

ISSN 0370-274X

Том 118, Выпуск 9–10

Ноябрь 2023



Письма
в
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ

www.sciencejournals.ru

2023 г. Том 118 вып. 9, стр. 627 – 708

2023 г. Том 118 вып. 10, стр. 709 – 784



РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

П И С Ь М А
В
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

том 118

Выпуск 9

10 ноября 2023

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора
Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

Web-страница <http://www.jetpletters.ac.ru>

Интернет-версия английского издания
<http://www.springerlink.com/content/1090-6487>

© Российская академия наук, 2023

© Редакция журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2023

Поиск резонансов в спектре масс двухфотонных событий, образующихся в π^+ А-взаимодействиях, в эксперименте Гиперон-М на ускорительном комплексе У-70

А. М. Горин⁺, С. В. Евдокимов⁺¹⁾, А. А. Зайцев*, В. И. Изучеев⁺, Б. В. Полищук⁺, К. А. Романишин⁺,
В. И. Рыкалин⁺, С. А. Садовский⁺, Ю. В. Харлов⁺, А. А. Шангараев⁺

⁺ НИЦ “Курчатовский институт” – ИФВЭ, 142281 Протвино, Россия

*Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

Поступила в редакцию 21 сентября 2023 г.

После переработки 28 сентября 2023 г.

Принята к публикации 29 сентября 2023 г.

Исследования на Нуклотроне в ОИЯИ указывают на наличие ранее неизвестной резонансо-подобной структуры в двухфотонном спектре масс в области 300–400 МэВ/ c^2 , наблюдаемой в ядро-ядерных взаимодействиях. Целью данной работы является поиск таких структур в двухфотонном спектре масс в мезон-ядерных взаимодействиях при импульсе 7 ГэВ/с на установке Гиперон-М ускорительного комплекса У-70. Установлено ограничение сверху на отношение сечения образования неизвестных резонансных структур к сечению рождения η -мезона $\rho(R \rightarrow 2\gamma/\eta \rightarrow 2\gamma) < 3.2 \times 10^{-3}$ на уровне достоверности 95 %.

DOI: 10.31857/S1234567823210012, EDN: prgiqb

Введение. Несмотря на то, что спектры масс в области легких мезонов хорошо изучены, особенно динамики взаимодействий частиц в поле ядра могут приводить к появлению резонансо-подобных структур в наблюдаемом спектре масс. Так, впервые о наблюдении аномалии двухпионного спектра масс в области 315 МэВ/ c^2 в реакции $p + d \rightarrow {}^3\text{He} + 2\pi$ сообщили Abashian, Booth и Crowe в работах [1, 2]. Эта аномалия получила название ABC-эффект. Позднее о наблюдении ABC-эффекта было сообщено во многих работах, см., например, [3–6]. Наличие резонансо-подобной структуры в двухпионном спектре масс, скорее всего, не связано с реальной частицей, но может быть интерпретировано, например, как следствие резонансного дибарионного $\Delta\Delta$ -взаимодействия [7], приводящего к образованию возбужденного состояния дейтрона $d^*(2370)$, который наблюдался в эксперименте WASA@COSY [8]. В детальном обзоре [9] по рождению легких мезонов и мезонных состояний во взаимодействиях легких ядер обсуждаются экспериментальные указания на наличие резонансо-подобных особенностей двухпионного спектра масс в области 455, 550 и 750 МэВ/ c^2 . Основным выводом обзора при этом является необходимость проведения дальнейших экспериментов для прояснения природы этих аномалий.

Скалярные дипионные резонансо-подобные состояния могут проявляться и в двухфотонных распадах. В работе [10] в двухфотонном спектре масс наблюдалось состояние $R360$ в околопороговой области 2π -систем ($M_R \approx 380$ МэВ/ c^2 , $\Gamma_R \approx 60$ МэВ/ c^2) в реакции $d + C \rightarrow 2\gamma + X$ на Нуклотроне в Дубне при импульсе пучка 2.75 АГэВ/с. При этом, однако, подобная структура отсутствует в реакции $p + C \rightarrow 2\gamma + X$ при импульсе протона 5.5 ГэВ/с. Поиск легких бозонов в распадах на два фотона в последнее время приобрел новый интерес в связи с указанием на существование состояний $X17$ [11, 12] и $E38$ [13–15] которые могут быть интерпретированы как КЭД-мезоны, представляющие собой пару легких кварков $q\bar{q}$ в состоянии конфайнмента в открытой струне, описывающейся в $(1+1)D$ абелевом $U(1)$ калибровочном квантово-электродинамическом (КЭД) взаимодействии [16]. Эта модель описывает $R360$ как молекулярное состояние двух пионов и двух $E38$ состояний, объединяя в себе различные аномальные бозонные состояния, включая $R360$, ABC эффект и КЭД-мезоны $X17$, $E38$. Дальнейшие исследования этих состояний и их взаимосвязей представляют большой интерес, см. [16].

В данной работе представлены результаты поиска аномальных резонансных бозонных состояний в диапазоне масс от 200 до 1000 МэВ/ c^2 , проведенные на основе данных эксперимента Гиперон-М на

¹⁾e-mail: Sergey.Evdokimov@ihep.ru

ускорительном комплексе У-70. Гиперон-М проводит систематические исследования взаимодействий адронов с ядрами, в том числе положительных пионов с ядрами ${}^9\text{Be}$ и ${}^{12}\text{C}$. Суммарная статистика 2γ -событий в π^+ -пучке, набранная за период работы с 2008 по 2018 гг., позволяет осуществить поиск резонансо-подобных структур в спектре масс пар фотонов вплоть до массы η -мезона и выше с достаточно высокой статистической обеспеченностью. Это, безусловно, представляет интерес в связи с физической резонансных мезонных состояний, образующихся в адрон- и ион-ядерных столкновениях при энергиях до нескольких ГэВ на адронную пару. В работе представлены результаты исследования спектра масс пар фотонов, образующихся в реакциях $\pi + (\text{Be}, \text{C}) \rightarrow 2\gamma + X$ при импульсе $7\text{ГэВ}/c$ в области масс от 200 до $1000\text{ МэВ}/c^2$, и получены ограничения на вклады резонансо-подобных состояний в эти спектры.

1. Эксперимент Гиперон-М. Экспериментальная установка Гиперон-М состоит из пучкового телескопа сцинтилляционных счетчиков $\{S_1, S_2, S_4\}$, черенковских пороговых счетчиков C_1, C_2, C_3 , ядерной мишени T , триггерного сцинтилляционного счетчика антисовпадений S_A и электромагнитного калориметра $LDG2$. Пучок вторичных положительно заряженных частиц с импульсом $7\text{ГэВ}/c$ детектируется пучковым телескопом. Черенковские пороговые счетчики используются для выделения в пучке пионов, доля которых достигает 50% от общего количества частиц в пучке. Пучок попадает на ядерную мишень T , на которой рождаются в том числе фотоны, детектируемые калориметром $LDG2$. Для выделения исключительно событий рождения фотонов в апертуре калориметра используется сцинтилляционный счетчик S_A , покрывающий телесный угол калориметра и включенный в схему антисовпадений с пучковым телескопом. Схематически установка изображена на рис. 1.

Электромагнитный калориметр $LDG2$ представляет собой матрицу 24×24 из блоков свинцового стекла размером $85 \times 85 \times 350\text{ мм}^3$ с приклеенными к их торцевой поверхности фотоумножителями. Передняя поверхность калориметра расположена на расстоянии 370 см от мишени T .

Регистрируемые фотоны в калориметре использовались для физического анализа событий. Более подробно установка, система сбора данных эксперимента, алгоритмы калибровки детектора $LDG2$, реконструкции энергий и импульсов фотонов, а также программа Монте-Карло (МК), моделирования эксперимента описаны в работах [17–25].

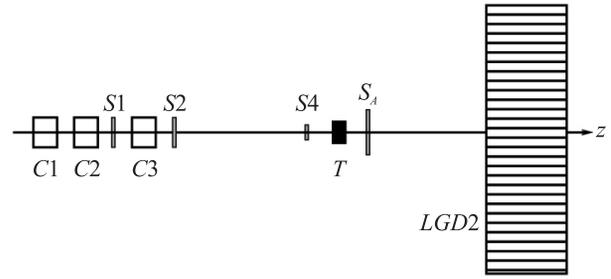


Рис. 1. Схема экспериментальной установки Гиперон-М: S_1, S_2, S_4 – пучковые сцинтилляционные счетчики; C_{1-3} – черенковские счетчики; T – мишень; S_A – триггерный сцинтилляционный антисчетчик; $LDG2$ – черенковский электромагнитный спектрометр с радиаторами из свинцового стекла

2. Данные эксперимента и Монте-Карло моделирования.

Для физического анализа двухфотонных систем использовались события, в которых было зарегистрировано 2 фотона в детекторе $LDG2$. События с 3 и 4 фотонами были использованы для идентификации вкладов от многофотонных распадов нейтральных мезонов в двухфотонный спектр масс и их учета при анализе. При этом требовалось наличие сигнала в пороговых черенковских счетчиках C_1 и C_2 для отбора событий с π^+ -мезонами в пучке. Порог счетчика C_1 был установлен таким образом, чтобы регистрировать пионы с импульсом $7\text{ГэВ}/c$, а C_2 – для регистрации пионов и каонов с импульсом $7\text{ГэВ}/c$. Для подавления шумящих каналов в калориметре использовался отбор по суммарной энергии фотонов $\sum_{i=1}^n E_i > 1000\text{ МэВ}$, зарегистрированных в $LDG2$.

Двухфотонный спектр масс, полученный в экспозиции на бериллиевой мишени, представлен на рис. 2. В спектре хорошо видны пики от распадов $\pi^0 \rightarrow 2\gamma$ и $\eta \rightarrow 2\gamma$ при массах $\approx 135\text{ МэВ}/c^2$ и $\approx 547\text{ МэВ}/c^2$, соответственно. Также заметна особенность в области масс $700\text{--}800\text{ МэВ}/c^2$, связанная с наличием событий распада $\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma$, где один из фотонов от распада π^0 -мезона не был зарегистрирован в $LDG2$. Спектр, полученный на углеродной мишени, выглядит аналогично. Суммарная статистика соответствует 2.2×10^6 и 1.6×10^6 зарегистрированных распадов $\eta \rightarrow 2\gamma$ на бериллиевой и углеродной ядерных мишенях, соответственно.

Для учета вклада от распада $\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma$ использовались события с тремя зарегистрированными фотонами в $LDG2$. При этом отобранные события подвергались процедуре кинематического 1С-фита с гипотезой $\pi^0\gamma$, и выбиралась лучшая комбинация фотонов по критерию $\chi^2_{\pi^0\gamma}$. События с $\chi^2_{\pi^0\gamma} < 5.0$ ис-

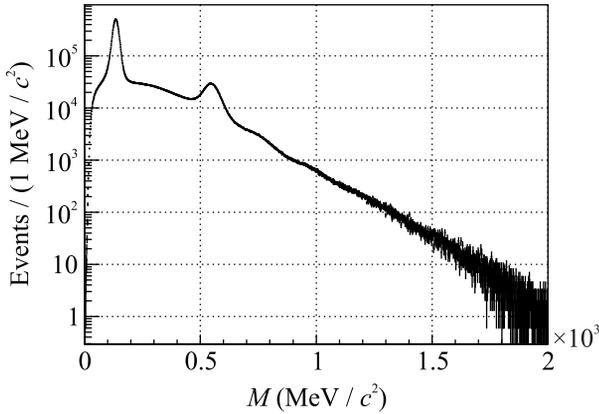


Рис. 2. Спектр масс двухфотонных событий в реакции $\pi^+ + A \rightarrow M_{n\gamma}^0 + X$ на бериллиевой мишени при импульсе 7 ГэВ/с

пользовались для построения спектра инвариантных масс $\pi^0\gamma$ -систем. На рисунке 3 слева приведен полученный в эксперименте спектр масс $\pi^0\gamma$ -событий на бериллиевой мишени и МК спектр рождения и последующего распада $\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma$, см. подробнее в [24, 25]. МК спектр нормирован на число наблюдаемых в эксперименте событий этого распада. Для углеродной мишени распределения выглядят аналогично.

Для учета вклада от распада $f_2(1270) \rightarrow 2\pi^0$ использовались события с четырьмя зарегистрированными фотонами в *LGD2*. При этом отобранные события подвергались процедуре кинематического $2C$ -фита с гипотезой $2\pi^0$, и выбиралась лучшая комбинация фотонов по критерию $\chi^2_{2\pi^0}$. События с $\chi^2_{2\pi^0} < 5.0$ использовались для построения спектра инвариантных масс $2\pi^0$ -систем. На рисунке 4 слева приведен полученный в эксперименте спектр масс $2\pi^0$ -событий на бериллиевой мишени и МК спектр рождения и последующего распада $f_2(1270) \rightarrow 2\pi^0$, см. подробнее в [23, 25]. МК спектр нормирован на число наблюдаемых в эксперименте событий этого распада. На углеродной мишени спектры выглядят аналогично.

3. Анализ спектра 2γ -событий. В двухфотонные спектры масс, представленные на рис. 2, дают вклад несколько различных процессов: распады нейтральных мезонов на два фотона ($\pi^0 \rightarrow 2\gamma$, $\eta \rightarrow 2\gamma$, $\eta'(958) \rightarrow 2\gamma$); распады нейтральных резонансов в конечном счете на n фотонов ($n > 2$), в которых в *LGD2* было зарегистрировано только два фотона ($\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma \rightarrow 3\gamma$, $f_2(1270) \rightarrow 2\pi^0 \rightarrow 4\gamma$, $\eta \rightarrow 3\pi^0 \rightarrow 6\gamma$); нерезонансное рождение нескольких нейтральных мезонов, распадающихся на фотоны, но с регистрацией только двух фотонов в калори-

метре. Целью анализа является описание двухфотонного спектра с помощью парциальных вкладов этих процессов.

Анализ экспериментальных 2γ -спектров, рис. 2, был проведен в области масс $m > 200$ МэВ/ c^2 , т.е. далеко за пределами доминирующего пика от распада $\pi^0 \rightarrow 2\gamma$, который является источником значимого физического фона в данном эксперименте.

Следующий по значимости физический фон обусловлен событиями нейтральных распадов η мезона. Для параметризации вклада от распадов $\eta \rightarrow 2\gamma$, $\eta \rightarrow 3\pi^0$ было проведено МК моделирование рождения η мезона и его распадов по указанным каналам с относительными вероятностями 39.36 и 32.57% [26]. Всего было сгенерировано по 7.5×10^6 событий распадов на бериллиевой и углеродной мишенях. МК спектр отобранных двухфотонных событий на бериллиевой мишени представлен на рис. 5. Для параметризации спектра использовалась функция $f_\eta(m)$, которая была подобрана эмпирически

$$f_\eta(m) = \begin{cases} a_0 \exp(-x_L^2/2 + \sum_{i=4}^8 a_i x_L^{i-1}), & m > a_1, \\ a_0 \exp(-x_R^2/2 + \sum_{i=11}^{15} a_i x_R^{i-8}), & m \leq a_1 \end{cases} \quad (1)$$

где a_i – фитируемые параметры, $x_L = (m - a_1)/(a_2 + a_3(m - a_1))$, $x_R = (m - a_1)/(a_9 + a_{10}(m - a_1))$. Эта параметризация хорошо описывает особенности спектра. На углеродной мишени параметризация МК спектра функцией (1) была проведена столь же успешно.

Следующими по значимости фоновыми процессами являются процессы образования и распада $\omega(782)$ и $f_2(1270)$ мезонов. Для параметризации вклада от распада $\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma$ было проведено Монте-Карло моделирование рождения $\omega(782)$ мезона и его последующего распада по указанному каналу. Всего было сгенерировано по 7.5×10^6 распадов на бериллиевой и углеродной мишенях. Полученный в результате спектр масс двухфотонных событий на бериллиевой мишени представлен на рис. 3 справа. На углеродной мишени спектр выглядит аналогично. Для параметризации спектров на обеих мишенях в терминах фитируемых параметров b_i использовалась подобранная эмпирически функция $f_\omega(x)$:

$$f_\omega(m) = \begin{cases} f_L(m), & m < 815 \text{ МэВ}/c^2 \\ f_R(m), & m \geq 815 \text{ МэВ}/c^2, \end{cases} \quad (2)$$

где функция $f_L(m)$ описывает основной спектр масс двухфотонных систем:

$$f_L(m) = b_0 + b_1 G(b_2, b_3, m) \cdot (1 + \sum_{i=4}^6 b_i m^{2i-7}) + b_7 G(b_8, b_9, m) \cdot (1 + \sum_{i=10}^{12} b_i m^{2i-18}), \quad (3)$$

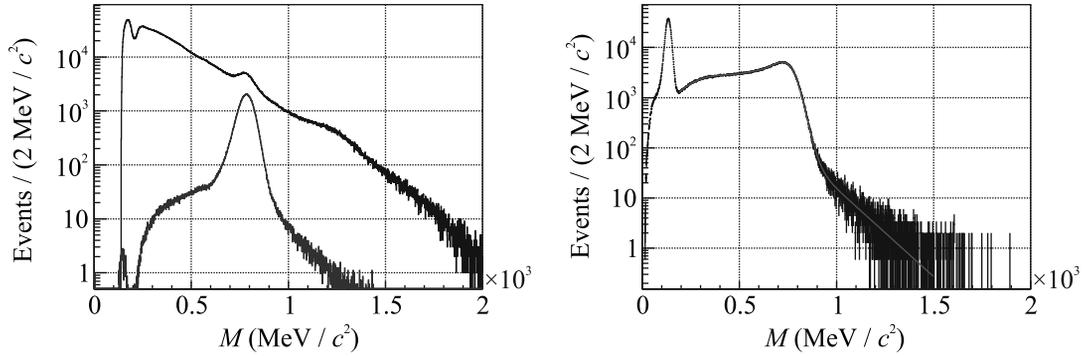


Рис. 3. (Цветной онлайн) Слева: экспериментальный спектр масс $\pi^0\gamma$ -событий на бериллиевой мишени, идентифицированных в результате проведенного 1С-фита (черная линия), и аналогичный спектр от распада $\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma$, полученный с помощью МК моделирования с соответствующей нормировкой (синяя линия). Справа: спектр масс 2γ -событий, полученных с помощью МК моделирования распада $\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma$. Красной линией изображена фитирующая функция (1), см. гл. 3

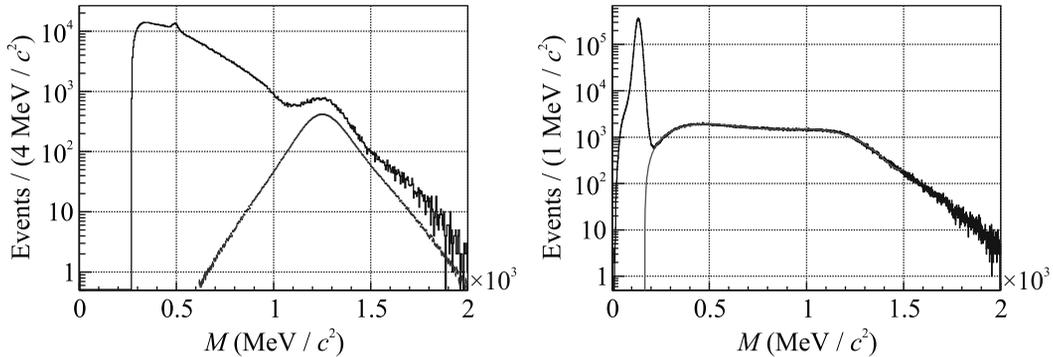


Рис. 4. (Цветной онлайн) Слева: экспериментальный спектр масс $2\pi^0$ -событий на бериллиевой мишени, идентифицированных в результате проведенного 2С-фита (черная линия), и аналогичный спектр от распада $f_2(1270) \rightarrow 2\pi^0$, полученный с помощью МК моделирования с соответствующей нормировкой (синяя линия). Справа: спектр масс 2γ -событий, полученных с помощью МК моделирования распада $f_2(1270) \rightarrow 2\pi^0$. Красной линией изображена фитирующая функция (6), см. гл. 3

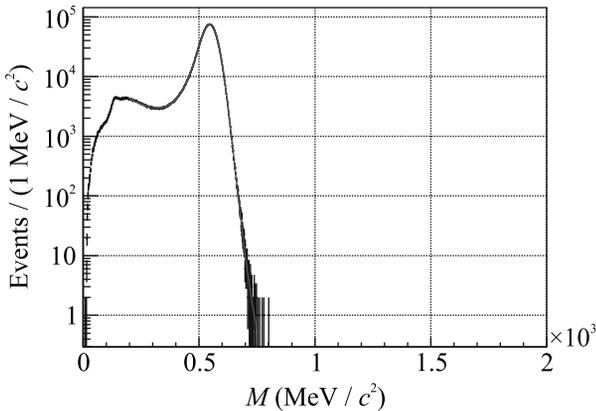


Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектр масс 2γ -событий, полученных с помощью МК моделирования распадов $\eta \rightarrow 2\gamma, \eta \rightarrow 3\pi^0$. Красной линией изображена фитирующая функция (1)

а функция

$$f_R(m) = b_{13} \exp(-b_{14}m) + b_{15} \exp(-b_{16}m) \quad (4)$$

– правую часть этого спектра. Здесь и далее G обозначает ненормированную функцию Гаусса со средним значением α и дисперсией δ^2

$$G(\alpha, \delta, x) = \exp(-0.5(x - \alpha)^2/\delta^2). \quad (5)$$

Для параметризации двухфотонного спектра масс от распада $f_2(1270) \rightarrow 2\pi^0$ было проведено МК моделирование рождения $f_2(1270)$ мезона и его распада по указанному каналу. Было сгенерировано по 7.5×10^6 распадов на бериллиевой и углеродной мишенях. Спектр отобранных двухфотонных событий на бериллиевой мишени представлен на рис. 4 справа. Эмпирическая функция в терминах параметров c_i

$$f_{f_2}(m) = \sum_{i=0}^2 c_i m^i + c_3 G(c_4, c_5, m) + c_6 G(c_7, c_8, m) \cdot (1 + c_9 m), \quad (6)$$

использованная для фитирования спектров, показана на рис. 4 красной линией.

