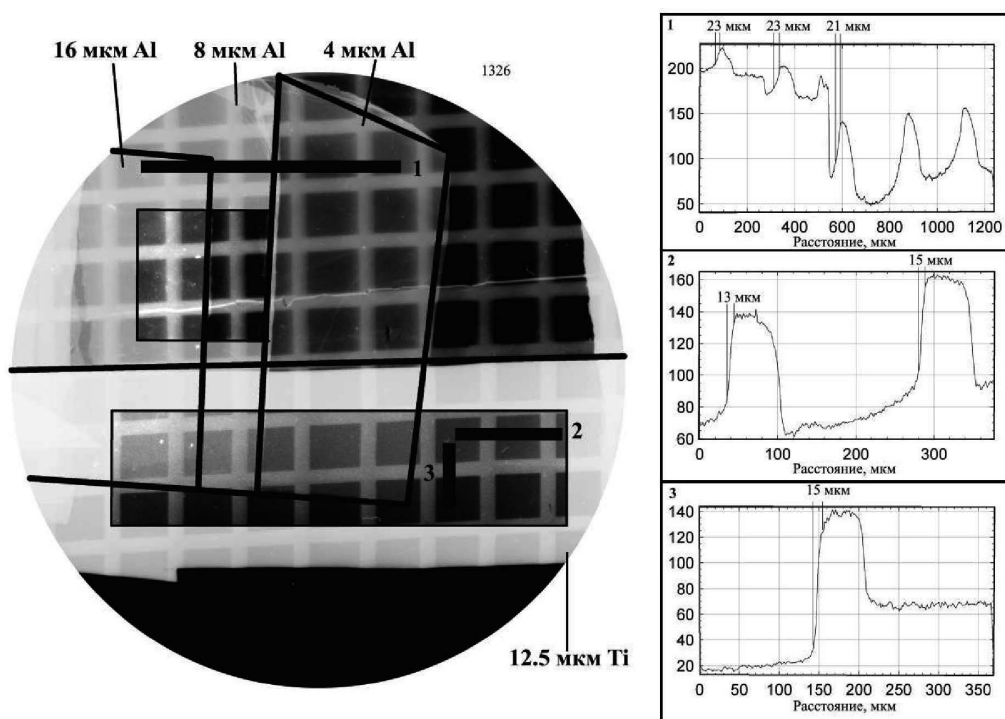


Рис. 6. Изображение медной сетки от излучения 4-проволочного X-пинча с проволоками из Cu толщиной 25 мкм, зарегистрированное за различными фильтрами, и прописи почернений за Ti-фильтром толщиной 12.5 мкм (1, 2) и за Al-фильтрами толщиной 4, 8 и 16 мкм (3). На выделенных фрагментах дополнительно изменен контраст для наглядности. Увеличение 1 : 10

ным способом определения размера излучающей области в диапазоне МРИ является определение размера по размытию края изображения в схеме проекционной рентгенографии. Для этого необходимо получить изображение тест-объекта. На рис. 6 приведено изображение медной сетки с шагом 100 мкм, полученное от излучения 4-проволочного X-пинча с проволоками из Cu толщиной 25 мкм. Изображение получено за различными фильтрами, что позволяет судить о пространственном разрешении в различных спектральных диапазонах.

На прописях почернений пластин приведены размеры размытия края изображения, что эквивалентно пространственному разрешению. Видно, что разрешение составляет от 13 до 23 мкм (рис. 6, 1–3) в различных спектральных диапазонах и в различных направлениях: поперечном и продольном относительно катод-анодного направления. При этом наиболее маленький размер 12 мкм получается за Ti-фильтром, что соответствует энергии фотонов от 2.5 до 5 кэВ, а значит, в экспериментах наблюдается горячая точка. Данный размер наблюдается в поперечном относительно катод-анодного направления, что характерно для работы X-пинчей. Большой разницы в пространственном разрешении в поперечном и продольном направлениях зарегистрировано

не было, что отличает СХП от ГХП, где наблюдалась разница в 2.5–3 раза. На рис. 7 приведен увеличенный фрагмент осциллограммы при взрыве 4-проволочного X-пинча с проволоками из Cu толщиной 25 мкм. На рис. 5б приведен полный сигнал от того же выстрела.

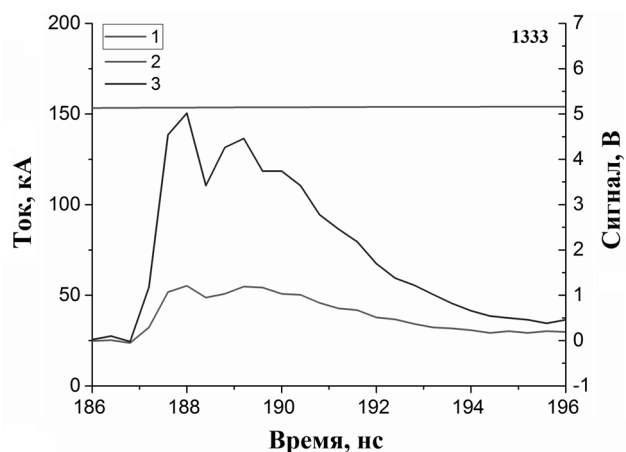


Рис. 7. Увеличенный фрагмент осциллограммы (полный фрагмента на рис. 5б) тока (1) и сигналы, зарегистрированные с помощью алмазных фотодетекторов за фильтром из майлара толщиной 8 мкм (2) и Be-фильтром толщиной 7 мкм (3) при взрыве 4-проволочного X-пинча с проволокой из Cu толщиной 25 мкм

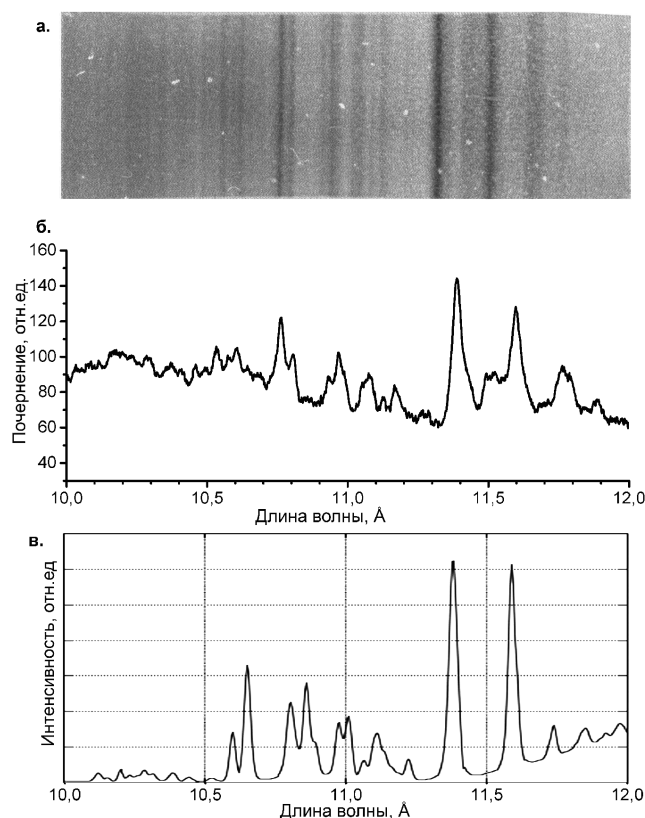


Рис. 8. *а* — Не-подобный спектр излучения Cu, зарегистрированный с помощью выпуклого кристалла CsAP, при взрыве 4-проволочного X-пинча на генераторе КИНГ. *б* — Пропись спектра с восстановленными длинами волн и расчетный спектр излучения Cu-плазмы с электронной температурой плазмы 150 эВ и электронной плотностью $5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$