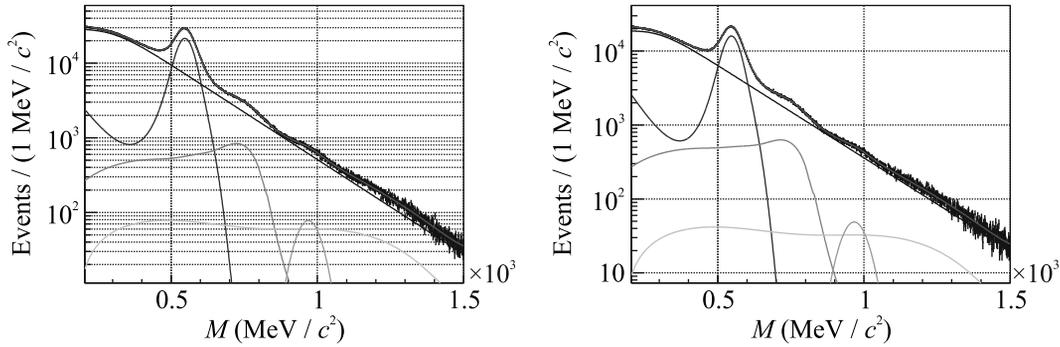


Рис. 6. (Цветной онлайн) Спектр масс 2γ -событий на бериллиевой (слева) и углеродной (справа) мишенях. Красной линией показана фитирующая функция (7). Черной линией показан вклад от нерезонансных событий (8). Синей линией показан вклад от нейтральных распадов η -мезона (1). Зеленым цветом показан вклад от распада $\omega(782)$ -мезона (2). Желтой линией показан вклад от распада $f_2(1270)$ -мезона (6). Бирюзовым цветом показан вклад от 2γ -распада $\eta'(958)$

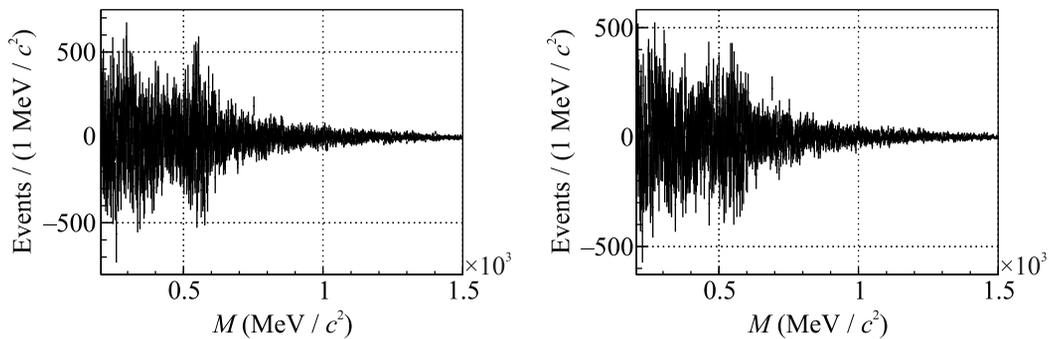


Рис. 7. Разность двухфотонного спектра масс и фитирующей функции (7): слева – для бериллиевой мишени, справа – для углеродной мишени

Наконец, вклад от распада $\eta'(958) \rightarrow 2\gamma$ был учтен с помощью функции Гаусса (5) в силу небольшого числа наблюдаемых распадов.

Двухфотонные спектры масс, полученные в эксперименте на бериллиевой и углеродной мишенях, были профитированы суммой $f_{\text{tot}}(m)$ рассмотренных выше оптимально параметризованных МК вкладов от распадов: $\eta \rightarrow 2\gamma$, $\eta \rightarrow 3\pi^0$, $\omega(782) \rightarrow \pi^0\gamma$, $f_2(1270) \rightarrow 2\pi^0$, $\eta'(958) \rightarrow 2\gamma$ со свободными (фитируемыми) параметрами нормировки, и гладкой функции $f_{NR}(m)$, дополнительно введенной для описания различных нерезонансных процессов:

$$f_{\text{tot}}(m) = p_0 f_{\eta}(m) + p_1 f_{\omega}(m) + p_2 f_{f_2}(m) + p_3 f_{\eta'(958)}(m) + f_{NR}(m), \quad (7)$$

где функция $f_{NR}(m)$ была подобранная эмпирически. Она имеет вид:

$$f_{NR}(m) = p_4 \exp(-p_5 m) + p_6 G(p_7, p_8, m), \quad (8)$$

а ее параметры включены в процедуру фитирования экспериментальных спектров наряду с параметрами нормировок p_{0-3} в функции (7). Резуль-

таты фитирования этой функции спектров на бериллиевой и углеродной мишенях представлены на рис. 6. Качество фитирования экспериментальных 2γ -спектров высокое, оно характеризуется статистиками $\chi^2/\text{ndf} = 1332.24/1278$ и $\chi^2/\text{ndf} = 1327.14/1278$ на бериллиевой и углеродной мишенях, соответственно.

На рисунке 7 приведены разности экспериментальных спектров и фитирующих функций для бериллиевой и углеродной мишеней. Хорошо видно, что на гистограммах отсутствуют сколь-нибудь значимые локальные избытки событий. Откуда можно сделать вывод, что для описания экспериментальных 2γ -спектров на обеих мишенях вполне достаточно вкладов, рассмотренных выше процессов.

4. Поиск аномальных структур. Как видно из рис. 7, какие-либо дополнительные визуально определяемые пики в двухфотонном спектре масс на бериллиевой и углеродной мишенях отсутствуют. Для количественной оценки возможного вклада неизвестного состояния в рассматриваемые спектры к фитирующей функции (7) была добавлена функция Гаусса с нормировкой n_R , средним значением m_R и сред-

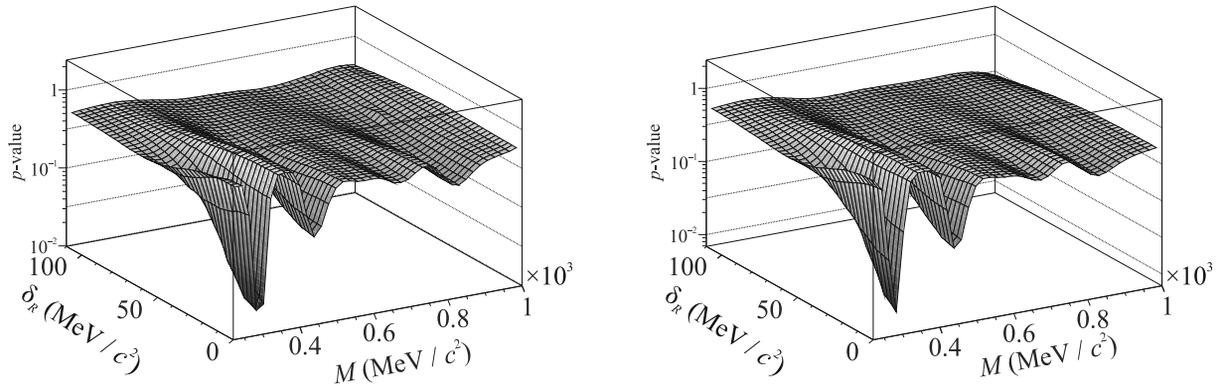


Рис. 8. (Цветной онлайн) Значения p -статистики в зависимости от массы резонанса m_R и его среднеквадратичного отклонения δ_R . Слева – на бериллиевой мишени, справа – на углеродной мишени

неквадратичным отклонением $\delta = \sqrt{\delta_R^2 + \delta_A^2}$, где δ_A описывает разрешение установки, а δ_R описывает собственную ширину состояния:

$$f_R(m) = f_{\text{tot}}(m) + n_R G\left(m_R, \sqrt{\delta_R^2 + \delta_A^2}, m\right). \quad (9)$$

Разрешение установки δ_A было оценено с помощью МК моделирования распадов узкого двухфотонного резонанса. Для серии значений массы резонанса m_R пики в реконструированных двухфотонных спектрах были профитированы функцией Гаусса (5). Полученные значения δ_A изменяются линейно от 12 до 55 МэВ/ c^2 в диапазоне массы от 135 до 1000 МэВ/ c^2 .

Для поиска возможных 2γ -резонансов была проведена серия фитирований 2γ -спектров функцией (9) с фиксированными массой m_R и среднеквадратичным отклонением δ_R . Для каждой точки (m_R, δ_R) в результате была определена величина нормировки n_R и ее статистическая ошибка δ_{n_R} , которые были использованы для вычисления, так называемой, p -статистики, представляющей собой вероятность статистической флуктуации, воспроизводящей или превышающей данные, при условии верности нуль-гипотезы H_0 . Нуль-гипотеза H_0 состоит в отсутствии сигнала с параметрами (m_R, δ_R) , см. подробнее, например, в обзоре [26]. Величина p -статистики оценивается, исходя из полученного количества резонансов $n_R \pm \delta_{n_R}$, по формуле:

$$p = 1 - \int_{-\infty}^{n_R} f_G(0, \delta_{n_R}, x) dx, \quad (10)$$

где интеграл представляет собой кумулятивную функцию нормированного на 1 распределения Гаусса со средним 0 и среднеквадратичным отклонением δ_{n_R} . Полученные значения p -статистики в

зависимости от параметров резонанса m_R и δ_R на бериллиевой и углеродной мишенях представлены на рис. 8. Области локальных минимумов соответствуют значениям m_R и δ_R с наибольшей значимостью искомого сигнала (минимальной вероятностью нулевой гипотезы). Так, значение $p = 1.59 \times 10^{-1}$ соответствует 1δ -значимости сигнала, $p = 2.28 \times 10^{-2} - 2\delta$ -значимости, а $p = 1.35 \times 10^{-3} - 3\delta$ -значимости. Из рисунка 8 видно, что наблюдаются 3 локальных минимума, соответствующих массам возможных резонансов 300, 450 и 800 МэВ/ c^2 , для каждого из которых значение p -статистики превышает величину 10^{-2} , т.е. статистическая значимость этих резонансов заведомо не превышает 3 стандартных отклонений.

В окрестностях локальных минимумов было проведено фитирование двухфотонных спектров функцией (9) со свободными параметрами n_R , m_R и δ_R . В результате для каждого из минимумов были определены все перечисленные параметры, а также количество распадов $N_{R \rightarrow 2\gamma}$. При этом следует отметить, что полученные значения параметров δ_R в пределах статистических погрешностей равны нулю. Это проявляется, в частности, и в наблюдаемой чисто аппаратной ширине указанных пиков. Нормировав далее числа резонансов на число $N_{\eta \rightarrow 2\gamma}$ наблюдаемых в этих же спектрах распадов $\eta \rightarrow 2\gamma$ с поправкой на эффективность их регистрации, получаем оценку отношения сечений образования искомого резонанса R к сечению образования η мезона в их двухфотонных модах распада:

$$\begin{aligned} \rho(R \rightarrow 2\gamma / \eta \rightarrow 2\gamma) &= \frac{\sigma(R) \cdot BR(R \rightarrow 2\gamma)}{\sigma(\eta) \cdot BR(\eta \rightarrow 2\gamma)} = \\ &= \frac{N_{R \rightarrow 2\gamma} / \varepsilon_{R \rightarrow 2\gamma}}{N_{\eta \rightarrow 2\gamma} / \varepsilon_{\eta \rightarrow 2\gamma}}, \end{aligned} \quad (11)$$

где $\varepsilon_{R \rightarrow 2\gamma}$ – эффективность регистрации резонанса R , а $\varepsilon_{\eta \rightarrow 2\gamma}$ – эффективность регистрации η мезона в двухфотонной моде распада. Оценки эффективности проведены с помощью МК моделирования. Полученные в результате значения параметров резонансов, а также их сечений с последующим двухфотонным распадом по отношению к сечению образования η мезона в двухфотонной моде распада, приведены в табл. 1. Как видно из табл. 1, во всех потенциально интересных областях масс двухфотонных систем в интервале от 200 до 1000 МэВ/ c^2 измеренный уровень экстра-резонансных состояний не превышает величины в 2.5 стандартных отклонения от физического фона, обусловленного хорошо известными процессами.

Таблица 1. Результаты поиска неизвестных резонансов в двухфотонном спектре масс на бериллиевой и углеродной мишенях, обозначения см. в основном тексте

m_R , МэВ/ c^2	$N_{R \rightarrow 2\gamma}$	$\rho(R \rightarrow 2\gamma/\eta \rightarrow 2\gamma)$, 95%CL
Бериллиевая мишень		
297 ± 7	3629 ± 1450	$< 3.1 \times 10^{-3}$
447 ± 30	1523 ± 1294	$< 2.1 \times 10^{-3}$
830 ± 44	343 ± 537	$< 1.1 \times 10^{-3}$
Углеродная мишень		
285 ± 8	2746 ± 1206	$< 3.2 \times 10^{-3}$
450 ± 36	1639 ± 1074	$< 2.7 \times 10^{-3}$
835 ± 41	219 ± 441	$< 1.1 \times 10^{-3}$

Заключение. В представленной работе проведен поиск аномальных резонансных бозонных состояний, являющихся следствием нетривиальной динамики взаимодействия частиц в поле ядра или проявлением связанных состояний легких кварков, описывающихся абелевым $U(1)$ калибровочным взаимодействием с конфайнментом. Поиск резонансов, образующихся в π^+A взаимодействиях при импульсе 7 ГэВ/ c , выполнен в распадах на пары фотонов. Указаний на наличие статистически обеспеченного избытка событий в области масс 200–1000 МэВ/ c^2 не обнаружено. Получено ограничение сверху на отношение сечений образования экстра-структур (резонансов) к сечению образования η мезона с последующими их двухфотонными распадами на уровне 3.2×10^{-3} (95% CL) для бериллиевой и углеродной мишеней.

Данная работа выполнена за счет гранта Российского научного фонда # 22-12-00095, <https://rscf.ru/project/22-12-00095/>.

2. N. E. Booth, A. Abashian and K. M. Crowe, Phys. Rev. Lett. **7**, 35 (1961).
3. R. J. Homer, Q. H. Khan, W. K. McFarlane, J. S. C. McKee, A. W. O'Dell, L. Riddiford, P. G. Williams, and D. Griffiths, Phys. Lett. **9**, 72 (1964).
4. J. H. Hall, T. A. Murray, and L. Riddiford, Nucl. Phys. B **12**, 573 (1969).
5. J. Banaigs, J. Berger, L. Goldzahl, T. Risser, L. Vu-Hai, M. Cottureau, and C. Le Brun, Nucl. Phys. B **67**, 1 (1973).
6. I. Bar-Nir, E. Burkhardt, H. Filthuth, H. Oberlack, A. Putzer, P. Ang, G. Alexander, O. Benary, S. Dagan, J. Grunhaus, L. D. Jacobs, A. Levy, D. Lissauer, and I. Stumer, Nucl. Phys. B **54**, 17 (1973).
7. S. Cho, T. Hyodo, D. Jido, C. M. Ko, S. H. Lee, S. Maeda, K. Miyahara, K. Morita, M. Nielsen, A. Ohnishi, T. Sekihara, T. Song, S. Yasui, and K. Yazaki, Prog. Part. Nucl. Phys. **95**, 279 (2017).
8. P. Adlarson, W. Augustyniak, W. Bardan et al. (WASA-at-COSY Collaboration), Phys. Lett. B **721**, 229 (2013).
9. A. Codino and F. Plouin, LNS-PH-94-06.
10. K. U. Abraamyan, A. B. Anisimov, M. I. Baznat, K. K. Gudima, M. A. Kozhin, V. I. Kukulin, M. A. Nazarenko, S. G. Reznikov, and A. S. Sorin, Eur. Phys. J. A **52**, 259 (2016).
11. J. L. Feng, T. M. P. Tait, and C. B. Verhaaren, Phys. Rev. D **102**(3), 036016 (2020).
12. A. J. Krasznahorkay, A. Krasznahorkay, M. Begala, M. Csatlós, L. Csige, J. Gulyás, A. Krakó, J. Timár, I. Rajta, I. Vajda, and N. J. Sas, Phys. Rev. C **106**(6), L061601 (2022).
13. E. van Beveren and G. Rupp, arXiv:1102.1863 [hep-ph].
14. E. van Beveren and G. Rupp, arXiv:1202.1739 [hep-ph].
15. K. Abraamyan, C. Austin, M. Baznat, K. Gudima, M. Kozhin, S. Reznikov, and A. Sorin, EPJ Web Conf. **204**, 08004 (2019).
16. C. Y. Wong, Front. Phys. (Beijing) **18**(6), 64401 (2023).
17. A. A. Aseev, M. Yu. Bogolyubskii, V. A. Viktorov et al. (Hyperon-M Collaboration), IHEP Preprint # 2002-3, Inst. High Energ. Phys., Protvino (2002).
18. M. Yu. Bogolyubskii, V. A. Viktorov, V. S. Petrov et al., (Hyperon-M Collaboration), Instrum. Exp. Tech. **49**, 61 (2006).
19. M. Yu. Bogolyubsky, V. A. Viktorov, V. A. Onuchin et al. (Hyperon-M Collaboration), Instrum. Exp. Tech. **50**, 664 (2007).
20. S. A. Akimenko, A. V. Bannikov, V. I. Belousov, A. M. Blik, V. N. Kolosov, V. M. Kutin, Z. V. Krumshtein, A. I. Pavlinov, and A. S. Solovov, Instrum. Exp. Tech. **27**, 63 (1984).
21. V. Yu. Batusov and N. L. Rusakovich, JINR Preprint R1-95-423, JINR, Dubna (1995).

1. A. Abashian, N. E. Booth, and K. M. Crowe, Phys. Rev. Lett. **5**, 258 (1960).

22. M. Yu. Bogolyubskii, D. I. Patalakha, B. V. Polishchuk, S. A. Sadovsky, M. V. Stolpovsky, and Y. V. Kharlov, *Instrum. Exp. Tech.* **54**, 682 (2011).
23. M. Y. Bogolyubsky, S. V. Evdokimov, V. I. Izucheev, D. I. Patalakha, B. V. Polishchuk, S. A. Sadovsky, A. S. Soloviev, M. V. Stolpovsky, Y. V. Kharlov and N. A. Kuzmin, *Phys. At. Nucl.* **76**, 1324 (2013).
24. S. V. Evdokimov, V. I. Izucheev, E. S. Kondratyuk, B. V. Polishchuk, S. A. Sadovsky, Y. V. Kharlov, and A. A. Shangaraev, *Pis'ma v ZhETF* **113**(5), 291 (2021) [*JETP Lett.* **113**(5), 289 (2021)].
25. S. V. Evdokimov, V. I. Izucheev, E. S. Kondratyuk, B. V. Polishchuk, S. A. Sadovsky, A. A. Shangaraev, and Y. V. Kharlov, *Phys. At. Nucl.* **84**(9), 1647 (2021).
26. R. L. Workman, V. D. Burkert, V. Crede et al. (Particle Data Group), *PTEP* **2022**, 083C01 (2022).

Size-dependent one- and two-photon fluorescence of acetonitrile-derived carbon dots

A. A. Astafiev⁺¹⁾, A. M. Shakhov⁺, V. A. Nadtochenko^{+*}

⁺*N. N. Semenov Federal Research Center for Chemical Physics, Russian Academy of Sciences, 119991 Moscow, Russia*

^{*}*Chemistry Department, Moscow State University, 119991 Moscow, Russia*

Submitted 7 September 2023

Resubmitted 27 September 2023

Accepted 28 September 2023

DOI: 10.31857/S1234567823210024, EDN: prpaol

Carbon dots (CD) – carbonaceous luminescent nanoparticles – are increasingly employed in bioimaging, fluorescent sensing, photocatalysis, and light emitting devices [1–3]. Photoluminescence mechanisms of CD are versatile and include contributions from the quantum confinement effects, surface groups and defects, heteroatoms and organic molecular fluorophores in their structure [4, 5]. In addition to linear excitation luminescence of CD can be excited by nonlinear absorption of ultrashort laser pulses. Nonlinearly excited luminescence of CD is important for fluorescent imaging and photocatalysis. Previous works demonstrated that characteristics and mechanism of nonlinear luminescence of CD can be different from luminescence excited by linear absorption [6].

There is a demand for tailoring optical properties of CD for various applications. The nanoparticle size is the key morphological parameter, affecting optical properties of carbon dots and this size can be controlled with synthetic procedures or size separation techniques. Given diverse absorption and luminescence mechanism of CD the effect of the size is not straightforward and can vary for different types of carbon dots. This effect can also elucidate the mechanism of CD luminescence [7].

Previously we demonstrated that femtosecond pulsed laser synthesis in liquid medium is a viable method for production of CD from simple organic precursors [8, 9]. It is instructive to analyze the relation between the size and optical properties of laser-synthesized CD. For this purpose we chose carbon dots obtained by laser synthesis from acetonitrile [9]. Acetonitrile carbon dots were polydisperse colloidal nanoparticles with diameters in the nanometers range. We used dialysis of CD's aqueous solution in 2 and

10 kDa dialysis containers to separate the sample into three fractions: “small” or CD-1, “medium” or CD-2 and “large” or CD-3 (Fig. 1a). Then chemical composition and optical properties of the fractions were analyzed in comparison with the original sample.

Elemental analysis and infrared microscopy revealed that the three fractions had elemental content and chemical groups similar to the original CD sample. All the fractions exhibited broad and featureless absorption spectrum spanning the ultraviolet (UV) and visible range and bright visible fluorescence. Their fluorescence was multicomponent and its emission maxima shifted from deep blue to yellow spectral region with increase of the excitation wavelength. The strongest fluorescence intensity was emitted under excitation at 340–350 nm with peak emission intensity at 420–430 nm. The fluorescence lifetime was within nanoseconds range.

Carbon dot size influenced optical properties of CD: larger size led to stronger broadband visible and near-UV absorption, red shift of excitation and emission spectra, stronger green fluorescence, shorter fluorescence lifetimes and exerted effect of opposing directions on quantum yields of different components of heterogeneous photoluminescence emission. Size-dependent shifts of excitation and emission peaks were too small (< 0.12 eV) to support quantum confinement effects in CD. We explain the influence of the nanoparticle diameter with a number of effects, including size-dependent shifts of CD's energy levels, accumulation of nanographene domain and resonance energy transfer in large carbon dots.

Carbon dots emitted visible fluorescence excited by two-photon absorption of femtosecond laser pulses of the near-infrared range. Two-photon fluorescence (TPF) spectra were excitation-dependent and shifted to longer wavelength with increase of the excitation laser wavelength. TPF spectra were always broader and redshifted

¹⁾e-mail: astafiev.artiom@gmail.com

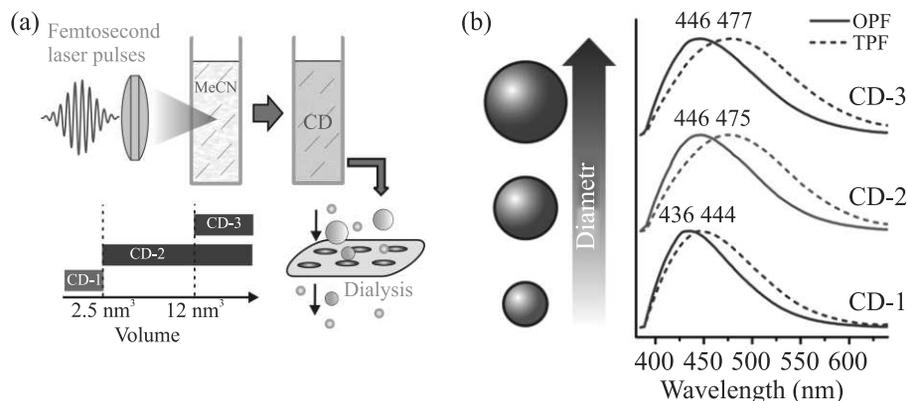


Fig. 1. (Color online) (a) – Laser synthesis of carbon dots and their separation into fractions by dialysis. (b) – Comparison of spectra of one-photon (OPF – solid lines) and two-photon (TPF – dashed lines) excited fluorescence of the fractions in ethanol. OPF was excited by femtosecond laser pulses centered at 360 nm, TPF – by pulses at 720 nm

compared with one-photon fluorescence (OPF) spectra, excited at doubled frequency (Fig. 1b). The magnitude of difference between TPF and OPF was larger for carbon dots of larger diameters. TPF lifetimes were always shorter than OPF lifetimes.

We explain the difference between TPF and OPF characteristics with heterogeneity of CD emission, which can be represented as a sum of emission of diverse fluorescence centers, having different excitation and emission spectra. Variation in one- and two-photon absorption cross-section leads to varied contributions from different centers in the OPF and TPF spectra. Centers with emission spectra shifted to longer wavelengths make larger contributions to the TPF, which results in broadening and red shift of TPF spectra.

In conclusion, we analyzed optical properties of the size fractions of acetonitrile-derived carbon dots. Although quantum confinement effects for this type of carbon dots were discarded, the nanoparticle size still exerted considerable influence on their absorption and luminescence characteristics. We found a systematic difference in spectra and lifetimes of one- and two-photon fluorescence, and showed that it can be explained with a simple model of heterogeneous emission.

The work was supported by the Russian Scientific Foundation grant # 21-72-20169. The measurements were performed in the Federal Research Center for Chemical Physics shared research facilities # 506694 and large-scale research facilities # 1440743.

This is an excerpt of the article “Size-dependent one- and two-photon fluorescence of acetonitrile-derived carbon dots”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023602798

1. Y. Song, S. Zhu, and B. Yang, *RSC Adv.* **4**, 27184 (2014).
2. R. Wang, K.-Q. Lu, Z.-R. Tang, and Y.-J. Xu, *J. Mater. Chem. A* **5**, 3717 (2017).
3. X. Zhang, Y. Zhang, Y. Wang, S. Kalytchuk, S. V. Kershaw, Y. Wang, P. Wang, T. Zhang, Y. Zhao, H. Zhang, T. Cui, Y. Wang, J. Zhao, W. W. Yu, and A. L. Rogach, *ACS Nano* **7**, 11234 (2013).
4. S. Zhu, Y. Song, X. Zhao, J. Shao, J. Zhang, and B. Yang, *Nano Research* **8**, 355 (2015).
5. C. M. Carbonaro, R. Corpino, M. Salis, F. Mocchi, S. V. Thakkar, C. Olla, and P. C. Ricci C **5**, 60 (2019).
6. C. I. M. Santos, I. F. A. Mariz, S. N. Pinto, G. Goncalves, I. Bdikin, P. A. A. P. Marques, M. G. P. M. S. Neves, J. M. G. Martinho, and E. M. S. Macôas, *Nanoscale* **10**, 12505 (2018).
7. J. B. Essner, J. A. Kist, L. Polo-Parada, G. A. Baker, *Chem. Mat.* **30**, 1878 (2018).
8. A. A. Astafiev, A. M. Shakhov, A. A. Vasin, Yu. V. Kostina, and V. A. Nadtochenko, *JETP Lett.* **110**, 464 (2019).
9. A. A. Astafiev, A. M. Shakhov, A. S. Kritchenkov, V. N. Khrustalev, D. V. Shepel, V. A. Nadtochenko, and A. G. Tskhovrebov, *Dyes and Pigments* **188**, 109176 (2021).

Идентификация оптически активных квартетных спиновых центров на основе вакансии кремния в SiC, перспективных для квантовых технологий

Р. А. Бабунц⁺, Ю. А. Успенская⁺¹⁾, А. П. Бундакова⁺, Г. В. Мамин^{*}, Е. Н. Мохов⁺, П. Г. Баранов⁺

⁺Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

^{*}Казанский (Приволжский) федеральный университет, 420008 Казань, Россия

Поступила в редакцию 8 сентября 2023 г.

После переработки 9 октября 2023 г.

Принята к публикации 11 октября 2023 г.

В карбиде кремния идентифицированы оптически активные (яркие) и оптически пассивные (темные) квартетные спиновые центры окраски с $S = 3/2$, включающие отрицательно заряженную вакансию кремния. Использовался высокочастотный двойной электронно-ядерный резонанс на ядрах изотопа ^{13}C , усиленный десятикратным увеличением содержания этого изотопа. В ярком центре, перспективном для квантовых технологий, происходит оптически индуцированное выстраивание населенностей спиновых уровней, тогда как для темного центра, представляющего собой изолированную отрицательно заряженную вакансию кремния V_{Si}^- , населенности спиновых уровней соответствуют больцмановскому распределению и не изменяются при оптическом возбуждении.

DOI: 10.31857/S1234567823210036, EDN: prqecv

Карбид кремния (SiC) является широкозонным полупроводниковым материалом с хорошо развитой технологией производства электронных устройств для применения их в экстремальных условиях окружающей среды. В SiC имеются два семейства спиновых центров окраски, триплетные с $S = 1$ и квартетные с $S = 3/2$, обладающих уникальным свойством оптического выстраивания населенностей спиновых уровней при комнатной температуре, что чрезвычайно перспективно в квантовых технологиях при создании интерфейсов свет-материя для работы в условиях окружающей среды [1–13]. Оптическое выстраивание приводит к заселению спиновых уровней с суммарной проекцией спинов $\Sigma M_S = 0$, т.е. для $S = 1$ заселяется уровень с $M_S = 0$, для $S = 3/2$ заселяются одинаково уровни каждого Крамерсова дублета с $M_S = \pm 1/2$ или $M_S = \pm 3/2$, причем, выстраивание реализуется как в нулевом магнитном поле, так и в сильных магнитных полях (в настоящих экспериментах используются магнитные поля вплоть до 5 Тл).

Ранее мы представили результаты исследований электронно-ядерных взаимодействий методами высокочастотного двойного электронно-ядерного резонанса (ДЭЯР) и релаксационных спиновых процессов [14, 15] в семействе триплетных спиновых центров, в виде нейтрально заряженных дивакансий, ис-

пользуя кристаллы 6H-SiC, десятикратно обогащенные изотопом ^{13}C , обладающим ядерным магнитным моментом. В настоящей работе будет рассмотрено семейство аксиальных квартетных спиновых центров с $S = 3/2$ в подобном кристалле 6H-SiC (12 % ^{13}C). Эти центры представляют собой отрицательно заряженную вакансию кремния, занимающую одну из трех кристаллических позиций (квази-кубические k1, k2 и гексагональную h), возмущенную дефектом в непарамагнитном состоянии, расположенным вдоль оси c кристалла и не связанным ковалентно с вакансией кремния [8, 11]. Высокочастотный ДЭЯР использовался нами для исследования сверхтонких (СТ) взаимодействий квартетных спиновых в различных поли типах SiC с природным содержанием изотопов [8, 16], при этом основная информация была получена для СТ взаимодействий с кремнием ^{29}Si . Для СТ взаимодействия с изотопом углерода ^{13}C была получена ограниченная информация в виду малого природного содержания этого изотопа.

Имеется серьезная дискуссия об установлении окончательной структуры спиновых центров с $S = 3/2$ в SiC, в которых наблюдается оптически индуцированное выстраивание населенностей спиновых уровней, что приводит к исключительной важности этой системы для применения в квантовых технологиях. Такие центры мы называем “яркими центрами”. Имеется консенсус, что главным элементом

¹⁾e-mail: yulia.uspensskaya@mail.ioffe.ru

в этой структуре является отрицательно заряженная вакансия кремния, располагающаяся в разных кристаллических позициях гексагонального или ромбического политипа SiC, обладающая электронным спином $S = 3/2$. Об этом свидетельствуют близкие значения анизотропных СТ взаимодействий для ближайших к вакансии кремния четырех атомов углерода, а также примерно одинаковые изотропные СТ взаимодействия с двенадцатью атомами кремния во второй координационной сфере. В соответствии с результатами ДЭЯР величина спина $S = 3/2$, что характерно для отрицательно заряженной вакансии кремния. Самая простая точка зрения заключается в том, что эта изолированная отрицательно заряженная вакансия кремния V_{Si}^- и анизотропия тонкой структуры определяется аксиальной составляющей кристаллического поля в разных кристаллических позициях [17]. Однако отрицательно заряженная изолированная вакансия кремния в SiC со спином $S = 3/2$ известна [18] и хорошо изучена, расщепление тонкой структуры равно нулю, имеется минимальная анизотропия g -фактора [19], но в этих работах никаких оптически индуцированных эффектов, связанных с этой вакансией V_{Si}^- , не наблюдалось. Другая точка зрения для объяснения структуры спинового центра с $S = 3/2$ с уникальными магнитно-оптическими свойствами, ранее предложенная нами [8, 11], заключается в том, что в направлении оси c (оси симметрии спинового центра) располагается возмущение в виде нейтрально заряженного дефекта с нулевым электронным спином, приводящее к наблюдаемой анизотропии и необычным магнитно-оптическим свойствам. Мы предполагали, что это нейтральная углеродная вакансия с нулевым электронным спином, не связанная ковалентно с вакансией кремния. Теоретические расчеты [20] представили модель, где роль упомянутого дефекта возмущения может играть дефект перестановки (антисайт), изоэлектронный атом кремния в позиции углерода, что также является возможным объяснением, поскольку не противоречит главному выводу о том, что изолированная отрицательно заряженная вакансия со спином $3/2$ не является оптически активной структурой, поэтому названа нами “темным центром”.

В настоящей работе на основе измерений СТ взаимодействий в спектрах высокочастотного ДЭЯР в кристаллах гексагонального политипа 6H-SiC, усиленных десятикратным обогащением изотопом ^{13}C с ядерным магнитным моментом, идентифицированы оптически активные (яркие) спиновые центры окраски, в которых проявляются эффекты оптического

выстраивания населенностей спиновых уровней и оптически пассивные (темные) спиновые центры окраски. При этом все центры характеризуются квартетной системой спиновых уровней с $S = 3/2$ и имеют в своей основе отрицательно заряженную вакансию кремния.

Центры окраски с $S = 3/2$ были введены в монокристаллы 6H-SiC, обогащенные изотопом ^{13}C до 12% (природное содержание ^{13}C 1.1%) путем облучения кристалла электронами с энергией 2 МэВ и потоком $\sim 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Принято обозначать центры окраски со спином $S = 3/2$ по соответствующим бесфонным линиям фотолуминесценции (ФЛ), V1, V2, V3 центры в 6H-SiC [11], которые приведены на рис. 1а. Эти центры окраски обладают аксиальной симметрией вдоль c оси кристалла. Поскольку параметры тонкой структуры для центров V1 и V3 имеют практически совпадающие значения, мы в дальнейшем будем их обозначать как V1/V3. Концентрация изотопа ^{13}C непосредственно в кристаллической решетке 6H-SiC оценивалась по относительной интенсивности сателлитов, обусловленных СТ взаимодействием с ^{13}C , в спектре электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) изолированной отрицательно заряженной вакансии кремния V_{Si}^- [14].

Спектры ЭПР и ДЭЯР регистрировались на спектрометре Bruker Elexsys 680 по электронному спиновому эху (ЭСЭ) в диапазоне 94 ГГц, оптимальная последовательность $\pi/2$ - τ - π соответствовала временам 36-280-72 нс. Эксперименты по оптически детектируемому магнитному резонансу (ОДМР) выполнены на радиоспектроскопическом комплексе, созданном в ФТИ им. А. Ф. Иоффе, включающем высокочастотный спектрометр ЭПР/ОДМР диапазона 94 ГГц с использованием магнитооптического криостата замкнутого цикла, рабочие температуры 1.5–300 К, диапазон изменения магнитных полей $-7 \div +7$ Тл с переходом через нулевое значение.