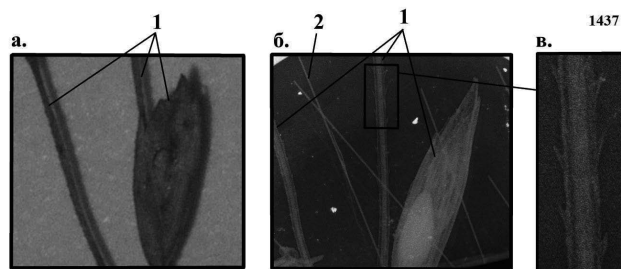


Рис. 9. Фотография (*а*), радиография (*б*) и увеличенный фрагмент радиографии (*в*) биологических тест-объектов: 1 — стебель и соцветие, 2 — углеродная нить толщиной 10 мкм. Радиография получена за фильтром из Ti толщиной 12.5 мкм при взрыве 4-проволочного X-пинча с проволочками из Cu толщиной 25 мкм

Видно, что общая длительность излучения при этом не превышает 4 нс, при этом видна структура этого излучения, состоящая из нескольких вспышек, каждая из которых не более 1 нс, что может говорить о многократном пинчевании. Временное раз-

решение регистрирующей аппаратуры не превышает 1 нс, что говорит о том, что в данном случае, возможно, имеют место более узкие пики рентгеновского излучения. На подобных компактных генераторах впервые зарегистрированы спектры излучения, позволяющие определить параметры плазмы. На рис. 8*а* приведен характерный спектр, зарегистрированный при взрыве 4-проволочного X-пинча с проволочками из Cu толщиной 25 мкм. Настройка угла спектрографа позволяет регистрировать Ne-подобный спектр Cu. На рис. 8*б* приведен график почернений пленки с проставленными длинами волн. Восстановление длин волн на спектре производится согласно первичной настройке, а далее точная привязка происходит по наиболее интенсивным линиям. В данном спектральном диапазоне спектр излучения Cu-плазмы можно рассчитать, используя программу PrismSPECT [29]. Спектры рассчитываются для различных значений плазменной температуры и электронной плотности при заданном размере источника, определяемым из рентгенограмм тест-объектов, как было показано выше. На рис. 8*в* приведен восстановленный спектр, наиболее подходящий под экспериментальный, который соответствует электронной температуре плазмы 150 эВ и электронной плотности $5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$. Таким образом, при взрыве стандартных X-пинчей наблюдается тепловое излучение от ярких точек плазмы.

Подобные источники МРИ прекрасно подходят для получения изображений различных биологических и плазменных объектов с высоким пространственным разрешением. А модернизированная конструкция выходной части генератора КИНГ облегчает работу по выводу излучения на исследуемый объект. В качестве примера получено изображение биологического объекта. На рис. 9 приведена фотография (рис. 9*а*) и радиография (рис. 9*б*) соцветия и стебелька. На рис. 9*в* приведен увеличенный фрагмент стебелька, на котором прекрасно видна внутренняя структура и мелкие детали биологического объекта, что говорит о высоком качестве источника излучения и возможности использования подобного источника излучения для точечной проекционной рентгенографии.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментальные исследования гибридных X-пинчей на модифицированном генераторе КИНГ показали, что изменение выходной части генератора привело к увеличению индуктивности нагрузки, что, в свою очередь, привело к увеличению времени нарастания тока. Однако это практически не

сказалось на гибридных Х-пинчах. Стандартные Х-пинчи стали работать немного хуже, но при этом в большинстве выстрелов образуется источник мягкого рентгеновского излучения. Размер источника излучения составляет 13–23 мкм в спектральном диапазоне 2.5–5 кэВ. При этом длительность излучения не превышает 4 нс. Показано, что наиболее важным параметром оказывается скорость нарастания тока до момента образования яркой точки. При этом для образования ярких точек значение производной тока (dI/dt) выше 1 кА/нс не критичен. Яркие точки в Х-пинчах наблюдались при $dI/dt > 0.8$ кА/нс. Проведены спектральные исследования параметров плазмы на подобных генераторах. Температура плазмы составляет 150 эВ, при этом электронная плотность равна $5 \cdot 10^{20}$ см⁻³. Таким образом, генератор может быть использован как для использования в качестве источника для проекционной точечной рентгенографии, так и для исследования различных плазменных источников. При этом увеличенное поле зрения и возможность исследовать объекты размером до 4 см открывают перспективы по исследованию различных плазменных объектов, например фольг или взрывающихся проволок.

Финансирование. Работа поддержана Российским научным фондом (грант № 19-79-30086).