На рисунке 1b приведены зарегистрированные по ЭСЭ на частоте 94 ГГц спектры ЭПР квартетных спиновых центров, $S = 3/2$, в нескольких ориентациях в магнитном поле кристалла 6H-SiC, обогащенного изотопом ^{13}C до 12%. Спектры измерялись при непрерывном оптическом лазерном возбуждении с длиной волны 808 нм, за исключением верхнего спектра, который был зарегистрирован в темноте. Спектры были измерены в ориентациях $\theta = 0^0$ ($B \parallel c$), $\theta = 10^0$ и $\theta = 70^0$. Линии V2 и V1/V3 центров отмечены стрелками, видно, что при оптическом возбуждении низкополевые сигналы V2 и V1/V3 центров имеют инвертированную фазу, что обусловлено инверсной населенностью спиновых уровней, приво-

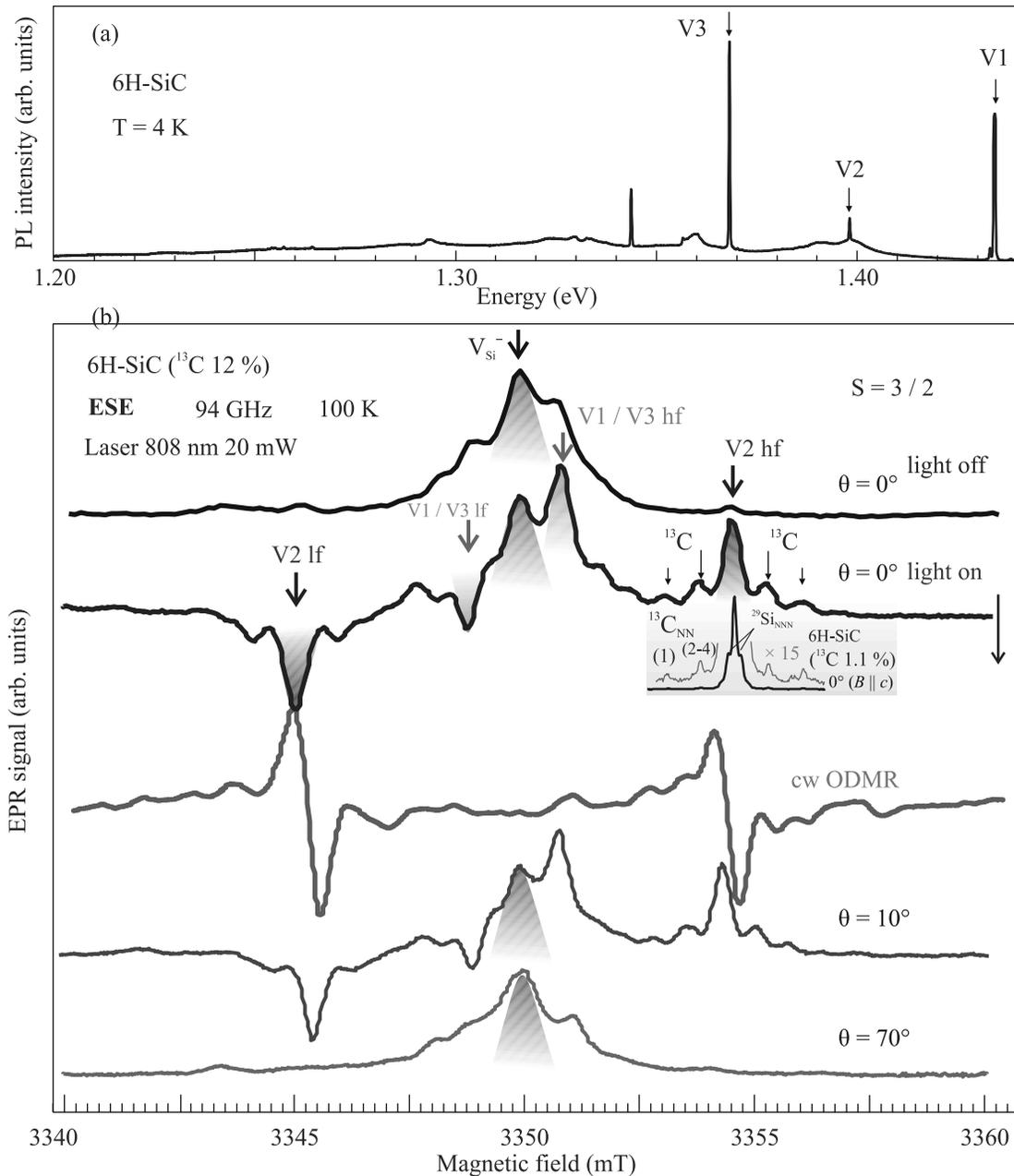


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Линии ФЛ V1, V2 и V3 центров в кристалле 6H-SiC, длина волны оптического возбуждения 795 нм. (b) – Зарегистрированные по ЭСЭ на частоте 94 ГГц спектры ЭПР квартетных спиновых центров в нескольких ориентациях кристалла 6H-SiC, обогащенного изотопом ^{13}C до 12%, в магнитном поле при непрерывном оптическом лазерном возбуждении, за исключением верхнего спектра, который был измерен в темноте. Спектры были измерены в ориентациях $\theta = 0^\circ$ ($B \parallel c$), $\theta = 10^\circ$ и $\theta = 70^\circ$. Линии V2 и V1/V3 отмечены стрелками, видно, что при оптическом возбуждении низкополевые сигналы V2 и V1/V3 центров имеют инвертированную фазу, что обусловлено инверсной населенностью спиновых уровней, приводящей к микроволновому излучению, т.е. лазерному эффекту. Центральная линия, помеченная черным цветом на всех спектрах, не изменяется, как при оптическом возбуждении, так и при изменении ориентации кристалла. На вставке приведен спектр ЭПР V2 центров, зарегистрированный в кристалле 6H-SiC с природным содержанием изотопов. Красным цветом представлен спектр ОДМР, зарегистрированный в непрерывном режиме (cw) в том же образце, что и спектры ЭСЭ в ориентации, близкой к $B \parallel c$

дущей к микроволновому излучению, т.е. мазерному эффекту [7, 11, 21]. Центральная линия, помеченная черным цветом на всех спектрах, не изменяется, как при оптическом возбуждении, так и при изменении ориентации кристалла. Более детально этот сигнал, принадлежащий изолированной отрицательно заряженной вакансии V_{Si}^- , мы обсудим ниже, опираясь на результаты ДЭЯР. Важно отметить, что амплитуда сигналов V2 и V1/V3 центров при оптическом возбуждении увеличивается многократно по сравнению с сигналами без света. В отсутствие светового возбуждения сигналы V2 и V1/V3 чрезвычайно слабые, как видно из верхнего спектра в виде черной линии. В то же время интенсивность центральной линии, принадлежащей изолированной вакансии V_{Si}^- , не изменяется при включении оптического возбуждения. Видно, что при выключенном свете отношение интенсивностей V2 и V1/V3 центров к интенсивности центральной линии, соответствующей V_{Si}^- центрам, чрезвычайно мало, которое примерно соответствует относительным концентрациям упомянутых центров (сравнение при включенном свете не отражает относительные концентрации, поскольку при оптическом выстраивании населенности спиновых уровней V2 и V1/V3 центров значительно отклоняется от бальмановского распределения, в то же время для V_{Si}^- центров сохраняется бальмановское распределение). Таким образом, из спектра ЭПР без светового возбуждения следует, что концентрация темных центров в виде изолированных вакансий V_{Si}^- примерно на порядок больше концентрации ярких центров V2 и V1/V3. Для всех сигналов ЭПР, связанных с отрицательно заряженной вакансией кремния, наблюдаются симметричные сателлиты, обусловленные анизотропным СТ взаимодействием с ядром ^{13}C , которое занимает случайным образом одну из четырех позиций углерода в ближайшем окружении вакансии кремния, обозначенные как C_{NN} (NN – *nearest neighbor*). Относительная интенсивность этих сателлитов по отношению к центральной линии (которая соответствует отсутствию ядра ^{13}C в ближайшем окружении вакансии кремния) десятикратно увеличилась вследствие обогащения кристалла изотопом ^{13}C , также увеличилась ширина линии ЭПР из-за СТ взаимодействия с более удаленными ядрами ^{13}C . В связи уширением линии не видны сателлиты, обусловленные взаимодействием с ядрами ^{29}Si , попадающими во вторую координационную сферу относительно вакансии кремния, атомы Si_{NNN} (NNN – *next nearest neighbor*). Для демонстрации проявления упомянутых СТ взаимодействий в спектрах ЭПР мы на вставке приводим спектр V2 центров, зарегистри-

рованный в кристалле 6H-SiC с природным содержанием изотопов. Красным цветом отмечен спектр ОДМР, зарегистрированный в непрерывном режиме (cw) в том же образце, что и спектры ЭСЭ в ориентации, близкой к $B||c$. Отметим, что поглощение и излучение микроволновой мощности приводят к одним и тем же изменениям интенсивности ФЛ спиновых центров, поскольку фаза линий ОДМР одинакова для обоих переходов.

Для описания спектров ЭПР, представленных на рис. 1, используется стандартный спиновый гамильтониан [11]:

$$\hat{H} = g_e \mu_B \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{S}} + D[\hat{S}_z^2 - (1/3)S(S+1)] + \sum_i (\hat{\mathbf{S}} \cdot \mathbf{A}_i \cdot \hat{\mathbf{I}}_i - g_{Ni} \mu_N \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{I}}_i). \quad (1)$$

Здесь $\hat{\mathbf{S}}$ – оператор спина электрона с $S = 3/2$, g_e – изотропный электронный g -фактор, равный ~ 2.00 , μ_B – магнетон Бора. Первое и второе слагаемые описывают, соответственно, электронное зеемановское взаимодействие и тонкую структуру для взаимодействия с аксиальным кристаллическим полем. Последние слагаемые под знаком суммирования описывают СТ взаимодействие и ядерное зеемановское взаимодействие для изотопов ^{13}C ($I_C = 1/2$) и ^{29}Si ($I_{Si} = 1/2$), расположенных в разных координационных сферах относительно положения вакансии кремния, g_{Ni} – g -фактор ядра i (g_N – отрицательный для ^{29}Si и положительный для ^{13}C), μ_N – ядерный магнетон. \mathbf{A}_i – тензор, описывающий СТ взаимодействие с i -ми атомами Si или C. Как уже упоминалось выше, СТ взаимодействия в первой и второй координационных сферах относительно вакансии кремния частично разрешены в спектрах ЭПР (см. рис. 1b).

Параметр D для V2-центров в 6H-SiC положительный, $D = 64$ МГц (2.3 мТл); для V1 и V3 центров расщепления тонкой структуры являются отрицательными и практически одинаковыми, $D = -14$ МГц (–0.5 мТл). Соответствие упомянутых параметров тонкой структуры определенным бесфонным линиям было установлено ранее в ряде работ (см., например, [11]). Согласно предложенной модели спиновых центров с $S = 3/2$ основную роль играет отрицательно заряженная вакансия кремния, в ближайшем окружении которой находятся четыре атома углерода, обозначенные как C_{NN} , один (1) расположен вдоль оси c кристалла и три атома (2–4) расположены в эквивалентных позициях вдоль связей, отвернутых на 70° от оси c . Параметры СТ структуры для взаимодействия с ядерным магнитным моментом изотопа ^{13}C (расположенным вдоль оси c кристалла) равны: $A_{||} = 80.1$ МГц (2.86 мТл);

$A_{\perp} = 37.5$ МГц (1.34 мТл). Для атомов (2–4) СТ взаимодействие с изотопом ^{13}C имеет близкие значения, если за параллельную ось принять направление связи, отвернутой на 70° от оси c [16]. СТ структура для взаимодействия с ^{29}Si во второй координационной сфере относительно вакансии кремния (двенадцать атомов Si_{NNN}) составляет примерно 9 МГц (~ 0.3 мТл). Упомянутые СТ взаимодействия обозначены на рис. 1.

На рисунке 2 представлены зарегистрированные по ЭСЭ в диапазоне 94 ГГц в кристалле 6Н-SiC (^{13}C 12%) спектры ДЭЯР спиновых центров с $S = 3/2$ на основе отрицательно заряженной вакансии кремния: оптически активные, яркие, центры V2 и V1/V3 и оптически пассивные, темные, центры в виде изолированной отрицательно-заряженной вакансии кремния V_{Si}^- . Частоты переходов ДЭЯР, определяемые правилами отбора, $\Delta M_S = 0$ и $\Delta m_I = \pm 1$, даются формулами [12]:

$$\nu_{\text{ENDOR}_i} = h^{-1} |M_S [a_i + b_i (3 \cos^2 \theta - 1)] - g_{\text{Ni}} \mu_N B|, \quad (2)$$

где a_i и b_i – изотропная и анизотропная части СТ взаимодействия с i -м ядром, θ – угол между внешним магнитным полем B и тензором СТ взаимодействия, $|g_{\text{Ni}} \mu_N B / h|$ – ларморовская частота f_L . Компоненты тензора СТ взаимодействия могут быть выражены через изотропную a - и анизотропную b -компоненты как $A_{\parallel} = a + 2b$ и $A_{\perp} = a - b$ с аксиальной симметрией относительно оси p -функции. Из формулы (2) следует, что частоты переходов ДЭЯР определяются значениями M_S с учетом знаков, параметрами СТ структуры и величиной и знаком ядерного g -фактора g_N .

Справа на рисунке 2 показан спектр ЭПР, зарегистрированный по ЭСЭ в ориентации, близкой к $B \parallel c$ ($\theta = 0^\circ$). Видно, что в спектрах ЭПР имеются высокополевые (hf – *high field*) и низкополевые (lf – *low field*) линии для центров V2 и V1/V3, причем, при включенном оптическом возбуждении низкополевые линии инвертированы, т.е. наблюдается микроволновое излучение. Благодаря высоким магнитным полям в высокочастотном диапазоне ларморовские частоты для ядер ^{13}C и ^{29}Si хорошо разделены, что позволяет довольно точно измерять СТ взаимодействия. Более того, замечательным преимуществом кватерной спиновой системы является возможность точного определения сверхтонкого взаимодействия A по расстоянию между первой и второй линиями ДЭЯР, отстоящими от ларморовской частоты, последняя затем определяется точно по величине A , так как первая линия отстоит от ларморовской частоты на величину $A/2$. Между спектрами ДЭЯР для светлых

и темных центров имеется огромная разница. Для оптически активных спиновых центров наблюдается зеркальное отражение линий ДЭЯР, обусловленных СТ взаимодействиями с ^{13}C (или ^{29}Si), находящихся в различных координационных сферах относительно вакансии кремния, зарегистрированных по низкополевому (lf) и высокополевому (hf) переходам. При этом для темных центров спектры ДЭЯР как для ^{13}C , так и для ^{29}Si , полностью симметричны относительно соответствующих ларморовских частот. Для оптически активных спиновых центров спектры ДЭЯР для каждого изотопа также однозначно разделены благодаря селективному заселению уровней тонкой структуры с определенными значениями M_S . Определены знаки СТ взаимодействий и, как следствие, знаки осциллирующей спиновой плотности на ядрах ^{29}Si и ^{13}C . Положительным значениям СТ расщепления для ^{29}Si соответствует отрицательная спиновая плотность, а положительным значениям СТ расщепления для ^{13}C соответствует положительная спиновая плотность (также верно обратное утверждение).

Многokратное увеличение амплитуды сигналов V2 и V1/V3 центров при оптическом возбуждении, по сравнению со спектрами ЭПР в отсутствие света, а также различие в фазах низкополевых и высокополевых сигналов V2 и V1/V3 центров открывает возможность идентификации значений M_S переходов ЭПР, что позволяет определить знаки СТ взаимодействий, чрезвычайно точно фиксировать ларморовские частоты для ядер ^{13}C и ^{29}Si и, главное, однозначно идентифицировать яркие центры, в которых происходит оптически индуцированное выстраивание спинов, и выделить оптически пассивные, темные центры.

На рисунке 2 видно, что оптическое выстраивание приводит к зеркальной симметрии сигналов ДЭЯР, зарегистрированных по высокополевым и низкополевым линиям ЭПР, относительно ларморовских частот ^{13}C и ^{29}Si . Этот эффект следует из схем оптического выстраивания и энергетических уровней для светлых центров V2 и V1/V3 (рис. 3b). В то же время спектры ДЭЯР, зарегистрированные по центральной линии ЭПР с $D = 0$ (обозначенные черным цветом), обладают полной симметрией относительно ларморовских частот ^{13}C и ^{29}Si , что однозначно показывает независимость населенностей спиновых уровней от оптического воздействия, т.е. для этих центров отсутствует эффект оптического выстраивания спиновых уровней, и мы их называем “темными центрами”. Для темных центров спектры ДЭЯР зарегистрированы в двух ориентациях $B \parallel c$ и

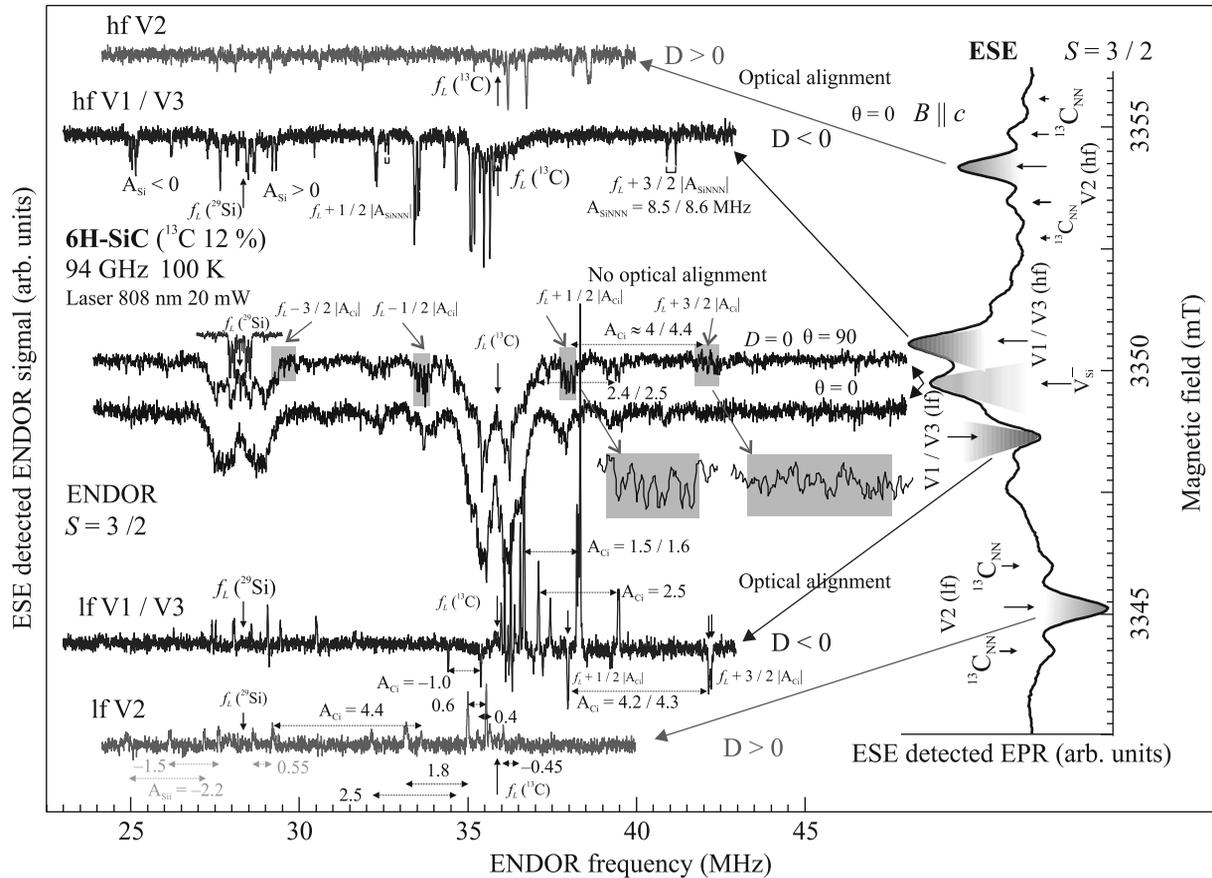


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зарегистрированные по ЭСЭ в диапазоне 94 ГГц в кристалле 6H-SiC (^{13}C 12%) спектры ДЭЯР спиновых центров с $S = 3/2$ на основе отрицательно заряженной вакансии кремния: оптически активные, яркие, центры V2 и V1/V3 (красные и синие линии, соответственно) и оптически пассивные, темные, центры (черные линии) в виде изолированной отрицательно-заряженной вакансии кремния V_{Si}^- . Измерения проводились в магнитном поле B , параллельном осям аксиальных спиновых центров, которые совпадают с кристаллической осью c , $B \parallel c$, при температуре 100 К. Спектры записаны при сканировании в области ларморовских частот для ядер ^{29}Si и ^{13}C . Для темных центров спектры ДЭЯР зарегистрированы в двух ориентациях $B \parallel c$ и $B \perp c$, для сравнения серым цветом показан фрагмент спектра ДЭЯР для V_{Si}^- , зарегистрированный в кристалле 15R-SiC, на вставках в увеличенном масштабе показаны группы линий для СТ взаимодействия с ядрами ^{13}C , константы СТ расщепления A_{Ci} находятся в пределах 4–4.4 МГц. Справа на рисунке представлены зарегистрированные по ЭСЭ спектры ЭПР спиновых центров V2, V1/V3 и V_{Si}^- с указанием стрелками магнитных полей для линий ЭПР, в которых регистрировались спектры ДЭЯР. В спектрах ЭПР имеются высокополевые (hf) и низкополевые (lf) линии для центров V2 и V1/V3, при включенном оптическом возбуждении низкополевые линии инвертированы, т.е. наблюдается микроволновое излучение. Указаны частоты в МГц для СТ взаимодействий A_{Si} и A_{Ci} с ядрами i изотопов ^{29}Si и ^{13}C , расположенных в разных координационных сферах относительно положения вакансии кремния

$B \perp c$, для сравнения серым цветом показан фрагмент спектра ДЭЯР для V_{Si}^- , полученный в кристалле 15R-SiC [16], на вставках в увеличенном масштабе показаны группы линий для СТ взаимодействия с ядрами ^{13}C , константы СТ расщепления A_{Ci} находятся в пределах 4–4.4 МГц. Приведенные спектры ДЭЯР не изменяются при включении и выключении света, в то же время, эти спектры ДЭЯР однозначно показывают, что темные центры характеризуются электронным спином $S = 3/2$. Соответствующий

вывод непосредственно следует из рис. 2, где, например, каждой линии первой группы, которая находится на расстоянии $1/2 A_{\text{Ci}}$ от ларморовской частоты ^{13}C ($f_L(^{13}\text{C})$), соответствуют линии на расстоянии $3/2 A_{\text{Ci}}$ от $f_L(^{13}\text{C})$ (выделены серым цветом). Отметим также, что основные СТ взаимодействия с ^{13}C и ^{29}Si близки по абсолютной величине к наблюдаемым для ярких центров V2 и V1/V3 (знак СТ расщепления для темных центров не может быть определен, так как переходы для разных знаков M_S не различа-

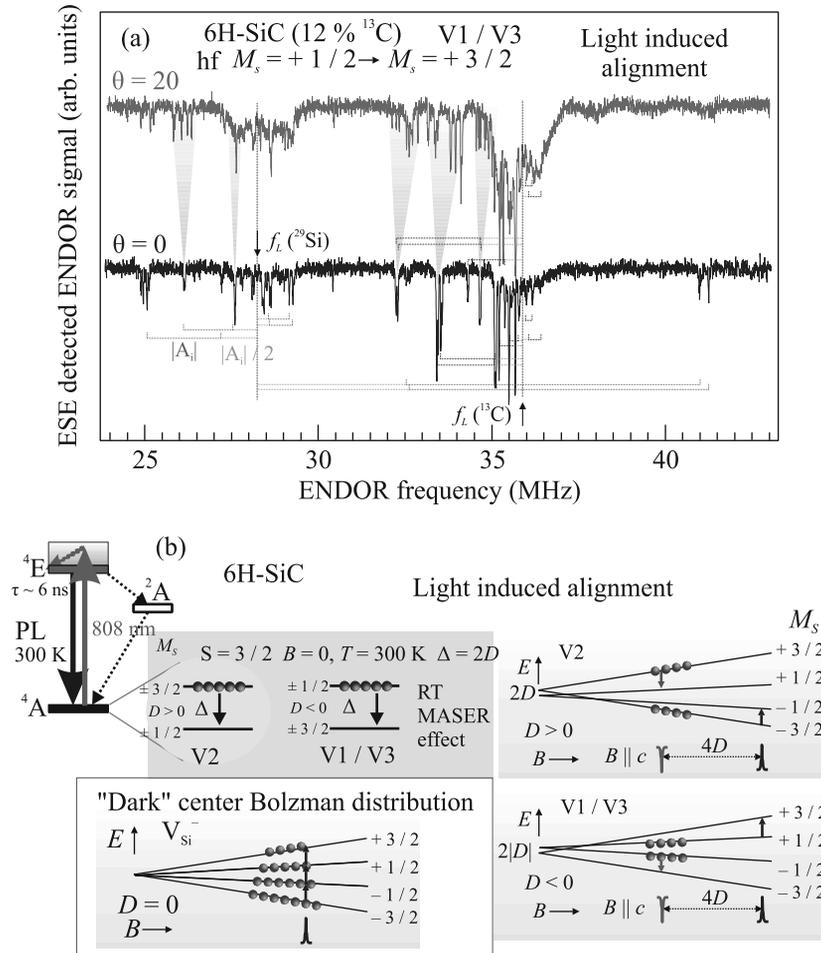


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Фрагмент спектров ДЭЯР спиновых центров V1/V3, зарегистрированных по высокополюсовому (hf) переходу ЭПР в двух близких ориентациях с $\theta = 0^\circ$ ($B \parallel c$) и $\theta = 20^\circ$ при температуре 100 К. (б) – Демонстрация оптически индуцированного выстраивания населенностей спиновых уровней для V2 и V1/V3 центров со спином $S = 3/2$ в кристалле 6H-SiC. Схемы заселения верхних спиновых уровней в нулевом магнитном поле при комнатной температуре для V2 центров с положительным значением расщепления тонкой структуры и V1/V3 центров с отрицательным значением расщепления тонкой структуры. Схемы энергетических уровней в магнитном поле для V2 и V1/V3 центров в кристалле 6H-SiC и условное изображение оптически индуцированных населенностей спиновых уровней и переходов ЭПР в виде поглощения и излучения микроволновой энергии, обусловленных выстраиванием населенностей спиновых уровней. Левая нижняя схема относится к изолированным отрицательно заряженным вакансиям кремния, в которых оптическое возбуждение не оказывает никакого эффекта на населенности спиновых уровней, которые подчиняются больцмановскому распределению как в темноте, так при свете

ются, в отличие от спектров ДЭЯР для ярких центров). Упомянутые группы линий одинаковой природы для темных центров, выделенные серым цветом, располагаются симметрично относительно ларморовской частоты ^{13}C и характеризуются частотами $f_L(^{13}\text{C}) + 1/2|A_{\text{C}13\text{i}}|$ и $f_L(^{13}\text{C}) \pm 3/2|A_{\text{C}13\text{i}}|$ с $A_{\text{C}13\text{i}} = 4 \div 4.4$ МГц. Это многообразие может быть связано с совпадением всех переходов для темных центров, занимающих разные позиции в кристалле 6H-SiC, и имеющих параметр тонкой структуры $D = 0$. СТ расщепления для разных позиций вакан-

сии кремния V_{Si}^- , слегка отличаются. Отметим, если бы при нулевом расщеплении тонкой структуры все-таки наблюдалось выстраивание населенностей любого из дублетов ($\pm 1/2$ или $\pm 3/2$), спектр ДЭЯР, несомненно, обладал бы зеркальной симметрией, что не соответствует экспериментальным данным. Под зеркальной симметрией мы обозначаем наличие противоположной фазы у групп линий ДЭЯР, располагающихся симметрично относительно ларморовских частот как для $f_L(^{13}\text{C})$, так и для $f_L(^{29}\text{Si})$. Величины и знаки СТ взаимодействия с ядрами ^{13}C для V2 и

V1/V3 приведены на рис. 2. Указаны частоты в МГц для СТ взаимодействий A_{Si_i} и A_{C_i} с ядрами i изотопов ^{29}Si и ^{13}C , расположенных в разных координационных сферах относительно положения вакансии кремния. Мы считаем, что максимальные взаимодействия в ДЭЯР (порядка 2–5 МГц) принадлежат ядрам ^{13}C , расположенным в третьей координационной сфере относительно вакансии углерода; взаимодействия с ядрами ^{13}C , расположенными в ближайшем окружении вакансии кремния, C_{NN} , хорошо разрешены в спектре ЭПР, более того, обладают сильной анизотропией СТ расщепления.

Переходы в ДЭЯР вызывают, как правило, уменьшение амплитуды электронного спинового эха, однако в некоторых случаях при оптическом возбуждении наблюдается увеличение амплитуды сигнала ДЭЯР, как это видно на рис. 2, при значениях расщепления СТ структуры с ^{13}C 4.2–4.3 МГц, что обусловлено сложными релаксационными процессами.

На рисунке 3а показан фрагмент спектров ДЭЯР спиновых центров V1/V3, зарегистрированных по высокополюсовому (hf) переходу ЭПР в двух близких ориентациях с $\theta = 0^0$ ($B||c$) и $\theta = 20^0$. Красными и розовыми пунктирными линиями показаны переходы для СТ взаимодействий с ядрами ^{29}Si (длина красной линии соответствует константе СТ расщепления A , розовой $A/2$ в соответствии с формулой (2)), для обозначения СТ расщепления с ядрами ^{13}C использованы, соответственно, черные (A) и серые ($A/2$) пунктирные линии. Видно, что линии несимметрично расположены с двух сторон от ларморовских частот для ^{29}Si и ^{13}C , что однозначно свидетельствует о наличии сверхтонкого расщепления разного знака как для ^{29}Si , так и для ^{13}C . Изменение ориентации кристалла в магнитном поле приводит к изменению положений линий и расщеплению их на группы, что свидетельствует о сильной анизотропии СТ взаимодействий для обоих ядер. Оценки показывают, что величина отношения $A_{||}/A_{\perp}$ для СТ расщеплений на большинстве ядер ^{13}C (и в ряде случаев для ^{29}Si) порядка 2, т.е. близко к соответствующему отношению, приведенному ранее для атомов C_{NN} .

На рисунке 3б продемонстрировано оптически индуцированное выстраивание населенностей спиновых уровней для V2 и V1/V3 центров со спином $S = 3/2$ в кристалле 6H-SiC. Представлены схемы заселения верхних спиновых уровней в нулевом магнитном поле при комнатной температуре для V2 центров с положительным значением расщепления тонкой структуры и V1/V3 центров с отрицательным значением расщепления тонкой структуры. В нуле-

вом магнитном поле основное состояние $S = 3/2$ расщепляется аксиальным кристаллическим полем на два Крамерсовых дублета, $M_S = \pm 3/2$ и $M_S = \pm 1/2$ с расстоянием $\Delta = 2|D|$. Оптическое возбуждение приводит к изменению населенностей (выстраиванию) спиновых состояний, в результате избыточно населяются уровни $M_S = \pm 3/2$ или $M_S = \pm 1/2$ как в малых, так и больших магнитных полях. Воздействие резонансной микроволновой мощности приводит к сильным изменениям интенсивности ФЛ, что позволяет осуществить оптическое детектирование магнитного резонанса. В результате достигается гигантское увеличение чувствительности, вплоть до возможности регистрировать одиночные спины [9, 11]. Обе схемы на рис. 3б приводят к мазерному эффекту при комнатной температуре в виде инверсной населенности уровней [7, 11, 21]. На рисунке 3б показаны схемы энергетических уровней в магнитном поле для V2 и V1/V3 центров в кристалле 6H-SiC и условное изображение оптически индуцированных населенностей спиновых уровней и переходов ЭПР в виде поглощения и излучения микроволновой энергии, обусловленных выстраиванием населенностей спиновых уровней. Самая нижняя схема относится к изолированному отрицательно заряженному вакансиям кремния V_{Si}^- , в которых оптическое возбуждение не оказывает никакого эффекта на населенности спиновых уровней, т.е. упомянутые населенности подчиняются бальцмановскому распределению как в темноте, так при свете. В отличие от ярких центров V2 и V1/V3, для которых наблюдается ФЛ в ближнем ИК диапазоне с квантовым выходом, близким к единице, для темных центров, в виде изолированной отрицательно заряженной вакансии кремния V_{Si}^- , занимающей разные кристаллические позиции в SiC, ФЛ не была обнаружена.

Заключение. В системе квартетных спиновых центров с $S = 3/2$ в кристалле 6H-SiC природой созданы уникальные структуры с оптически индуцированным выстраиванием населенностей спиновых уровней в условиях окружающей среды, которые ранее наблюдались только для триплетных NV центров в алмазе [22, 23]. Реализуются все три возможных состояния для расщепления тонкой структуры: параметр D может принимать значения $D > 0$, $D < 0$ и $D = 0$. Оптическое возбуждение при комнатной температуре и значительно выше комнатной приводит к выстраиванию населенностей спиновых уровней для ярких спиновых центров. В результате для схемы уровней V2 центра, $D > 0$, заселяется верхний спиновый дублет $\pm 3/2$, для схемы уровней V1/V3 центров, $D < 0$, заселяется верхний спиновый

дублет $\pm 1/2$, т.е. в обоих случаях реализуется инверсная населенность, приводящая к лазерному эффекту [7, 11, 21]. Для схемы с $D = 0$ оптическое возбуждение не приводит к изменениям в спектрах ЭПР и ДЭЯР, то есть населенности уровней определяются распределением Больцмана, и центр, который мы относим к отрицательно заряженной изолированной вакансии кремния с $S = 3/2$ V_{Si}^- , является темным. Для центра V_{Si}^- также не была обнаружена ФЛ. Изложенные выводы основываются на исследованиях ЭПР и ДЭЯР в кристаллах SiC, десятикратно обогащенных изотопом ^{13}C , что позволило резко усилить интенсивность сигналов ЭПР и ДЭЯР, связанных со сверхтонкими взаимодействиями с ядрами углерода ^{13}C . Определены величины электронно-ядерных взаимодействий с ядрами углерода ^{13}C , расположенными в разных координационных сферах относительно отрицательнозаряженной вакансии кремния со спином $S = 3/2$, входящей как в структуру яркого центра, так и образующей оптически пассивный темный центр. В ярком центре сверхтонкие взаимодействия с ядрами ^{13}C и ^{29}Si однозначно разделены благодаря селективному заселению уровней тонкой структуры с определенными значениями M_S . Яркий центр представляет собой отрицательнозаряженную вакансию кремния, занимающую одну из кристаллических позиций, рядом с которой в направлении оси c располагается возмущение в виде нейтрально заряженного дефекта, предпочтительно непарамагнитной нейтральной вакансии углерода, не связанной ковалентно с вакансией кремния. В результате были определены знаки СТ взаимодействий и обнаружены осцилляции спиновой плотности на ядрах ^{29}Si и ^{13}C , расположенных в разных координационных сферах.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 23-12-00152, <https://rscf.ru/project/23-12-00152/>.

1. P. G. Baranov, I. V. P'in, E. N. Mokhov, M. V. Muzafarova, S. B. Orlinskii, and J. Schmidt, *JETP Lett.* **82**, 441 (2005).
2. P. G. Baranov, A. P. Bundakova, I. V. Borovykh, S. B. Orlinskii, R. Zondervan, and J. Schmidt, *JETP Lett.* **86**, 202 (2007).
3. P. G. Baranov, A. P. Bundakova, A. A. Soltamova, S. B. Orlinskii, I. V. Borovykh, R. Zondervan, R. Verberk, and J. Schmidt, *Phys. Rev. B* **83**, 125203 (2011).
4. W. F. Koehl, B. B. Buckley, F. J. Heremans, G. Calusine, and D. D. Awschalom, *Nature* **479**, 84 (2011).
5. V. A. Soltamov, A. A. Soltamova, P. G. Baranov, and I. I. Proskuryakov, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 226402 (2012).
6. D. Riedel, F. Fuchs, H. Kraus, S. Vath, A. Sperlich, V. Dyakonov, A. A. Soltamova, P. G. Baranov, V. A. Pyin, and G. V. Astakhov, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 226402 (2012).
7. H. Kraus, V. A. Soltamov, D. Riedel, S. Vath, F. Fuchs, A. Sperlich, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, *Nat. Phys.* **10**, 157 (2014).
8. V. A. Soltamov, B. V. Yavkin, D. O. Tolmachev, R. A. Babunts, A. G. Badalyan, V. Yu. Davydov, E. N. Mokhov, I. I. Proskuryakov, S. B. Orlinskii, and P. G. Baranov, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 247602 (2015).
9. M. Widmann, S.-Y. Lee, T. Rendler, N. T. Son, H. Fedder, S. Paik, L.-P. Yang, N. Zhao, S. Yang, I. Booker, A. Denisenko, M. Jamali, S. A. Momenzadeh, I. Gerhardt, T. Ohshima, A. Gali, E. Janzies, and J. Wrachtrup, *Nat. Mater.* **14**, 164 (2015).
10. C. J. Cochrane, J. Blacksberg, M. A. Anders, and P. M. Lenahan, *Sci. Rep.* **6**, 37077 (2016).
11. P. G. Baranov, H.-J. von Bardeleben, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, *Magnetic Resonance of Semiconductors and Their Nanostructures: Basic and Advanced Applications*, Springer Series in Materials Science, Springer-Verlag GmbH Austria (2017), v. 253, ch. 6.
12. S. A. Tarasenko, A. V. Poshakinskiy, D. Simin, V. A. Soltamov, E. N. Mokhov, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, *Phys. Status Solidi B* **255**, 1700258 (2018).
13. V. A. Soltamov, C. Kasper, A. V. Poshakinskiy, A. N. Anisimov, E. N. Mokhov, A. Sperlich, S. A. Tarasenko, P. G. Baranov, G. V. Astakhov, and V. Dyakonov, *Nat. Commun.* **10**, 678 (2019).
14. P. A. Бабунц, Ю. А. Успенская, А. С. Гурин, А. П. Бундакова, Г. В. Мамин, А. Н. Анисимов, Е. Н. Мохов, П. Г. Баранов, Письма в ЖЭТФ **116**(7), 481 (2022) [*JETP Lett.* **116**(7), 485 (2022)].
15. P. A. Бабунц, Ю. А. Успенская, А. П. Бундакова, Г. В. Мамин, А. Н. Анисимов, П. Г. Баранов, Письма в ЖЭТФ **11**(11), 763 (2022) [*JETP Lett.* **116**(11), 785 (2022)].
16. V. A. Soltamov, B. V. Yavkin, G. V. Mamin, S. B. Orlinskii, I. D. Breev, A. P. Bundakova, R. A. Babunts, A. N. Anisimov, and P. G. Baranov, *Phys. Rev. B* **104**, 125205 (2021).
17. V. Ivady, J. Davidsson, N. T. Son, T. Ohshima, I. Abrikosov, and A. Gali, *Phys. Rev. B* **96**, 161114(R) (2017).
18. T. Wimbauer, B. K. Meyer, A. Hofstaetter, A. Scharmann, and H. Overhof, *Phys. Rev. B* **56**, 7384 (1997).
19. S. B. Orlinski, J. Schmidt, E. N. Mokhov, and P. G. Baranov, *Phys. Rev. B* **67**, 125207 (2003).
20. A. Csore, N. T. Son, and A. Gali, *Phys. Rev. B* **104**, 035207 (2021).

21. П. Г. Баранов, Р. А. Бабунц, А. А. Солтамова, В. А. Солтамов, А. П. Бундакова, Активный материал для лазера с оптической накачкой и мазер с оптической накачкой, Патент РФ # 2523744, тип: Изобретение, Приоритет изобретения 24.08.2012, Зарегистрировано в Госреестре 28.05.2014.
22. A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borczyskowski, *Science* **276**, 2012 (1997).
23. A. Drabenstedt, L. Fleury, C. Tietz, F. Jelezko, S. Kilin, A. Nizovtzev, and J. Wrachtrup, *Phys. Rev. B* **60**, 11503 (1999).