ЛИТЕРАТУРА

1. T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz, A. R. Mingaleev, and D. A. Hammer, *Studies of Plasma Formation from Exploding Wires and Multiwire Arrays Using X-ray Backlighting*, Rev. Sci. Instrum. **70**, 667 (1999).
2. S. V. Lebedev, F. N. Beg, S. N. Bland et al., *X-ray Backlighting of Wire Array Z-pinch Implosions Using X-pinch*, Rev. Sci. Instrum. **72**, 671 (2001).
3. T. A. Shelkovenko, D. B. Sinars, S. A. Pikuz, and D. A. Hammer, *Radiographic and Spectroscopic Studies of X-pinch Plasma Implosion Dynamics and X-ray Burst Emission Characteristics*, Phys. Plasmas **8**, 1305 (2001).
4. T. Zhao, X. Zou, X. Wang et al., *X-Ray Backlighting of Developments of X-pinch and Wire-Array Z-pinch Using an X-pinch*, IEEE Trans. on Plasma Sci. **38**, 646 (2010).
5. X. Zhu, X. Zou, R. Zhang et al., *X-Ray Backlighting of the Initial Stage of Single-and Multiwire Z-Pinch*, IEEE Trans. on Plasma Sci. **40**, 3329 (2012).
6. T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz, and D. A. Hammer, *A Review of Projection Radiography of Plasma and Biological Objects in X-pinch Radiation*, Plasma Phys. Rep. **42**, 226 (2016).
7. S. A. Pikuz, T. A. Shelkovenko, I. N. Tilikin et al., *Study of SXR/EUV Radiation of Exploded Foils and Wires with Spectral, Spatial and Temporal Resolution Simultaneously on KING Electric Discharge Facility*, Plasma Sources Sci. and Technol. **30**, 115012 (2021).
8. T. A. Shelkovenko, I. N. Tilikin, E. A. Bolkhovitinov et al., *A Study of the Ultraviolet Radiation of Hybrid X-pinch*, Plasma Phys. Rep. **46**, 10 (2020).
9. S. A. Pikuz, D. B. Sinars, T. A. Shelkovenko et al., *High Energy Density Z-pinch Plasma Conditions with Picosecond Time Resolution*, Phys. Rev. Lett. **89**, 035003 (2002).
10. S. V. Lebedev, F. N. Beg, S. N. Bland et al., *Effect of Core-Corona Plasma Structure on Seeding of Instabilities in Wire Array Z Pinches*, Phys. Rev. Lett. **85**, 98 (2000).
11. T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz, J. D. Douglass et al., *Multiwire X-pinch at 1-MA Current on the COBRA Pulsed-Power Generator*, IEEE Trans. on Plasma Sci. **34**, 2336 (2006).
12. G. A. Mesyats, T. A. Shelkovenko, G. V. Ivanenkov et al., *X-pinch Source of Subnanosecond Soft X-ray Pulses Based on Small-sized Low-inductance Current Generator*, J. of Exp. and Theor. Phys. **111**, 363 (2010).
13. S. A. Pikuz, T. A. Shelkovenko, and D. A. Hammer *X-pinch. Part I*, Plasma Phys. Rep. **41**, 291 (2015).
14. T. Shelkovenko, S. Pikuz, and D. Hammer, *X-pinch as Broadband Sources of X-rays for Radiography*, J. of Biomedical Sci. and Engineering **8**, 747 (2015).
15. T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz, A. R. Mingaleev et al., *Accelerated Electrons and Hard X-ray Emission from X-pinch*, Plasma Phys. Rep. **34**, 754 (2008).
16. T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz, C. L. Hoyt et al., *A Source of Hard X-ray Radiation Based on Hybrid X-Pinch*, Phys. Plasmas **23**, 10 (2016).
17. С. М. Захаров, Г. В. Иваненков, А. А. Коломенский и др., *Проволочный Х-пинч в сильноточном диоде*, Письма в ЖТФ **8**, 1060 (1982).
18. T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz, I. N. Tilikin et al., *X-pinch X-ray Emission on a Portable Low-current, Fast Rise-time Generator*, J. of Appl. Phys. **124**, 8 (2018).
19. T. A. Shelkovenko, I. N. Tilikin, G. V. Ivanenkov et al., *Dynamics of hybrid X-pinch*, Plasma Phys. Rep. **41**, 52 (2015).

20. A. V. Kharlov, B. M. Kovalchuk, V. B. Zorin, *Compact High Current Generator for X-Ray Radiography*, Rev. Sci. Instr. **77**, 123501 (2006).
21. A. P. Artyomov, A. V. Fedyunin, S. A. Chaikovsky et al., *A Double-frame Nanosecond Soft X-ray Backlighting System Based on X-pinches*, Instr. and Exp. Tech. **56**, 66 (2013).
22. A. P. Artyomov, M. G. Bykova, S. A. Chaikovsky et al., *A Small-scale X-pinch-based Nanosecond Soft X-ray Pulse Radiograph*, Russ. Phys. J **56**, 66 (2012).
23. S. A. Pikuz, T. A. Shelkovenko, I. N. Tilikin et al., *Study of SXR/EUV Radiation of Exploded Foils and Wires with Spectral, Spatial and Temporal Resolution Simultaneously on KING Electric Discharge Facility*, Plasma Sources Sci. and Technol. **30**, 115012 (2021).
24. E. A. Bolkhovitinov, I. N. Tilikin, T. A. Shelkovenko et al., *Study of Hybrid X-pinch in the XUV and SXR Spectral Ranges*, J. of Phys.: Conf. Ser. **1094**, 012022 (2018).
25. E. A. Bolkhovitinov, I. N. Tilikin, T. A. Shelkovenko et al., *Study of VUV Radiation of Hybrid and Standard X-pinches on KING Electric Discharge Facility*, Plasma Sources Sci. and Technol. **29**, 025009 (2020).
26. D. B. Sinars, S. A. Pikuz, J. D. Douglass et al., *Bright Spots in 1 MA X-pinches as a Function of Wire Number and Material*, Phys. Plasmas **15**, 9 (2008).
27. I. N. Tilikin, T. A. Shelkovenko, S. A. Pikuz et al., *Exploding Foils with Artificial Structure as a Source of Ultraviolet Radiation*, J. of Appl. Phys. **134**, 3 (2023).
28. T. A. Shelkovenko, I. N. Tilikin, A. V. Oginov et al., *Methods of Controlled Formation of Instabilities During the Electrical Explosion of Thin Foils*, Matter and Radiation at Extremes **8**, 5 (2023).
29. <http://www.prism-cs.com/Software/PrismSpect/PrismSPECT.htm>

НИЗКОПороГОВЫЙ РАСПАД ОБЫКНОВЕННОЙ СВЧ-ВОЛНЫ В ПРИСУТСТВИИ КРУПНОМАСШТАБНЫХ КОГЕРЕНТНЫХ СТРУКТУР В РАЗРЕЖЕННОЙ ПЛАЗМЕ

А. Ю. Попов ^{а*}, Е. З. Гусаков ^а, А. А. Наговицын ^а, Л. В. Симончик ^б, М. С. Усачёнок ^б

^а Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук
194021, Санкт-Петербург, Россия

^б Институт физики им. Б. И. Степанова Национальной академии наук Беларуси
220072, Минск, Республика Беларусь

Поступила в редакцию 1 апреля 2024 г.,
после переработки 17 июня 2024 г.
Принята к публикации 17 июня 2024 г.

Исследован сценарий низкопорогового распада обыкновенной СВЧ-волны с частотой, соответствующей второй гармонике электронного циклотронного резонанса, приводящий к возбуждению двух электронных бернштейновских волн, двумерно-локализованных в крупномасштабной когерентной структуре в разреженной плазме. С использованием предложенной модели получены оценки для порога этого нелинейного явления на установках ASDEX-Upgrade и Wendelstein 7-X, а также в модельном эксперименте на линейной установке.

DOI: 10.31857/S0044451024110178

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время активно ведутся исследования низкопороговых нелинейных явлений при взаимодействии электромагнитного СВЧ-излучения большой мощности с плазмой в тороидальных установках магнитного удержания. Среди них — аномальное рассеяние волны накачки со смещением частоты сигнала рассеяния вниз и вверх относительно частоты генератора (гиротрона), которое наблюдалось на различных экспериментальных установках [1–4]. На первый взгляд, экспериментальное проявление этих эффектов противоречит теоретическим результатам, поскольку, согласно устоявшимся с 1990-х годов представлениям, пороги возбуждения нелинейных явлений в неоднородной плазме (в частности, в различных сценариях параметрической распадной неустойчивости СВЧ-волны) превышают 5 МВт [5]. Это значение, обусловленное большими конвективными потерями дочерних волн из области распада, имеющей конечный размер вдоль направления неоднородности, существенно выше выходной

мощности доступных в настоящее время СВЧ-генераторов. В результате анализа сложившегося противоречия между теорией [5] и экспериментом [1–4] был достигнут значительный прогресс в понимании природы наблюдающихся явлений и сценариев их развития в неоднородной плазме [6]. Экспериментально [2] и теоретически [6] было показано, что низкопороговые нелинейные эффекты, как правило, имеют место в окрестности локальных максимумов плотности плазмы, где возможна двумерная локализация дочерних волн в полоидальном сечении установки, что делает невозможным их потери вдоль направления неоднородности плазмы из области нелинейного взаимодействия с волной накачки. Локализация имеет место в результате возбуждения для СВЧ-волн плазменного канала (волновода) вдоль тороидального направления из-за немонотонного профиля плотности и неоднородности внешнего магнитного поля [7, 8]. В экспериментах немонотонное поведение профиля плотности наблюдается как на оси разряда, так и в магнитных островах из-за особенностей переноса в этих структурах [9]. Однако случаи, когда профиль плотности плазмы может быть немонотонным, не ограничиваются приведенными примерами. Следует отметить, что в периферийной плазме современных

* E-mail: a.popov@mail.ioffe.ru

тороидальных установок присутствуют вытянутые вдоль магнитных силовых линий крупномасштабные когерентные образования — филаменты или блобы, — появляющиеся в результате эволюции первичных дрейфовых волн на нелинейной стадии развития низкочастотной дрейфово-резистивной турбулентности [10]. Эти образования родственны зональным течениям [10] и стримерам [11], которые наблюдаются в лабораторной, ионосферной и космической плазме. Однако в отличие от зональных течений, приводящих к стабилизации дрейфовых неустойчивостей и тем самым ограничивающих аномальный перенос, блобы и филаменты, так же как и стримеры в плотной плазме, считаются ответственными за баллистический перенос тепла и частиц поперек магнитного поля в разреженной плазме пристеночной области тороидальных установок [12]. Как показывают измерения, выполненные разными диагностическими методами [13, 14], плотность плазмы в этих структурах значительно превосходит фоновую плотность плазмы, причем ее распределение поперек блоба с разумной точностью аппроксимируется гауссовой функцией. Последнее было также подтверждено в результате гирокинетического моделирования, независимо выполненного различными научными группами [14, 15]. С существованием таких образований связывают наблюдаемый на токамаке ASDEX-Upgrade эффект аномального излучения на половинной гармонике греющего микроволнового излучения в экспериментах по нагреву плазмы при электронном циклотронном резонансе (ЭЦР). [2]. Очевидно, что подобные структуры будут присутствовать и в будущих установках реакторного масштаба. Поэтому взаимодействие мощного СВЧ-излучения с этими объектами представляет не только теоретический, как одна из важных нелинейных задач в электродинамике плазмы, но и непосредственный практический интерес. До сих пор пристальное внимание уделялось изучению эффектов аномальных СВЧ-излучения и СВЧ-поглощения волны накачки необыкновенной поляризации, которая, как правило, используется в современных установках для ЭЦР-нагреву плазмы [2, 16]. В то же время в следующем десятилетии планируется использование мощных пучков (до 67 МВт) СВЧ-волн обыкновенной поляризации для дополнительного нагрева плазмы и контроля неоклассических магнитных островов в экспериментальном термоядерном реакторе ITER. В частности, с целью получения горячей плазмы большой плотности обсуждается и возможность использования нагрева обыкновенной волной на второй гармонике резонанса [17–19]. Аномальные

явления при распространении волн обыкновенной поляризации до сих пор не были подробно изучены. В настоящей работе этот пробел частично восполняется исследованием сценария распада обыкновенной волны с частотой, соответствующей частоте второй гармоники ЭЦР, приводящего к возбуждению двух электронных бернштейнских (ЭБ) волн, двумерно-локализованных в блобе и соответствующих модам шепчущей галереи [20]. Отметим, что моды шепчущей галереи — резонансные стоячие волны, которые могут возбуждаться в осесимметричных системах из-за эффекта полного внутреннего отражения. Они впервые наблюдались для акустических волн и были исследованы Рэлеем в шепчущей галерее Собора святого Павла, по имени которой и получили свое название [21]. Эти нормальные моды часто встречаются не только в задачах акустики, но и в электродинамике для гигагерцевого [22] и терагерцевого [23] излучения. В частности, с их параметрическим возбуждением в модельных экспериментах связывалось аномальное поглощение СВЧ-волн на линейной установке [16].

2. ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Рассмотрим параметрическую распадную неустойчивость обыкновенной волны в блобе или филаменте, вытянутом вдоль магнитной силовой линии и имеющем локальный максимум плотности в поперечном сечении. Вполне естественно описывать эти плазменные объекты в локальной цилиндрической системе координат (r, θ, z) , предполагая, что ее начало расположено на оси филамента. Следуя результатам измерений и численных расчетов [13–15], представим плотность плазмы как сумму фоновой плотности n и плотности в блобе

$$\delta n = \delta n_0 \exp(-r^2/r_b^2),$$

где δn_0 и r_b — высота и радиус блоба. Поскольку масштабы, характерные для профилей фоновой плазмы, намного больше радиуса филамента, что было экспериментально подтверждено в работах [13–15], далее мы будем игнорировать любую пространственную зависимость, кроме неоднородности этого филамента. Будем предполагать, что временная вариация распределения плотности в блобе пренебрежимо мала, по крайней мере, за время перехода рассматриваемой неустойчивости в режим насыщения. Рассмотрим пучок плоских СВЧ-волн обыкновенной поляризации мощностью P_0 , который имеет частоту ω_0 и распространяется на краю

плазмы поперек магнитного поля внутрь разряда. В ВКБ-приближении поле обыкновенной волны накачки в блоке, расположенном в окрестности точки с координатой x_b , можно представить в виде

$$\mathbf{E}_0 = \mathbf{e}_z \frac{E_0(y, z)}{2} \sqrt{\frac{\omega_0}{ck_x(x_b)}} \times \exp(ik_x(x_b)(x - x_b) - i\omega_0 t), \quad (1)$$

где x и z — локальные декартовы координаты вдоль потоковой переменной и магнитного поля соответственно, y — координата, перпендикулярная им обеим. В выражении (1)

$$k_x = \omega_0 \sqrt{\eta(\omega_0)}/c,$$

где

$$\eta = 1 - \omega_{pe}^2/\omega_0^2$$

— параллельная компонента диэлектрического тензора холодной плазмы [24], а ω_{pe} — электронная ленгмюровская частота. Кроме того, будем считать, что ширина пучка поперек магнитного поля много больше размера блока, $w_{y,z} \gg r_b$. В этом случае мы можем представить (1) в следующем виде:

$$\mathbf{E}_0 = \mathbf{e}_z \frac{E_0(0, z)}{2} \sqrt{\frac{\omega_0}{ck_x(x_b)}} \times \sum_{s=-\infty}^{\infty} J_s(k_x(x_b)) \exp(is\theta - i\omega_0 t), \quad (2)$$

где J_s — функция Бесселя.