Спиновый хаос экситонных поляритонов в магнитном поле

С. С. Гаврилов^{+*1)}, Н. Н. Ипатов^{+*}, В. Д. Кулаковский⁺

⁺Институт физики твердого тела им. Ю. А. Осипьяна РАН, 142432 Черноголовка, Россия

^{*}Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 4 октября 2023 г.

После переработки 11 октября 2023 г.

Принята к публикации 12 октября 2023 г.

Теоретически исследованы спиновые свойства экситонных поляритонов в резонаторном микростолбике, находящемся в постоянном магнитном поле и возбуждаемом резонансной световой волной. Благодаря эффекту Зеемана у нелинейной поляритонной системы существуют две ветви оптического отклика, характеризующиеся противоположными знаками циркулярной поляризации. Предсказан не прямой механизм инверсии поляризации, в соответствии с которым текущее состояние системы испытывает переход к динамическому хаосу, после чего альтернативное спиновое состояние устанавливается спонтанным образом. Такие спиновые переключения, опосредованные хаотической фазой, могут идти в обе стороны в окрестности одной и той же критической амплитуды возбуждения, при этом знак циркулярной поляризации излучения резонатора прямо определяется интенсивностью оптической накачки.

DOI: 10.31857/S1234567823210048, EDN: pqyfcy

Введение. Квазидвумерные экситонные поляритоны представляют собой бозе-частицы, возникающие благодаря сильной связи экситонов и света в плоском микрорезонаторе [1–3]. В условиях резонансного возбуждения состояние поляритонов оказывается макроскопически когерентным [4–6] и может рассматриваться по аналогии с бозе-конденсатами. Нелинейность системы, обусловленная поляритон-поляритонным взаимодействием, приводит к оптической мультистабильности: отклик резонатора на плоскую световую волну характеризуется несколькими альтернативными устойчивыми состояниями, между которыми возможны неравновесные переходы [7–11]. Известно, что в случае латерально однородной системы мультистабильность может влиять на характер параметрического рассеяния [12, 13] или приводить к появлению сложных диссипативных структур в пространственном распределении излучения [14–16]. С другой стороны, в размерно квантованном микростолбике система поляритонов ведет себя как простая мультистабильная ячейка с очень малыми характерными временами переключений вплоть до нескольких пикосекунд [17].

Известны различные механизмы перехода между альтернативными устойчивыми состояниями поляритонной системы. Все они предполагают, что частота возбуждения немного превышает собственную

частоту поляритонов, причем эта разность компенсируется фиолетовым сдвигом положения резонанса с ростом амплитуды поля [11]. Простейший вариант перехода можно наблюдать при плавном увеличении интенсивности накачки в системе с S-образным откликом, где в определенной особой точке нижняя ветвь устойчивости прерывается и происходит скачок на верхнюю ветвь [7]. Для того чтобы сделать подобные переходы хорошо управляемыми, применяют схемы двухлучевого возбуждения, в которых одна волна является непрерывной и создает условия мультистабильности как таковой, а вторая представляет собой короткий импульс, выступающий в роли триггера переключений [11, 18]. Однако для “нульмерной” поляритонной системы в микростолбике реализация такого способа управления сильно затруднена ввиду необходимости точно контролировать разность фаз между двумя лучами [19]. В качестве переключателя здесь может применяться не резонансно-оптический, а деформационный акустический импульс, на короткое время возмущающий поляритонную частоту [20, 21]; недавно было получено экспериментальное подтверждение по крайней мере односторонних переходов такого рода [22, 23].

В настоящей работе предложен механизм управляемого *двустороннего* переключения когерентных состояний поляритонов в резонаторном микростолбике, которое сопровождается инверсией степени циркулярной поляризации (ρ) излучаемого света.

¹⁾e-mail: gavr_ss@issp.ac.ru

Как известно, альтернативные состояния с противоположными ρ могут существовать в постоянном магнитном поле; переходы между ними наблюдались в режиме импульсного возбуждения длительностью около 0.2 нс [24]. При импульсной накачке такой малой длительности еще нельзя говорить в собственном смысле о мультстабильности и дискретном переключении состояний. С другой стороны, в случае более длинных времен возбуждения для реализации управляемых переходов потребовалась бы сложная форма импульса, обусловленная эффектом гистерезиса. Особенностью механизма, представленного в данной работе, является то, что он нечувствителен к форме импульса и позволяет достичь практически однозначного соответствия между интенсивностью возбуждающей резонатор световой волны и знаком циркулярной поляризации излучения.

Основная идея состоит в том, что в магнитном поле переключения поляризации могут происходить в результате перехода текущего поляризационного состояния системы к динамическому хаосу. Фазовая траектория системы, эволюционирующей в хаотическом режиме, покрывает широкую квазинепрерывную область фазового пространства и со временем оказывается в зоне притяжения альтернативного устойчивого состояния с противоположной поляризацией. Таким образом, неравновесный переход между стационарными состояниями не является прямым, но опосредуется промежуточным хаотическим этапом с неопределенной (в общем случае) длительностью. Расчеты показывают, что для характерных параметров микростолбика размером 2 мкм на основе GaAs события спиновых переключений достаточно надежно регистрируются на масштабе 10^{-8} с при времени жизни поляритона порядка 10^{-11} с.

Далее будет сформулирована модель, описывающая динамику поляритонов в рамках приближения среднего поля, и обоснован переход к чисто нульмерному случаю, для которого мы исследуем стационарные состояния и их устойчивость и обсудим возможные сценарии переключений. Затем мы проанализируем процессы переходов между состояниями с противоположными поляризациями в ситуациях строго непрерывного и частично стохастического (испытывающего случайные скачки фазы и амплитуды) внешнего возбуждения.

Модель. Динамика двумерной поляритонной системы рассматривается в приближении среднего поля в терминах классической спиновой амплитуды $\Psi_{\pm}(\mathbf{r}, t)$, которая удовлетворяет обобщенным уравнениям Гросса–Питаевского, учитывающим диссипацию и когерентную накачку [5, 8, 11]:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_{\pm}}{\partial t} = \left(\hat{E}_{\text{LP}} + U(r) - i\gamma \pm \frac{g_M}{2} + \tilde{V} |\Psi_{\pm}|^2 \right) \Psi_{\pm} + \frac{g_L}{2} \Psi_{\mp} + \tilde{f}_{\pm} e^{-iE_p t / \hbar}. \quad (1)$$

Здесь $\hat{E}_{\text{LP}} = \hat{E}_{\text{LP}}(-i\hbar\nabla)$ – закон дисперсии нижней поляритонной ветви, $\tilde{V} > 0$ – константа парного взаимодействия, γ – коэффициент затухания (соответствующее время жизни поляритона τ составляет \hbar/γ), \tilde{f}_{\pm} и E_p/\hbar – спиновая эффективная амплитуда и частота волны накачки, падающей по нормали к поверхности резонатора. Постоянное магнитное поле, также перпендикулярное поверхности, приводит к расщеплению g_M подуровней с противоположными спинами (эффект Зеемана). Константа связи спиновых компонент g_L соответствует расщеплению мод с ортогонально-линейными поляризациями, которое может быть вызвано, например, механическим напряжением в плоскости резонатора [25, 26]. Константы g_L и g_M имеют размерность энергии.

Потенциал $U(r)$ соответствует идеальной квантовой яме радиуса R : $U(r) = 0$ при $r \leq R$ и $U(r) = \infty$ при $r > R$. Расщепление уровней размерного квантования пропорционально $1/R^2$. Следовательно, если R достаточно мало, а частота накачки E_p/\hbar фиксирована вблизи самого нижнего уровня, в поляритонной системе возбуждается всего одна пространственная мода, профиль которой, в силу круговой симметрии, описывается функцией Бесселя нулевого порядка J_0 . Приняв это в качестве предположения, решения уравнений (1) будем искать в виде $\Psi_{\pm}(r, t) = C J_0(ar/R) \psi_{\pm}(t)$, где $\alpha \approx 2.4$ – наименьший (по абсолютной величине) нуль функции J_0 . Постоянная нормировки C выбирается так, чтобы величина $|\Psi(r, t)|^2$, усредненная по площади микростолбика, совпадала с $|\psi(t)|^2$, что приводит к $C = 1/J_1(\alpha)$, где J_1 – функция Бесселя первого порядка. В итоге уравнения для $\psi_{\pm}(t)$ имеют вид

$$i\hbar \frac{d\psi_{\pm}}{dt} = \left(E_0 - i\gamma \pm \frac{g_M}{2} + V |\psi_{\pm}|^2 \right) \psi_{\pm} + \frac{g_L}{2} \psi_{\mp} + f_{\pm} e^{-iE_p t / \hbar}, \quad (2)$$

где

$$f_{\pm} = \frac{2\tilde{f}_{\pm}}{\alpha} \approx 0.83 \tilde{f}_{\pm}, \quad (3)$$

$$V = \frac{2\tilde{V}}{\alpha^2 [J_1(\alpha)]^4} \int_0^{\alpha} \xi [J_0(\xi)]^4 d\xi \approx 2.10 \tilde{V}, \quad (4)$$

$$E_0 \approx E_{\text{LP}}(k=0) + \frac{\hbar^2 \alpha^2}{2mR^2} \quad (5)$$

и m – эффективная масса поляритона в окрестности моды с нулевым планарным волновым числом k .

В дальнейших примерах мы рассматриваем резонатор на основе GaAs с эффективной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon = 12$ и одинаковыми энергиями экситона и фотонной моды $E = 1.5$ эВ для $k = 0$; в таком случае масса поляритона m равна $2E/\varepsilon c^2$. Расщепление Раби (сила экситон-фотонного взаимодействия) составляет 10 мэВ, коэффициент затухания $\gamma = 0.075$ мэВ, характерные параметры спинового расщепления и спиновой связи $g_M = 0.2$ мэВ, $g_L = 0.5$ мэВ. В практических вычислениях единицы f и ψ удобно фиксировать условием $V = 1$; в частности, $|\psi_{\pm}|^2$ имеет в таком случае размерность энергии и означает фиолетовый сдвиг резонанса.

Решения уравнений (2) количественно совпадают с усредненными по площади микростолбика решениями уравнений (1) при $R \lesssim 1$ мкм, если только отстройка энергии накачки $E_p - E_{LP}(k=0)$ в модели (1) соответствует $E_p - E_0$ в (2) и не превышает 1 мэВ. Величина $R = 1$ мкм много больше, чем борровский радиус экситона, поэтому можно считать, что классическое приближение, в рамках которого сформулирована исходная модель (1), сохраняет силу. Из литературы известно, что эффект мультистабильности экспериментально наблюдается и воспроизводится уравнениями типа (1) по крайней мере при $R \approx 1.5$ мкм [10, 17, 27].

Стационарные решения. Подстановка $\psi_{\pm}(t) = \bar{\psi}_{\pm} e^{-iE_p t/\hbar}$ в (2) приводит к не зависящим от времени уравнениям

$$\left[\pm \frac{g_M}{2} - D - i\gamma + V|\bar{\psi}_{\pm}|^2 \right] \bar{\psi}_{\pm} + \frac{g_L}{2} \bar{\psi}_{\mp} + f_{\pm} = 0, \quad (6)$$

где $D = E_p - E_0$. Вычислив стационарное решение $\bar{\psi}_{\pm}$ при каких-либо параметрах, нужно затем исследовать его устойчивость относительно малых флуктуаций поля. Для этого находят собственные энергии E элементарных возбуждений. Подстановка

$$\psi_{\pm}(t) = \bar{\psi}_{\pm} e^{-iE_p t/\hbar} + \delta\psi_{\pm} e^{-iEt/\hbar} \quad (7)$$

в (2) приводит в пределе $|\delta\psi_{\pm}| \ll |\bar{\psi}_{\pm}|$ к однородной линейной системе уравнений для $\delta\psi_+$, $\delta\psi_-$, $\delta\psi_+^*$, $\delta\psi_-^*$, которая дает четыре собственных значения E . В том случае, если все они имеют отрицательную мнимую часть, рассматриваемое решение $\bar{\psi}_{\pm}$ является асимптотически устойчивым (притягивающим). Принципиальные детали вычислений обсуждаются в обзоре [11].

На рисунке 1 приведены характерные решения уравнений (6) в зависимости от полной интенсивности накачки $I = |f_+|^2 + |f_-|^2$. Сверху (рис. 1a, b) представлен важный частный случай, когда $f_+ = f_-$, $g_M = 0$ (световая волна линейно поляризована, магнитного поля нет) и, таким образом, уравнения для

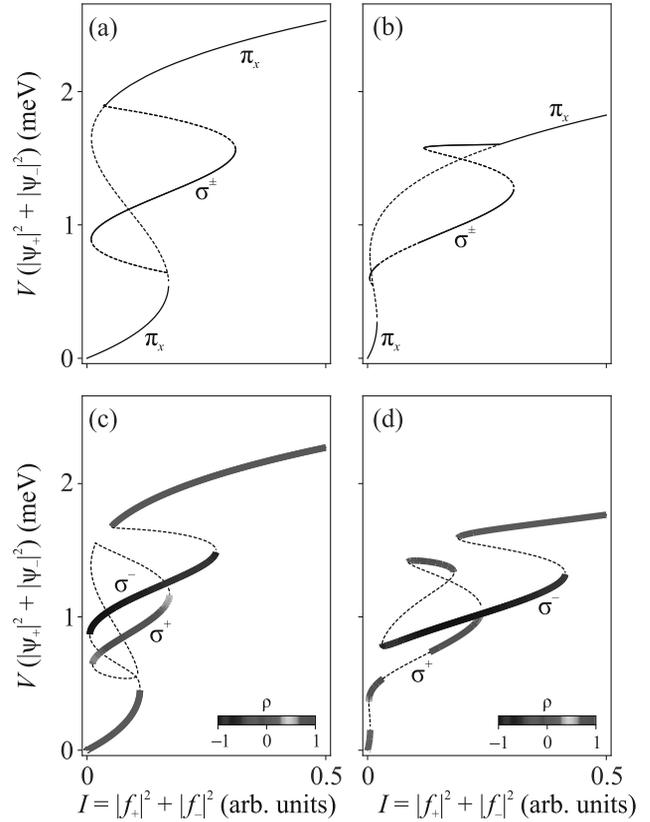


Рис. 1. (Цветной онлайн) Устойчивые (сплошные линии) и неустойчивые (пунктирные линии) стационарные решения системы (2). (a) – Спин-симметричная модель ($f_+ = f_-$, $D \approx 12\gamma$, $g_M = 0$, $g_L \approx 1.7\gamma$). Ветви π_x – симметричные решения с линейной поляризацией ($\psi_+ = \psi_-$), ветви σ^+ и σ^- – вырожденные по интенсивности решения высокой степени циркулярной поляризации. (b) – Симметричная модель с более высоким g_L ($D = 8\gamma$, $g_L \approx 5.5\gamma$). (c) – Решения в магнитном поле при $g_L < g_M$ ($\rho_p = (|f_+|^2 - |f_-|^2)/(|f_+|^2 + |f_-|^2) = -0.5$, $D = 10\gamma$, $g_M = 3\gamma$, $g_L \approx 1.5\gamma$). Степень циркулярной поляризации ρ указана цветом. (d) – Решения в магнитном поле при $g_L > g_M$ ($\rho_p = -1/3$, $\arg f_+^* f_- = -\pi/12$, $D \approx 6.8\gamma$, $g_M \approx 2.7\gamma$, $g_L \approx 6.7\gamma$). Во всех случаях $\gamma = 0.075$ мэВ

$\bar{\psi}_+$ и $\bar{\psi}_-$ целиком совпадают. Эта задача является точно решаемой [28]. Для всякого I существуют симметричные решения ($\bar{\psi}_+ = \bar{\psi}_-$), образующие S-образную кривую с двумя устойчивыми ветвями (π_x). Решения второго типа (ветви σ^{\pm}) характеризуются высокой циркулярной поляризацией и лежат в промежуточной области I и $u = V(|\bar{\psi}_+|^2 + |\bar{\psi}_-|^2)$. Иногда при некоторых I устойчивыми могут быть только асимметричные решения, так что переход от линейной к эллиптической поляризации излучения оказывается строго предопределенным [25, 26, 29]. Примечательно, что с увеличением g_L/γ решения

второго типа также могут потерять устойчивость в некотором интервале I , где в итоге не остается вообще никаких допустимых стационарных решений [30]. В таком случае (см. рис. 1b, $I \sim 0.1$) система переходит в режим регулярных или хаотических колебаний интенсивности u и степени циркулярной поляризации ρ [28].

Магнитное поле, перпендикулярное поверхности резонатора, приводит к расщеплению $E_0 \rightarrow E_0 \pm \pm g_M/2$ собственных уровней энергии поляритонов с $\rho = \pm 1$. Следовательно, эффективная отстройка частоты накачки от резонанса получается неодинаковой для двух спиновых компонент поля. Стационарные решения с противоположными ρ теперь имеют различные интенсивности u и, в общем случае, различные критические значения интенсивности накачки I , при которых начинаются или оканчиваются соответствующие ветви решений. В связи с этим открывается возможность управляемых переходов между ветвями σ^+ и σ^- только за счет плавного изменения I . Как и прежде, решения с высокими ρ могут быть как устойчивыми, так и неустойчивыми. Первый случай реализуется для всех I независимо от g_M , если отношение g_L/γ сравнительно мало; на рис. 1c приведен типичный пример для $g_L \approx 1.5\gamma$ и $g_M = 3\gamma$. Видно, что картина стационарных решений имеет широкую петлю гистерезиса; переходы между ветвями σ^\pm при плавном изменении I могут идти только через промежуточные состояния с небольшими $|\rho|$ и либо очень высокой (для перехода $\sigma^+ \rightarrow \sigma^-$), либо очень малой ($\sigma^- \rightarrow \sigma^+$) интенсивностью поля [24]. Подобные переходы трудно сделать одновременно быстрыми и хорошо управляемыми: для этого пришлось бы точно контролировать сложную форму и фазу коротких переключющих импульсов.

Совершенно новый сценарий спиновых переключений появляется при $g_M > \gamma$ и $g_L > 4\gamma$ (рис. 1d), когда решения с высокими $|\rho|$ теряют устойчивость, как и в примере на рис. 1b, но по причине снятого вырождения неустойчивым становится только *одно из двух* альтернативных решений. Можно предположить, что с увеличением I вблизи соответствующей особой точки должен происходить переход с ветви σ^+ на ветвь σ^- , поскольку, как видно из рис. 1d, никаких других устойчивых решений при данном I уже не остается. На следующем рис. 2 показана окрестность точки перехода, приведены интенсивность, поляризация и мера устойчивости ($\Gamma = \max \text{Im} E$) стационарных решений. Помимо простого перехода с инверсией ρ , смена знака Γ допускает возможность автоколебаний или динамического хаоса. Хаотический режим и самопроизвольный выход из него к альтер-

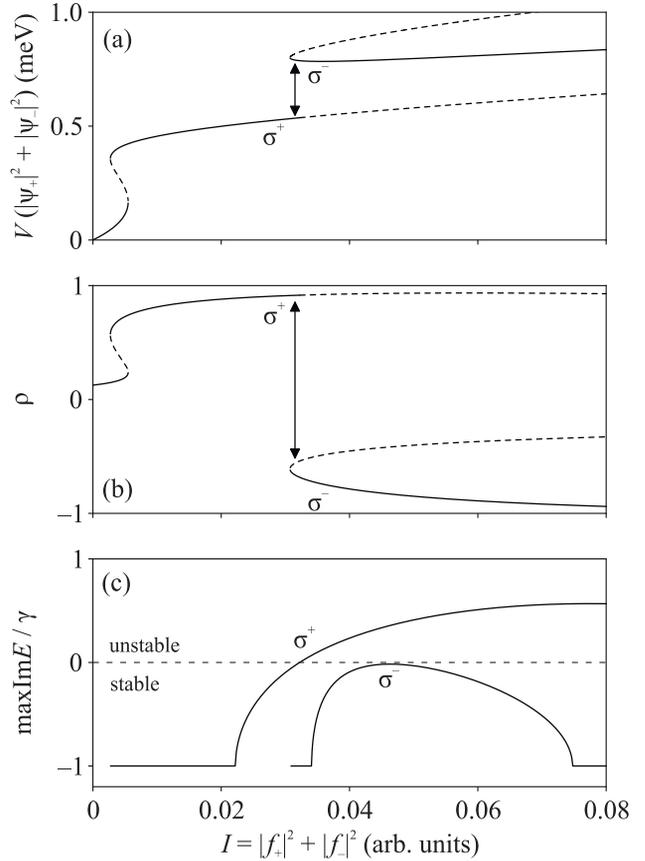


Рис. 2. Интенсивность поля (a), степень циркулярной поляризации (b) и наибольшая величина мнимой части собственной энергии возбуждений (c) в окрестности точки перехода между ветвями стационарных решений σ^\pm . Стрелками указаны двусторонние спиновые переключения, происходящие при увеличении или уменьшении интенсивности накачки в одной и той же критической области. Параметры соответствуют рис. 1d

нативному устойчивому состоянию будут обсуждаться ниже.