Далее мы проанализируем распад электромагнитной волны на две ЭБ-волны, групповые скорости которых противоположно направлены и частоты примерно равны половине частоты волны накачки:

$$\omega_{1,2} \simeq \omega_0/2 \leq \omega_{UH},$$

где

$$\omega_{UH} = \sqrt{\omega_{ce}^2 + \omega_{pe}^2}$$

— верхнегибридная частота, ω_{ce} — электронная циклотронная частота. Волновые числа ЭБ-волн являются решениями локальных дисперсионных уравнений

$$D_l(\mathbf{q}, \omega) = D'_l(\mathbf{q}, \omega) + iD''_l(\mathbf{q}, \omega) = q^2 + \chi(\mathbf{q}, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} g^2, \quad (3)$$

которые учитывают резонансную и столкновительную диссипацию. Член g^2 в уравнении (3) описывает малую электромагнитную компоненту волны в окрестности верхнего гибридного резонанса (ВГР),

g — недиагональный элемент диэлектрического тензора холодной плазмы [24]. Линейная восприимчивость плазмы задается известным уравнением [24]

$$\chi = \frac{2\omega_{pe}^2}{v_{te}^2} \left(1 + \frac{\omega}{|q_z| v_{te}} \sum_{m=-\infty}^{\infty} Z\left(\frac{\omega - m\omega_{ce}}{q_z v_{te}}\right) \times \exp\left(-\frac{q_z^2 v_{te}^2}{2\omega_{ce}^2}\right) I_m\left(\frac{q_z^2 v_{te}^2}{2\omega_{ce}^2}\right) \right),$$

где Z — плазменная дисперсионная функция, v_{te} — тепловая скорость электронов, I_m — модифицированная функция Бесселя. Параметрический распад волны накачки в осесимметричной плазме блока может привести к возбуждению пары ЭБ-мод шепчущей галереи [20], движущихся в противоположных направлениях вдоль азимутальной координаты. Основной набор связанных уравнений для потенциалов дочерних волн, описывающих трехволновое взаимодействие при фиксированной амплитуде волны накачки, имеет вид [6]

$$\begin{aligned} \hat{D}_l \phi_1 + \hat{D}_{nl} \phi_2 &= 0, \\ \hat{D}_{nl} \phi_1 + \hat{D}_l \phi_2 &= 0, \end{aligned} \quad (4)$$

где интегральные операторы имеют вид

$$\begin{aligned} \hat{D}_{l,nl} f(\mathbf{r}, t) &= \\ &= \int \frac{d\omega dt' d\mathbf{q} d\mathbf{r}'}{(2\pi)^4} D_{l,nl}\left(\omega, \mathbf{q}, \frac{\mathbf{r} + \mathbf{r}'}{2}\right) \times \\ &\times \exp[i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}') - i\omega(t - t')] f(\mathbf{r}', t'). \end{aligned} \quad (5)$$

В уравнении (5) ядро линейного оператора определено в уравнении (3), а ядро нелинейного оператора равно [25]

$$\begin{aligned} D_{nl} &= \frac{16\omega_{pe}^2 \omega_{ce}}{\omega_0(\omega_0^2 - 4\omega_{ce}^2)} \left(iq_z q_r - q_z q_\theta \frac{\omega_{ce}}{\omega_0} \right) \frac{E_0}{\bar{B}} \times \\ &\times \sqrt{\frac{\omega_0}{ck_x(x_b)}} \sum_{s=-\infty}^{\infty} J_s(k_x(x_b)) \exp(is\theta - i\omega_0 t), \end{aligned} \quad (6)$$

где $\bar{B}$ — локальное значение вектора индукции внешнего магнитного поля. При решении системы уравнений (4) воспользуемся процедурой теории возмущений. На первом шаге мы предположим, что затухание дочерних волн и нелинейная накачка слабые, и положим в уравнениях (4) $D''_l = 0$, $D_{nl} = 0$. Это сводит систему связанных уравнений к двум

независимым линейным уравнениям $\hat{D}_l \phi_{1,2} = 0$, решение каждого из которых будем искать в виде

$$\begin{aligned}\phi_1 &= a_1 \varphi_p(r) \times \\ &\times \exp\left(im\theta + iq_z^{p,n} z + i\left(\frac{\omega_0}{2} - \delta\omega^{p,n}\right)t\right), \\ \phi_2 &= a_2 \varphi_n(r) \times \\ &\times \exp\left(im\theta + iq_z^{p,n} z - i\left(\frac{\omega_0}{2} + \delta\omega^{p,n}\right)t\right),\end{aligned}\quad (7)$$

предполагая номер азимутальный моды обеих волн большим, $m \gg 1$. В этом случае поле ЭБ-волны будет вытеснено из приосевой части блока к области ВГР. Оно локализуется вблизи точки r_m , где выполнено условие

$$\partial D'_l / \partial r|_0 = \partial D'_l / \partial r|_{m,q_r} = 0,$$

$$q_\theta = m/r, \quad q_\perp^2 = q_\theta^2 + q_r^2, \quad q_z = 0, \quad \omega_{1,2} = \omega_0/2.$$

ЭБ-волна при этом представляет собой моду шепчущей галереи, описываемую собственными функциями φ_p и φ_n , подчиняющимися редуцированному дифференциальному уравнению [16]

$$\begin{aligned}&\left(\left|\frac{\partial D'_l}{\partial q_\perp}\right|_0 \frac{r_m}{2m} \frac{\partial^2}{\partial r^2} - \left|\frac{\partial^2 D'_l}{\partial q_z^2}\right|_0 \frac{(q_z^{p,n})^2}{2} \pm \left|\frac{\partial D'_l}{\partial \omega}\right|_0 \delta\omega^{p,n} + \right. \\ &\left. + D'_l|_0 - \left|\frac{\partial^2 D'_l}{\partial r^2}\right|_0 \frac{(r - r_m)^2}{2}\right) \varphi_{p,n}(r) = 0.\end{aligned}\quad (8)$$

Собственные значения $\delta\omega^{p,n}$ и $q_z^{p,n}$ определяются в результате поиска локализованных решений уравнения (8) и имеют вид

$$\begin{aligned}\delta\omega^{p,n} &= \\ &= (p - n) \left|\frac{\partial^2 D'_l}{\partial r^2}\right|_0^{1/2} \left|\frac{\partial D'_l}{\partial q_\perp}\right|_0^{1/2} \sqrt{\frac{r_m}{m}} \left|\frac{\partial D'_l}{\partial \omega}\right|_0^{-1}, \\ q_z^{p,n} &= \left|\frac{\partial^2 D'_l}{\partial q_z^2}\right|_0^{-1/2} \times \\ &\times \left(D'_l|_0 - (p + n + 1) \left|\frac{\partial^2 D'_l}{\partial r^2}\right|_0^{1/2} \left|\frac{\partial D'_l}{\partial q_\perp}\right|_0^{1/2} \sqrt{\frac{r_m}{m}}\right)^{1/2}.\end{aligned}\quad (9)$$

На следующем этапе процедуры теории возмущений мы учтем затухание дочерних волн и их нелинейное возбуждение, приводящее к изменению амплитуд $a_{1,2}$ во времени и вдоль магнитного поля. Умножая обе стороны уравнений (3) на комплексносопряженные собственные функции нулевого порядка φ_p и φ_n , являющиеся решением уравнения (8), и

выполняя интегрирование по поперечным координатам, получим

$$\begin{aligned}\left(\frac{\partial}{\partial t} - U_p \frac{\partial}{\partial z} + \nu_{pd}\right) a_1 &= i\nu_0(z) a_2, \\ \left(\frac{\partial}{\partial t} + U_n \frac{\partial}{\partial z} + \nu_{nd}\right) a_2 &= -i\nu_0^*(z) a_1,\end{aligned}\quad (10)$$

где $U_p \simeq U_n = U$ — продольные групповые скорости, усредненные по области радиальной локализации соответствующих близких радиальных мод $|p - n|/p \ll 1$ дочерних волн, $\nu_{pd} \simeq \nu_{nd} = \nu_d$ и ν_0 — коэффициенты, описывающие линейное затухание и неоднородную нелинейную накачку. Далее, для аналитического рассмотрения будем использовать модель кусочно-заданного распределения поля СВЧ-волны вдоль координаты z :

$$\begin{aligned}\nu_0(z) &= 0, & z < -w_z/2, \\ \nu_0(z) &= \nu_0, & -w_z/2 \leq z \leq w_z/2, \\ \nu_0(z) &= 0, & w_z/2 < z.\end{aligned}\quad (11)$$

Экспоненциально растущее во времени решение системы уравнений, $a_{1,2} \propto \exp(\gamma t)$, которое ведет себя непрерывно при $z = \pm w_z/2$ и экспоненциально убывает на бесконечности $z \rightarrow \pm\infty$, имеет инкремент

$$\gamma = \nu_0 - U/w_z - \nu_d, \quad (12)$$

а порог определяется балансом накачки и потерь:

$$\nu_0(P_0^{th}) = U/w_z + \nu_d.$$

3. ПОРОГ НЕУСТОЙЧИВОСТИ В РАЗЛИЧНЫХ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ УСТАНОВКАХ

Проиллюстрируем предложенную модель на примере двух тороидальных установок магнитного удержания плазмы. На рис. 1 для условий токамака ASDEX-Upgrade (частота волны накачки $f_0 = 140$ ГГц) [13] показана траектория ЭБ-волны (соответствует азимутальной моде $m = 112$, радиальной моде $n = 6$, $f_{m,n} = 70.41$ ГГц) в перпендикулярном сечении блока, которая получена с помощью процедуры трассировки лучей, применяемой в приближении геометрической оптики [26], т.е. вычисления траектории потока мощности электромагнитных волн через неоднородную замагниченную плазму с учетом ее реальной геометрии. Штрихпунктиром показано положение границы

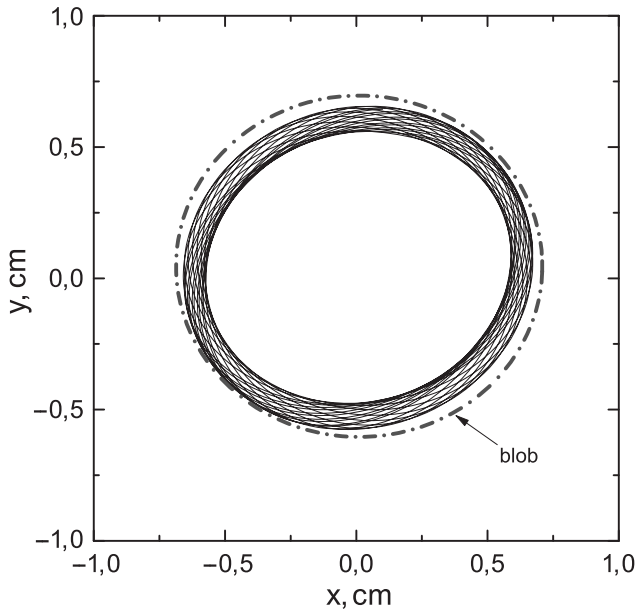


Рис. 1. Траектория ЭБ-волны (азимутальная мода $m = 112$, радиальная мода $n = 6$, $f_{m,n} = 70.41$ ГГц) в перпендикулярном сечении блоба для условий токамака ASDEX-Upgrade [13]. Штрихпунктир — положение границы блоба

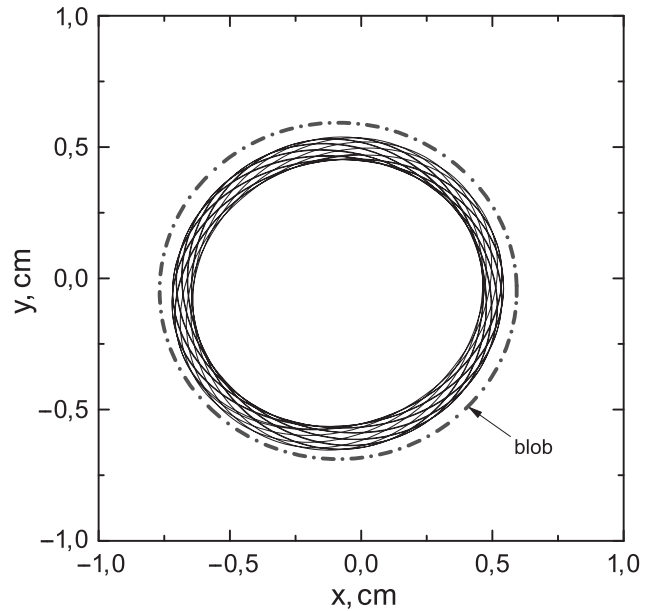


Рис. 2. Траектория ЭБ-волны (азимутальная мода $m = 113$, радиальная мода $n = 5$, $f_{m,n} = 70.24$ ГГц) в перпендикулярном сечении блоба для условий стелларатора Wendelstein 7-X [14]. Штрихпунктир — положение границы блоба

блоба ($r_b = 0.6$ см). Видно, что огибающая траектории волны не является идеально круглой, что вызвано влиянием неоднородного магнитного поля.

На рис. 2 для условий стелларатора Wendelstein 7-X (частота волны накачки $f_0 = 140$ ГГц) [14] показана траектория ЭБ-волны (соответствует азимутальной моде $m = 113$, радиальной моде $n = 5$, $f_{m,n} = 70.24$ ГГц) в перпендикулярном сечении блоба, также вычисленная с помощью процедуры трассировки лучей. Как и на рис. 1, штрихпунктиром показано положение границы блоба ($r_b = 0.6$ см). Траектории ЭБ-волн на рис. 1 и 2 демонстрируют, что в обоих случаях эти волны не покидают область распада и отвечают нормальной (шепчущей) моде — стоячей волне, локализованной в узкой области на периферии блоба.

На рис. 3 показана зависимость инкремента распадной неустойчивости от мощности. Теоретические зависимости, вычисленные согласно уравнению (12) для модельного прямоугольного распределения поля (11) размером $w_z = 2$ см, показаны линиями. Символы — результат численного решения для гауссова распределения поля в пучке шириной $w_y = w_z = 2$ см. Сплошная линия и кружки — случай ASDEX-Upgrade для параметров эксперимента, указанных в работе [18]. Пороговое значение, согласно аналитической модели (11), (12), равно $P_0^{th} = 297$ кВт, а полученное в результате числен-

ного решения системы (9) для гауссова пучка накачки с тем же радиусом — $P_0^{th} = 282$ кВт. Штриховая линия и ромбы — случай Wendelstein 7-X для параметров эксперимента, указанных в работе [19]. Пороговое значение, согласно аналитической модели, равно $P_0^{th} = 285$ кВт. Значение порога, полученное в результате расчета, — $P_0^{th} = 243$ кВт. Различие значений порога связано с модельным представлением о распределении поля (11), которое использовалось при выводе выражения (12). При мощности СВЧ-волны, существенно превышающей пороговое значение, зависимости инкремента от мощности, полученные аналитически и численно, асимптотически сближаются.