Для того чтобы снять вырождение по интенсивности между решениями с противоположными ρ , было бы, вообще говоря, достаточно только оптической накачки с ненулевой степенью циркулярной поляризации ρ_p . Однако включение магнитного поля делает возможной такую ситуацию, когда в окрестности одного и того же I одна ветвь решений теряет или приобретает устойчивость, а другая – появляется или исчезает как таковая, аналогично нашему примеру на рис. 1d и 2. Подобные совпадения, которые позволяют реализовать *двусторонние* спиновые переходы, всегда достижимы в случае достаточно больших g_L/γ при выполнении следующих условий. Во-первых, необходимо, чтобы частота накачки превосходила собственные частоты обоих спиновых

компонент поля; соотношение $D \sim g_L$, как правило, близко к оптимальному, если $g_M \sim g_L/2$. Во-вторых, знак степени циркулярной поляризации накачки ρ_p должен быть противоположен знаку g_M . Другими словами, спиновая компонента, собственная энергия которой вследствие магнитного расщепления оказалась дальше от E_p в красной области (ψ_- при $g_M > 0$ или ψ_+ при $g_M < 0$), должна сильнее возбуждаться световой волной, чтобы решения с противоположными ρ в итоге могли иметь сопоставимую полную интенсивность u и находиться в одной области I . В качестве параметра тонкой настройки может использоваться направление главной оси поляризации, которое в нашей модели определяется разностью фаз $\arg f_+^* f_-$.

Динамика спиновых переходов. Рисунок 3 показывает решения уравнений (2), полученные при медленном (в течение более 10^2 нс) изменении интенсивности накачки I . Рассматривается та же си-

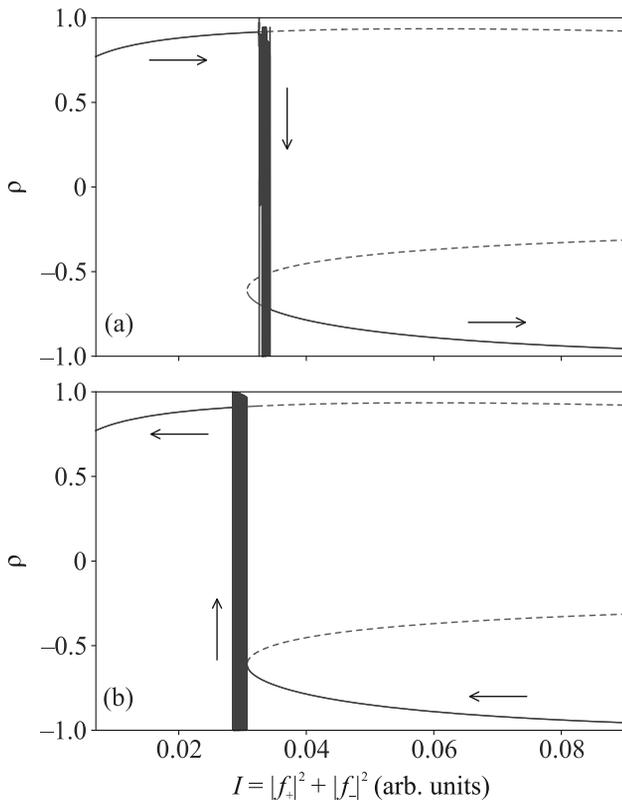


Рис. 3. (Цветной онлайн) Переходы между устойчивыми стационарными состояниями в условиях медленного увеличения (а) или уменьшения (б) интенсивности когерентной накачки. Параметры соответствуют рис. 1d и 2

стема, что и ранее на рис. 2. Видно, что по достижении особой точки, где решение с правоциркулярной поляризацией теряет устойчивость, возникают коле-

бания ρ в диапазоне от -1 до $+1$. Динамика колебаний является хаотической; небольшой фрагмент явной зависимости ρ от t приведен на следующем рис. 4. Масштаб времени, на котором происходят за-

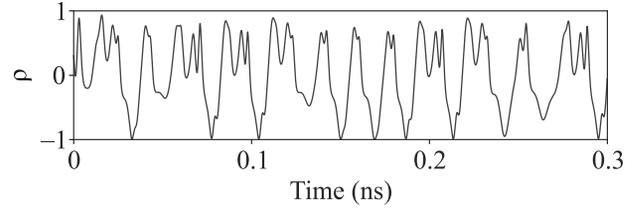


Рис. 4. (Цветной онлайн) Характерная динамика $\rho(t)$ в малой части хаотической области рис. 3а. В течение приведенного отрезка времени (0.3 нс) интенсивность внешнего поля I изменяется менее чем на 0.1%

метные изменения ρ , не превышает нескольких пикосекунд ($\lesssim \hbar/\gamma$). Несмотря на отсутствие периодичности, в форме сигнала видны самовоспроизводящиеся особенности, которые свидетельствуют о наличии аттрактора фазовой траектории. Также отметим, что на рис. 3а нет никакой промежуточной области, где наблюдался бы постепенный рост колебаний ρ по мере увеличения I . Это обстоятельство служит отдельным признаком перехода к хаосу, в то время как при бифуркации Хопфа устойчивые предельные циклы (регулярные автоколебания) непрерывным образом возникают из неподвижных точек [28].

Причина появления хаоса связана с тем, что экспоненциальный рост флуктуаций уводит систему от потерявшего устойчивость стационарного решения, однако сам по себе не может привести ее к новой ветви устойчивости. Траектория хаотической системы покрывает широкую область фазового пространства и лишь случайным образом сближается с единственным асимптотически устойчивым состоянием, существующим при данном I , и в результате притягивается к нему. Таким образом, весь переход происходит спонтанно в условиях интенсивных и нерегулярных колебаний ρ . Он не имеет точно определенной длительности; в расчетах время перехода могло изменяться в диапазоне от ~ 0.1 до ~ 10 нс даже при малом изменении параметров задачи.

Обратное переключение (рис. 3б) ожидается происходит после исчезновения стационарных решений с отрицательными ρ в процессе уменьшения I , при этом вначале наблюдаются хаотические колебания, аналогичные рис. 4. Несмотря на хаос, области переходов $\sigma^+ \leftrightarrow \sigma^-$ расположены очень близко, в отличие, например, от ситуации на рис. 1с, где для осуществления последовательного перехода $\sigma^+ \rightarrow \sigma^- \rightarrow \sigma^+$ пришлось бы изменять I более чем на порядок величины. Отметим также, что в случае обычной оп-

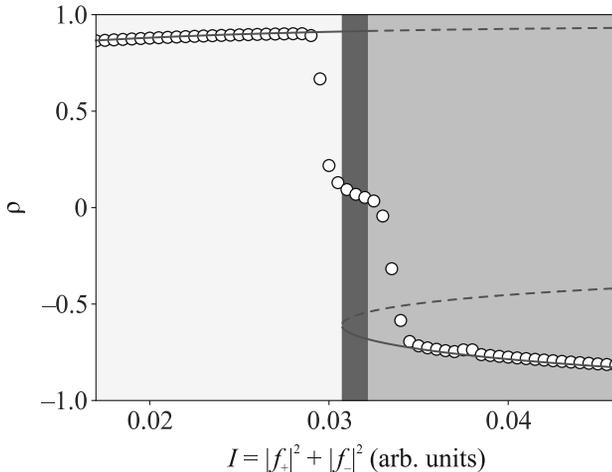


Рис. 5. (Цветной онлайн) Переходы между устойчивыми состояниями при частично стохастическом возбуждении. Каждой точке соответствует усредненная серия отдельных расчетов, проводившихся со случайными начальными условиями, при этом в каждом расчете величины f_{\pm} испытывали случайные возмущения, зависящие от времени. Цветом выделены интервалы I , в которых устойчивы только стационарные решения с $\rho > 0$, $\rho < 0$ или оба решения одновременно. Параметры системы соответствуют рис. 1d, 2 и 3

тической бистабильности уменьшение области гистерезиса по I сопровождается сближением альтернативных состояний в фазовом пространстве.

Благодаря отсутствию обычного эффекта гистерезиса конечное состояние системы перестает зависеть от начальных условий и вообще “истории” процесса возбуждения. На рисунке 5 представлена фазовая диаграмма состояний в области двустороннего переключения поляризации. Каждая точка была получена усреднением по тысяче независимых расчетов со случайными начальными условиями для вещественной и мнимой частей ψ_{+} и ψ_{-} , равномерно распределенными на отрезке от -1 до 1 мВ $^{1/2}/V^{1/2}$. Помимо этого, к когерентному источнику возбуждения был добавлен белый шум, обеспечивающий постоянные флуктуации $|\psi_{\pm}(t)|^2$ с амплитудой около 10% от равновесной интенсивности. Время эволюции системы в каждом расчете составляло 10 нс, но результаты, которые были впоследствии усреднены, записывались только для последних 0.1 нс, чтобы по возможности снизить влияние переходных эффектов.

Как видно из рис. 5, средняя поляризация близка к нулю в той очень узкой области I , где устойчивые ветви σ^{+} и σ^{-} существуют одновременно и, следовательно, выбор между ними является случайным. (Ширину этой области легко контролировать,

изменяя параметры.) Смещение I в любую сторону быстро приводит к однозначным решениям, соответствующим стационарной модели (6). Случайные возмущения $f_{\pm}(t)$ не искажают результат, а играют скорее конструктивную роль, поскольку в их отсутствие существует вероятность установления чисто периодических (автоколебательных) состояний с низкой средней поляризацией. Наконец, отметим, что в переходной области видны точки, отклоняющиеся даже от единственного (при соответствующем I) устойчивого стационарного состояния, поскольку область его притяжения в фазовом пространстве еще очень мала и для того, чтобы случайно в ней оказаться, требуется значительное время, причем даже установившееся состояние может быть разрушено конечными возмущениями $f_{\pm}(t)$.

Несмотря на перечисленные тонкие эффекты, в целом достигается почти однозначное соответствие между интенсивностью накачки и знаком циркулярной поляризации излучения. Описанный механизм спиновых переходов универсален, не требует точного контроля фаз и реализуется как в непрерывном, так и в импульсном (на масштабе по меньшей мере нескольких наносекунд) режиме оптического возбуждения поляритонов. Динамический хаос возможен при условии линейной связи спиновых компонент ($g_L > 0$), что подразумевает латеральную анизотропию системы. В действительности при этом важны только отношения g_L и g_M к ширине линии γ , которая определяется добротностью резонатора, поэтому все технические ограничения, касающиеся анизотропии системы или необходимой напряженности магнитного поля, с увеличением добротности ослабляются.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда # 23-22-00455.

1. C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3314 (1992).
2. A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and P. Laussy, *Microcavities*, 2 ed., Oxford University Press, N.Y. (2017).
3. Y. Yamamoto, T. Tassone, and H. Cao, *Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics*. Springer, Berlin (2000).
4. V. F. Elesin and Y. V. Kopaev, *Sov. Phys. JETP* **36**(4), 767 (1973).
5. L. V. Keldysh, *Phys.-Uspekhi* **60**(11), 1180 (2017).
6. A. Baas, J.-P. Karr, M. Romanelli, A. Bramati, and E. Giacobino, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 176401 (2006).
7. A. Baas, J. P. Karr, M. Romanelli, A. Bramati, and E. Giacobino, *Phys. Rev. B* **70**, 161307 (2004).

8. N. A. Gippius, S. G. Tikhodeev, V. D. Kulakovskii, D. N. Krizhanovskii, and A. I. Tartakovskii, *Europhys. Lett.* **67**(6), 997 (2004).
9. N. A. Gippius, I. A. Shelykh, D. D. Solnyshkov, S. S. Gavrilov, Y. G. Rubo, A. V. Kavokin, S. G. Tikhodeev, and G. Malpuech, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 236401 (2007).
10. T. K. Paraíso, M. Wouters, Y. Léger, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud-Plédran, *Nat. Mater.* **9**(8), 655 (2010).
11. S. S. Gavrilov, *Phys.-Uspekhi* **63**, 123 (2020).
12. D. N. Krizhanovskii, S. S. Gavrilov, A. P. D. Love, D. Sanvitto, N. A. Gippius, S. G. Tikhodeev, V. D. Kulakovskii, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, and J. S. Roberts, *Phys. Rev. B* **77**, 115336 (2008).
13. A. A. Demenev, A. A. Shchekin, A. V. Larionov, S. S. Gavrilov, V. D. Kulakovskii, N. A. Gippius, and S. G. Tikhodeev, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 136401 (2008).
14. M. Sich, D. N. Krizhanovskii, M. S. Skolnick, A. V. Gorbach, R. Hartley, D. V. Skryabin, E. A. Cerda-Méndez, K. Biermann, R. Hey, and P. V. Santos, *Nat. Photonics* **6**(1), 50 (2012).
15. I. A. Shelykh, T. C. H. Liew, and A. V. Kavokin, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 116401 (2008).
16. D. Sarkar, S. S. Gavrilov, M. Sich, J. H. Quilter, R. A. Bradley, N. A. Gippius, K. Guda, V. D. Kulakovskii, M. S. Skolnick, and D. N. Krizhanovskii, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 216402 (2010).
17. R. Cerna, Y. Léger, T. K. Paraíso, M. Wouters, F. Morier-Genoud, M. T. Portella-Oberli, and B. Deveaud, *Nat. Commun.* **4**, 2008 (2013).
18. T. C. H. Liew, A. V. Kavokin, and I. A. Shelykh, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 016402 (2008).
19. A. V. Uvarov, S. S. Gavrilov, V. D. Kulakovskii, and N. A. Gippius, *Phys. Rev. A* **99**, 033837 (2019).
20. S. S. Gavrilov and N. A. Gippius, *Phys. Rev. B* **86**, 085317 (2012).
21. S. S. Gavrilov, A. A. Demenev, and V. D. Kulakovskii, *JETP Lett.* **100**, 817 (2015).
22. A. A. Demenev, D. D. Yaremkevich, A. V. Scherbakov, S. M. Kukhtaruk, S. S. Gavrilov, D. R. Yakovlev, V. D. Kulakovskii, and M. Bayer, *Phys. Rev. B* **100**, 100301 (2019).
23. A. A. Demenev, D. D. Yaremkevich, A. V. Scherbakov, S. S. Gavrilov, D. R. Yakovlev, V. D. Kulakovskii, and M. Bayer, *Phys. Rev. Appl.* **18**, 044045 (2022).
24. S. S. Gavrilov, A. V. Sekretenko, N. A. Gippius, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel, and V. D. Kulakovskii, *Phys. Rev. B* **87**, 201303 (2013).
25. S. S. Gavrilov, A. V. Sekretenko, S. I. Novikov, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel, and V. D. Kulakovskii, *Appl. Phys. Lett.* **102**(1), 011104 (2013).
26. S. S. Gavrilov, A. S. Brichkin, S. I. Novikov, S. Höfling, C. Schneider, M. Kamp, A. Forchel, and V. D. Kulakovskii, *Phys. Rev. B* **90**, 235309 (2014).
27. C. E. Whittaker, B. Dzurak, O. A. Egorov, G. Buonaiuto, P. M. Walker, E. Cancellieri, D. M. Whittaker, E. Clarke, S. S. Gavrilov, M. S. Skolnick, and D. N. Krizhanovskii, *Phys. Rev. X* **7**, 031033 (2017).
28. S. S. Gavrilov, *Phys. Rev. B* **106**, 045304 (2022).
29. A. V. Sekretenko, S. S. Gavrilov, S. I. Novikov, V. D. Kulakovskii, S. Höfling, C. Schneider, M. Kamp, and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **88**, 205302 (2013).
30. S. S. Gavrilov, *JETP Lett.* **105**(3), 200 (2017).

Неравновесные явления в планарных мезоскопических джозефсоновских SNS структурах на основе сверхпроводящего Nb

И. С. Лакунов⁺, С. В. Егоров^{+×}, Е. Д. Муханова⁺, И. Е. Батов^{+*}, Т. Е. Голикова⁺¹⁾,
В. В. Рязанов^{+°}

⁺ Институт физики твердого тела Российской академии наук, 142432 Черноголовка, Россия

^{*} Факультет физики, Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

[×] Российский квантовый центр, ИЦ “Сколково”, 121205 Москва, Россия

[°] Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 26 сентября 2023 г.

После переработки 26 сентября 2023 г.

Принята к публикации 28 сентября 2023 г.

Экспериментально исследованы неравновесные явления в планарных джозефсоновских SNS наноструктурах с Nb в качестве сверхпроводника (S) и Cu или Au в качестве нормального металла (N). При помощи дополнительных N-электродов, присоединенных к S-берегам джозефсоновского SNS контакта, выполнены транспортные измерения при низких температурах с инжекцией квазичастиц при использовании локальных и нелокальных схем подключения. Впервые экспериментально определена длина релаксации зарядового разбаланса в ниобии при температурах существенно ниже температуры сверхпроводящего перехода.

DOI: 10.31857/S123456782321005X, EDN: pshnaw

Современные сверхпроводящие мезоскопические электронные устройства, используемые в различных сферах деятельности от медицинских сенсоров и детекторов электромагнитного излучения до квантовых вычислительных схем, довольно часто работают в условиях, далеких от равновесия, а сами масштабы размеров структур сравнимы с характерными длинами релаксации неравновесных процессов. Поэтому важно уметь отделять сами когерентные квантовые явления [1, 2] от наблюдаемых сопутствующих эффектов, связанных с неравновесностью, знать их характерные времена, длины и температурные зависимости [3–6]. Из-за субмикронных размеров даже хорошо проводящих металлических барьеров в джозефсоновских структурах на их характеристики существенное влияние оказывают явления, связанные с джоулевским разогревом элементов [7], возникают и совершенно новые электрические и термоэлектрические явления, связанные с расщеплением куперовских пар (см., например, [8]). Из-за существенных электрических напряжений на границах раздела и сужениях в мезоскопических сверхпроводящих наноструктурах неравновесные квазичастицы появляются в сверхпроводниках и при температуре существен-

но ниже температуры сверхпроводящего перехода $T \ll T_c$, при которой квазищичный транспорт и их энергетическая релаксация затруднены. Поэтому механизмы переноса и релаксации квазищич в гибридных сверхпроводящих наноструктурах при низких температурах требуют детальных экспериментальных и теоретических исследований. Различные типы неравновесности включают в себя энергетический [9], зарядовый [10] и спиновый разбалансы [11].