Отметим также, что предсказания развитой теории могут быть проверены в модельном эксперименте на линейной установке «Гранит» [16], где плазменный столб создается ВЧ-разрядом в длинной стеклянной трубке с внутренним диаметром $2a = 22$ мм, ориентированной в направлении магнитного поля и заполненной аргоном (под давлением около 10 дин/см²). Магнитное поле, создаваемое внешним электромагнитом, может изменяться от 0 до 450 Гс. Усредненная по объему плотность плазмы составляет около 10^{10} см⁻³ и при полной вариации магнитного поля изменяется на 15–20 %. Стеклянная трубка проходит через отверстие, сделанное в широкой стенке волновода (42×34 мм²) парал-

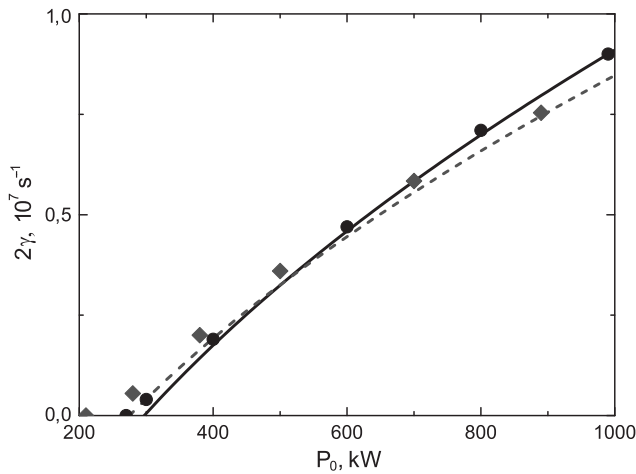


Рис. 3. Зависимость инкремента от мощности. Теоретические зависимости (12) для модельного распределения поля (11) показаны линиями. Результат численного решения (10) для гауссова пучка — символы. Сплошная линия и кружки — случай ASDEX-Upgrade [18]. Штриховая линия и ромбы — Wendelstein 7-X [19]. $w_{y,z} = 2$ см

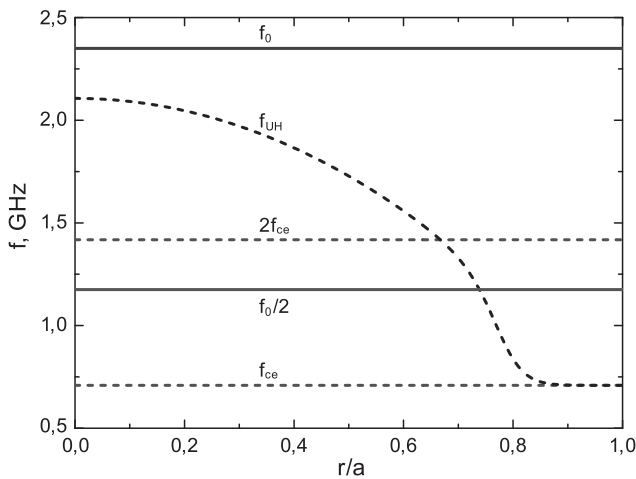


Рис. 4. Частоты ЭЦР, второй гармоники ЭЦР, ВГР, волны накачки и дочерней волны в модельном эксперименте

тельно узкой стенке. СВЧ-импульсы (мощностью до 210 Вт) в форме обыкновенных волн подаются на плазму вдоль волновода. На рис. 4 показаны частоты ЭЦР, второй гармоники ЭЦР, ВГР, а также частоты волны накачки и дочерней волны. Поскольку частота запускаемых волн $f_0 = 2.35$ ГГц больше частоты второй гармоники ЭЦР, $2f_{ce}$, в объеме плазмы отсутствуют эффективные линейные механизмы поглощения накачки и имеется только столкновительный механизм, который в условиях эксперимента является слабым. На рис. 5 показана радиальная компонента волнового вектора дочерней ЭБ-волны (полоидальная мода $m = 22$, продольный коэффициент преломления $n_z = 0.9$, $T_e = 1$ эВ). На рис. 6

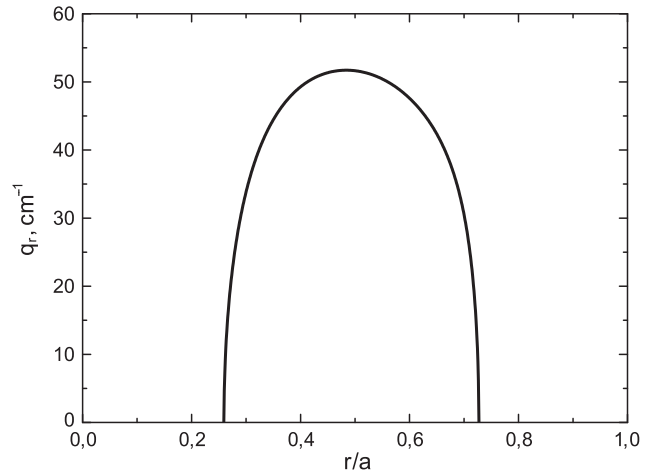


Рис. 5. Радиальная компонента волнового вектора ЭБ-волны в модельном эксперименте, $m = 22$, $n_z = 0.9$, $T_e = 1$ эВ

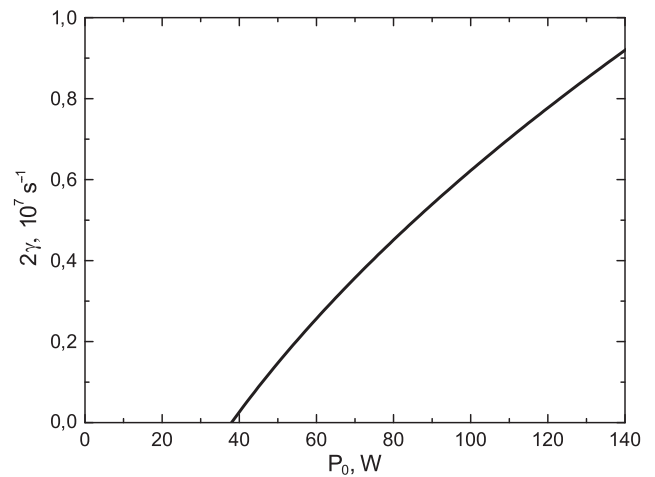


Рис. 6. Зависимость инкремента от мощности в модельном эксперименте. Линия — выражение (12), $P_0^{th} = 39$ Вт

приведена зависимость (12) инкремента возбуждаемой неустойчивости двухплазмонного распада от мощности при частоте электрон-атомных столкновений $\nu_{ea} = 5 \cdot 10^6$ с⁻¹. Оценка для порога неустойчивости в этом случае $P_0^{th} = 39$ Вт. Предсказанный порог неустойчивости (около 40 Вт) существенно ниже технической доступной мощности СВЧ-импульсов, что позволяет подробно исследовать это нелинейное явление. В частности, приведенные оценки показывают возможность провести детальное исследование линейной стадии неустойчивости и ее переход в режим насыщения. Последнее позволит изучить эффективность аномального поглощения обыкновенной волны.

4. ВЫВОДЫ

Впервые исследован сценарий низкорогового распада обыкновенной волны с частотой, соответствующей второй гармонике ЭЦР в плазменном объеме, приводящий к возбуждению двух ЭБ-волн, двумерно-локализованных в блоке (филаменте) на периферии плазмы. Получены выражения для инкремента и порога этой неустойчивости. С помощью уравнения (12) для условий установок ASDEX-Upgrade и Wendelstein 7-X найдены значения порогов. Их значения существенно ниже мощности мегаваттных СВЧ-пучков, используемых для нагрева в этих установках. На примере линейной установки «Гранит» показано, что этот эффект может быть исследован в модельных экспериментах, оперирующих с СВЧ-мощностями до 200 Вт. Это открывает возможность подробного изучения этого нелинейного явления, включая оценку эффективности аномального поглощения обыкновенной волны.

Финансирование. Результаты исследования неустойчивости в условиях модельного эксперимента получены в рамках Договора № 23-РБ-02-06 и проекта БРФФИ Ф24СП6Г-005. Результаты исследования неустойчивости в условиях экспериментов на установках ASDEX-Upgrade и Wendelstein 7-X получены при поддержке Российского научного фонда (грант № 22-12-00010), а численные расчеты выполнены при поддержке государственного контракта ФТИ им. А. Ф. Иоффе (FFUG-2024-0028).

ЛИТЕРАТУРА

1. E. Westerhof, S. K. Nielsen, J. W. Oosterbeek et al., *Plasma Phys. Control. Fusion* **55**, 115003 (2013).
2. S. K. Hansen, S. K. Nielsen, J. Stober et al., *Nucl. Fusion* **60**, 106008 (2020).
3. A. Tancetti, S. K. Nielsen, J. Rasmussen et al., *Nucl. Fusion* **62**, 074003 (2022).
4. A. Clod, M. G. Senstius, A. H. Nielsen et al., *Phys. Rev. Lett.* **132**, 135101 (2024).
5. B. I. Cohen, R. H. Cohen, W. M. C. Nevins, and T. D. Rognlien, *Rev. Mod. Phys.* **63**, 949 (1991).
6. Е. З. Гусаков, А. Ю. Попов, *УФН* **190**, 396 (2020).
7. E. Z. Gusakov and A. Yu. Popov, *Plasma Phys. Control. Fusion* **63**, 125017 (2021).
8. Е. З. Гусаков, А. Ю. Попов, *Физика плазмы* **49**, 740 (2023).
9. M. Yu. Kantor, A. J. H. Donne, R. Jaspers et al., *Plasma Phys. Control. Fusion* **51**, 055002 (2009).
10. P. H. Diamond, S.-I. Itoh, K. Itoh, and T. S. Hahm, *Plasma Phys. Control. Fusion* **47**, R35 (2005).
11. O. D. Gurcan and P. H. Diamond, *Phys. Plasmas* **11**, 572 (2004).
12. S. I. Krasheninnikov, *Phys. Lett. A* **283**, 368 (2001).
13. B. Nold, G. D. Conway, T. Happel et al., *Plasma Phys. Control. Fusion* **52**, 065005 (2010).
14. C. Killer, B. Shanahan, O. Grulke et al., *Plasma Phys. Control. Fusion* **62**, 085003 (2020).
15. J. Cheng, J. Q. Dong, L. W. Yan et al., *Nucl. Fusion* **53**, 093008 (2013).
16. A. B. Altukhov, V. I. Arkhipenko, A. D. Gurchenko et al., *Europhys. Lett.* **126**, 15002 (2019).
17. H. Hohnle, J. Stober, A. Herrmann et al., *Nucl. Fusion* **51**, 083013 (2011).
18. M. Schubert, B. Plaum, S. Vorbrugg et al., in *Proc. 43rd EPS Conf. on Plasma Physics*, Leuven, Belgium, 4–8 July (2016), Vol. **40A**, P1.026.
19. T. Klinger, T. Andreeva, S. Bozhenkov et al., *Nucl. Fusion* **59**, 112004 (2019).
20. K. G. Budden and H. G. Martin, *The Ionosphere as a Whispering Gallery*, *Proc. Roy. Soc. London, Series A. Mathem. Phys. Sci. The Royal Society* **265** (1923), 554 (1962).
21. Дж. Стрэтт (лорд Рэлей), *Теория звука*, Гостехиздат, Москва (1955).
22. P. L. Stanwix, M. E. Tobar, P. Wolf et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 040404 (2005).
23. R. Mendis and M. Mittleman, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 031106 (2010).
24. D. G. Swanson, *Plasma Waves*, 2nd ed., CRC Press (2003).
25. А. Ю. Попов, *Физика плазмы* **48**, 27 (2022).
26. А. Бернштейн, Л. Фридленд, в сб. *Основы физики плазмы*, т. 1. под ред. М. Н. Розенблюта и Р. З. Сагдеева, Энергоатомиздат, Москва (1983), с. 393.

К СВЕДЕНИЮ АВТОРОВ

В ЖЭТФ публикуются статьи, содержащие изложение оригинальных научных результатов, не опубликованных и не предназначенных к публикации в другом месте. В отдельных случаях по заказу редколлегии публикуются актуальные статьи обзорного характера.

Редакция ЖЭТФ принимает статьи на русском и на английском языках.

Редакция рекомендует направлять статьи в электронном виде по электронной почте или загружать их в режиме «on-line» через сайт журнала <http://jetp.ras.ru/>

Издательство требует от авторов при публикации статьи заключения договора о передаче авторских прав. Заполненные и подписанные договоры (форма договоров отправляется авторам ВМЕСТЕ С КОРРЕКТУРОЙ) могут быть представлены лично или по электронной почте в отсканированном виде (PDF файлы).

По всем вопросам можно обращаться в редакцию.

Адрес: 117334, Москва, ул. Косыгина, д. 2, Редакция ЖЭТФ

E-mail: jetp@kapitza.ras.ru Телефон: +7 (499) 137 56 22

Главный редактор *А. И. СМЕРНОВ*

Редколлегия:

д-р физ.-мат. наук С. О. АЛЕКСЕЕВ, канд. физ.-мат. наук Ю. С. БАРАШ,
д-р физ.-мат. наук И. Г. ЗУБАРЕВ,
д-р физ.-мат. наук Е. И. КАЦ (зам. гл. редактора, представительство ЖЭТФ во Франции),
д-р физ.-мат. наук В. П. КРАЙНОВ, д-р физ.-мат. наук А. С. МЕЛЬНИКОВ
д-р физ.-мат. наук М. С. ПШИРКОВ, акад. М. В. САДОВСКИЙ,
канд. физ.-мат. наук С. С. СОСИН, член-корр. РАН С. В. ТРОИЦКИЙ (зам. гл. редактора),
д-р физ.-мат. наук А. В. ФИЛИППОВ, член-корр. РАН И. А. ФОМИН (зам. гл. редактора)

Редакционный совет:

член-корр. РАН В. В. ЛЕБЕДЕВ, д-р физ.-мат. наук В. С. ПОПОВ

Зав. редакцией Н. Г. Церевитинова

Редакторы: Л. Б. Кульчицкая, Т. Г. Орехова, Т. Н. Смирнова