Джозефсоновские гибридные структуры, содержащие наряду со сверхпроводниками нормальные металлы и ферромагнетики, в настоящее время используются для реализации устройств цифровой [12, 13] и квантовой логики [14, 15]. Для таких устройств неравновесные эффекты являются паразитными [16] и ограничивают область применения. Существуют попытки создавать структуры, свободные от квазищич [17] или предлагаются способы их подавления [18]. Однако для такого класса устройств как сверхпроводящие детекторы электромагнитного излучения и болометры [19, 20] неравновесные эффекты – основа их функционирования.

Зарядовый разбаланс, возникающий в сверхпроводниках при квазищичной инжекции, был детально исследован в работах [10, 21–24] вблизи температуры сверхпроводящего перехода. Недавно про-

¹⁾e-mail: golt2@list.ru

ведены низкотемпературные ($T \ll T_c$) исследования явления зарядового разбаланса в различных планарных наносистемах на основе сверхпроводящего Al с использованием локальных и нелокальных схем измерений [25–27]. Вместе с тем, наиболее востребованным сверхпроводником, применяющимся для изготовления различных устройств цифровой сверхпроводниковой электроники, детекторов, болометров, резонаторов и др., является ниобий, однако данные о характеристиках неравновесных процессов в литературе отсутствуют или приводятся косвенно [28], поэтому задача определения характерных величин, связанных с зарядовым (а в перспективе и спиновым) разбалансом квазичастиц в Nb, является актуальной для дальнейших исследований различных гибридных сверхпроводящих структур с нормальными металлами и ферромагнетиками.

В этой работе мы фокусируемся на исследовании неравновесного состояния, вызванного квазичастичной инжекцией, в мезоскопических многотерминальных джозефсоновских S/N системах, использующих Nb в качестве сверхпроводника. Оценки длины конверсии неравновесных квазичастиц в пары (длины релаксации зарядового разбаланса) λ_Q^* выполнены на основе модифицированной модели Кадина, Смита, Скочпола (КСС модели) [29, 30, 24] для используемой нелокальной схемы измерений.

На рисунке 1 приведено изображение одной из исследуемых структур, полученное при помощи сканирующего электронного микроскопа (СЭМ), которое дополнено используемыми в эксперименте схемами измерений. Различные слои металлов искусственно выделены цветом для ясности. В качестве сверхпроводника использовался Nb толщиной 50 нм, в качестве нормального металла – Cu, толщиной 30 нм. Образцы были изготовлены методом электронной литографии на двойном резисте (MMA El-11, PMMA 950K A3) и последующего теневого осаждения в высоковакуумной установке через созданную навесную маску под двумя углами. С целью улучшения адгезии сначала под углом 1 на подложку из оксидированного кремния электронно-лучевым методом осаждался ниобиевый подслоя толщиной 5 нм, после чего под углом 2 осаждались медные элементы структуры: Cu слой толщиной 30 нм, формирующий нормально-металлический (N) барьер джозефсоновского перехода и нормально-металлические электроды-инжекторы. Затем под углом 1 напылялся толстый Nb слой толщиной 50 нм, формирующий сверхпроводящие берега джозефсоновского перехода и подводящие линии. В конце процедуры изготовления под углом 2 напылялся защит-

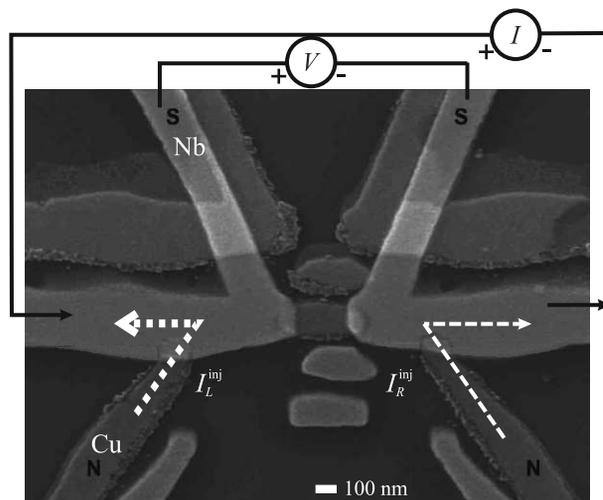


Рис. 1. (Цветной онлайн) СЭМ изображение джозефсоновской структуры Nb-Cu-Nb с дополнительными электродами-инжекторами из Cu, размещенными по разные стороны от джозефсоновского контакта. Слои Cu и Nb в структуре искусственно выделены цветом. Ввод тока I при локальной схеме измерений показан сплошной черной линией, при нелокальных – белой пунктирной линией для правого электрода (I_R^{inj}) и белым коротким пунктиром – для левого электрода (I_L^{inj}). Напряжение V во всех случаях измерялось при помощи сверхпроводящих электродов, расположенных рядом с джозефсоновским SNS контактом

ный Al слой толщиной 4 нм, с целью избежать окисления слоя меди. Два нормально-металлических электрода-инжектора размещены по разные стороны от джозефсоновского контакта на различных расстояниях d_L (левый) и d_R (правый). Это было сделано для того, чтобы исключить их взаимное влияние друг на друга при нелокальной инжекции квазичастиц: при расположении медных инжекторов с одной стороны от SNS контакта (как это было в [26]) ближний к SNS контакту инжектор мог несколько подавлять сверхпроводящую щель между дальним инжектором и джозефсоновским контактом и изменять условия конверсии квазичастиц, идущих от дальнего инжектора. Поскольку SN контакты Cu/Nb обоих медных инжекторов с Nb электродами джозефсоновского контакта имели практически одинаковую площадь (см. рис. 1) и были изготовлены в одном цикле осаждения, их свойства можно считать идентичными, что было использовано при выводе приведенных ниже соотношений для определения длины релаксации зарядового разбаланса. Было изготовлено несколько серий структур с различными расстояниями d_L , d_R и длиной нормальной медной полоски L (расстоянием между Nb электродами), формирую-

щей N-барьер джозефсоновского контакта. Указанные геометрические размеры образцов приведены в табл. 1.

Таблица 1. Размеры d_L , d_R для двух серий джозефсоновских структур (SNS-1 и SNS-2); температуры сверхпроводящего перехода T_c , определенные из эксперимента (см. вставки на рис. 2); результаты оценки эффективной энергии Таулеса, полученной из температурных зависимостей $I_c(T)$, рис. 3; длины релаксации зарядового разбаланса λ_{Q^*} (при $T = 3$ K), определенные по формуле (1)

	d_L (нм)	d_R (нм)	L (нм)	E_{Th}^* (мкэВ)	T_c (K)	λ_{Q^*} (нм)
SNS-1	465	320	250	16	6.9	140 ± 20
SNS-2	250	340	230	30	5.6	160 ± 30

Транспортные измерения проводились в экранированном криостате при температурах значительно ниже T_c Nb слоя (вплоть до 1.5 K). Для уменьшения электромагнитных шумов использовались RC-фильтры, встроенные в измерительные DC-линии непосредственно перед образцом.

В эксперименте применялись обычная 4-х точечная локальная схема измерений (ток I на рис. 1) и нелокальная схема измерений, при использовании которой ток I_{inj} из нормально-металлического инжектора выводился из того же сверхпроводящего берега SNS контакта, к которому присоединен этот инжектор. Напряжение V в обоих случаях измерялось при помощи сверхпроводящих электродов, расположенных рядом с джозефсоновским контактом.

На рисунке 2 приведены результаты транспортных измерений вольт-амперных характеристик по локальным и нелокальным схемам для двух серий структур SNS-1 (a) и SNS-2 (b). На вставках к рисункам (a) и (б) показаны резистивные переходы в сверхпроводящее состояние для структур SNS-1 и SNS-2, соответственно. На рисунке 2a представлено наблюдение нелокального эффекта Джозефсона [30, 26] на структуре SNS-1 при температуре $T = 3$ K: черной кривой показана вольт-амперная характеристика, измеренная по обычной (локальной) 4-точечной схеме, при этом наблюдался обычный критический сверхпроводящий ток $I_c = 2.6 \mu A$; красная кривая – измерение по нелокальной схеме, при этом ток I_{inj} задавался из ближнего к SNS контакту N-инжектора (R) и выводился из того же берега SNS контакта, к которому он присоединен, наблюдался “нелокальный критический ток” $I_{cR}^{inj} = 7.8 \mu A$; синяя кривая – нелокальная вольт-амперная характеристика (ВАХ) при задании тока I_{inj} из дальнего инжектора (L), наблюдался “нелокальный критический ток” $I_{cL}^{inj} \approx 22 \mu A$ (см. рис. 1). Можно заметить, что

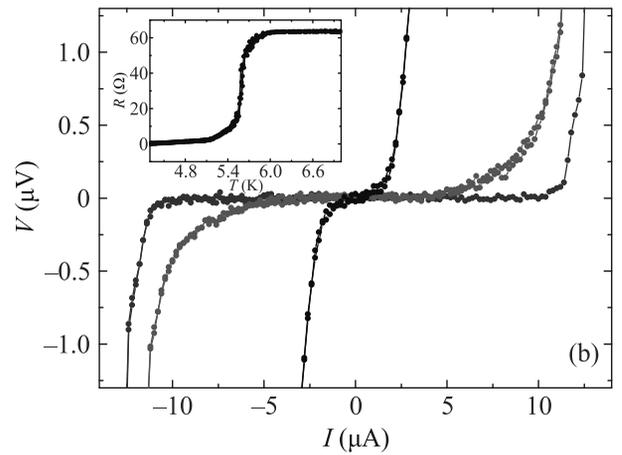
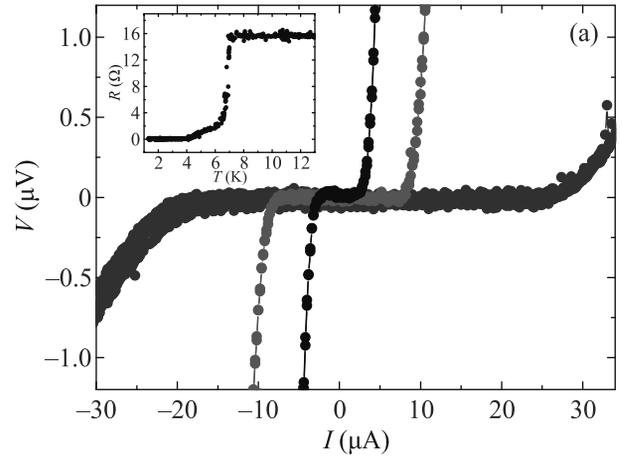


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – ВАХ при $T = 3$ K для одной из структур серии SNS-1 Nb-Cu-Nb: черная кривая – локальная схема измерений; синяя кривая – нелокальная схема измерений, при которой ток задается из дальнего инжектора; красная кривая – нелокальная схема измерений при токе из ближайшего к SNS контакту инжектора. Вставка: зависимость сопротивления от температуры для структуры SNS-1 Nb-Cu-Nb. (b) – Аналогичные ВАХ – для одной из структур SNS-2 при $T = 4.2$ K. Вставка: зависимость сопротивления от температуры для структуры SNS-2 Nb-Cu-Nb

последняя вольт-амперная характеристика является ассиметричной, что связано, по-видимому, с относительно большим критическим током инжекции I_{cL}^{inj} , что приводит к существенному джоулеву разогреву левой части структуры и появлению дополнительного термоэлектрического вклада, подробно исследованного в [31].

Наблюдаемое явление нелокального сверхпроводящего тока связано с тем, что существенная часть инжектируемых квазичастиц с энергией, превышаю-

щей сверхпроводящую щель Δ , проникает в сверхпроводник на характерную длину конверсии неравновесных квазичастиц в пары λ_{Q^*} в обоих направлениях от нормального инжектора и достигает области слабой связи джозефсоновского контакта. Поскольку в нелокальной схеме полный ток через джозефсоновский контакт должен быть равен нулю, то возникает противоток куперовских пар, чтобы компенсировать поток неравновесных квазичастиц, и как только этот противоток достигает значения критического тока I_c , на контакте появляется нелокальное напряжение V . Наблюдаемый инжекционный критический ток I_c^{inj} больше, чем I_c , так как только малая доля задаваемого через N-инжектор квазичастичного тока достигает джозефсоновского контакта. Часть нормальных носителей превращается в куперовские пары непосредственно на границе раздела N-инжектор/сверхпроводник за счет андреевского отражения, а часть – конвертируется в пары на участке сверхпроводника от N-инжектора и до джозефсоновского контакта и возвращается к источнику тока (см. подробнее [26]). Таким образом, чем ближе N-инжектор к джозефсоновскому контакту, тем меньше величина критического тока инжекции I_c^{inj} , что и наблюдается в эксперименте. На рисунке 2b приведены также результаты аналогичных измерений для одной из структур серии SNS-2, где расстояния от слабой связи до инжекторов были сделаны *короче* (табл. 1). Это позволило наблюдать нелокальный эффект Джозефсона в более широком диапазоне температур от 3 до 5.4 К.

Кроме того, для всех структур в качестве характеристики джозефсоновских контактов были измерены температурные зависимости их критических сверхпроводящих токов $I_c(T)$. Результаты приведены на рис. 3, где серые точки соответствуют измерениям структуры SNS-1, а черные – экспериментальным данным по образцу SNS-2. Соответствующими линиями показаны теоретические температурные зависимости нормированного критического тока $I_c(T)/I_c(2K)$. Для расчета использовался подход, разработанный в [32] для случая узкого планарного диффузионного SNS контакта. В нашем случае предварительно определенные экспериментальные данные по структурам были следующие: удельное сопротивление Cu $\rho_n = 1.97 \text{ мкОм} \cdot \text{см}$, коэффициент диффузии Cu $D_n = 180 \text{ см}^2/\text{с}$, сопротивление нормальной части SNS контакта $R_N = 1 \text{ Ом}$, удельное сопротивление Nb в нормальном состоянии $\rho_s = 20 \text{ мкОм} \cdot \text{см}$. Для теоретического описания в качестве подгоночного параметра мы использовали эффективную энергию Таулесса E_{Th}^* [33–36]. По-

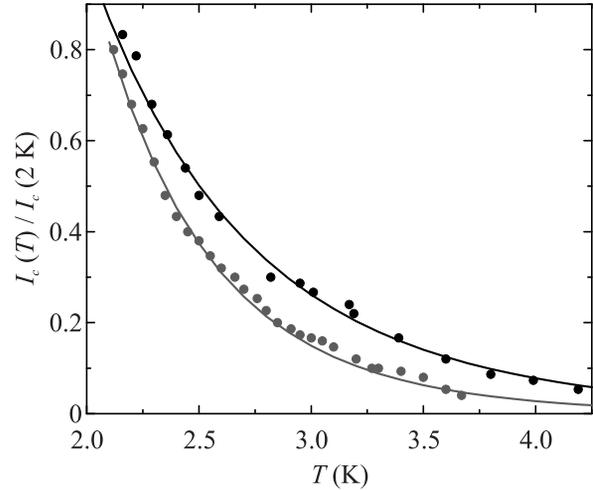


Рис. 3. Зависимости критического сверхпроводящего тока I_c от температуры для образцов SNS-1 (серые точки) и SNS-2 (черные точки). Соответствующие линии – теоретические расчеты по экспериментальным данным

лученные значения эффективной энергии Таулесса 16 мкэВ для SNS-1 и 30 мкэВ для SNS-2 (табл. 1) оказались ниже значения энергии Таулесса, рассчитанного из транспортных измерений $E_{Th} = \hbar D_n / L^2 = 130 \text{ мкэВ}$, что свидетельствует о наличии барьеров на границах раздела сверхпроводник-нормальный металл в исследуемых джозефсоновских структурах. SN-границы являются идентичными как для самого SNS контакта, так и для контакта инжектора со сверхпроводником, поскольку были технологически изготовлены одновременно. Следовательно, необходимое количество квазичастиц для наблюдения нелокального эффекта Джозефсона инжектируется в сверхпроводник из нормального металла над щелью даже при низких температурах по причине возникновения напряжения на NS-границе инжектор-сверхпроводник.

Использованные нелокальные схемы рис. 1 и измеренные данные по нелокальным значениям критических токов $I_c^{\text{nonlocal}} \equiv I_c^{\text{inj}}$ для левого и правого инжекторов позволяют применить для оценки длины релаксации зарядового разбаланса λ_{Q^*} в Nb формулу, полученную в [26], исключаящую из рассмотрения частичную конверсию квазичастиц в пары непосредственно на NS контактах медных инжекторов с ниобиевыми берегами:

$$\lambda_{Q^*} = \frac{d_L - d_R}{\ln(I_{cL}^{\text{inj}}/I_{cR}^{\text{inj}})}. \quad (1)$$

Полученные значения λ_{Q^*} при $T \ll T_c$ для образцов SNS-1 и SNS-2, данные по которым представлены на рис. 2a, b, приведены в табл. 1.

Для нескольких структур серии SNS-2 была получена температурная зависимость нелокальных критических токов, которая приведена на рис. 4, крас-

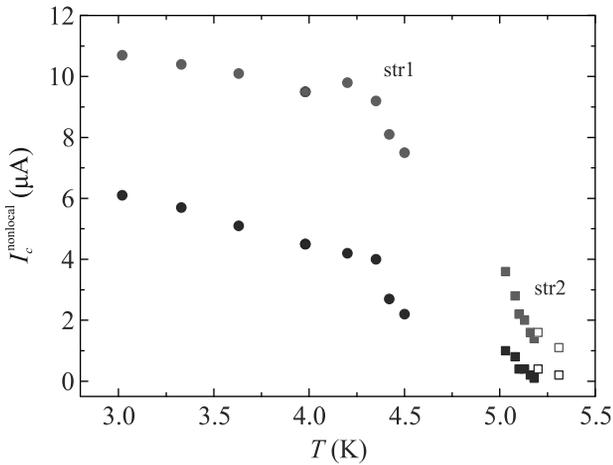


Рис. 4. (Цветной онлайн) Температурные зависимости нелокальных критических токов I_c^{nonlocal} . Красные символы соответствуют значениям, полученным при инжекции из дальнего инжектора, синие символы – из ближнего инжектора, разными символами показаны результаты для разных структур серии

ные символы соответствуют дальнему инжектору, синие – ближнему, разными символами показаны результаты, полученные на разных, но идентичных структурах str1 и str2 серии SNS-2.

Полученные значения наблюдаемых нелокальных критических токов позволили определить с использованием формулы (1) длину релаксации зарядового разбаланса λ_{Q^*} в Nb в исследуемом диапазоне температур, в том числе и при низких температурах $T \ll T_c$. Эти результаты приведены на рис. 5 в виде точек и звездочек для структур str1 и str2, соответственно (серия SNS-2). Результат нелокального измерения при 3 К для структуры SNS-1 также согласуется с полученными значениями: $\lambda_{Q^*} \approx 140$ нм в пределах точности определения.

Из полученных данных видно, что в низкотемпературном диапазоне λ_{Q^*} в Nb слабо зависит от температуры, при этом, при повышении температуры наблюдается заметное уменьшение. Похожие результаты были получены и для Al [26, 27]. Для случая низких температур ($k_B T \ll \Delta$), когда квазичастицы поднимаются над щелью с помощью напряжения V на границе N-инжектор/сверхпроводник в формуле для времени релаксации заряда квазичастиц τ_{Q^*} , выведенной для равновесного распределения, нужно использовать eV вместо $k_B T$: $\tau_{Q^*}^{-1} \propto \propto [\Delta(T)/eV]\tau_E^{-1}$, где величина eV , возникающая на

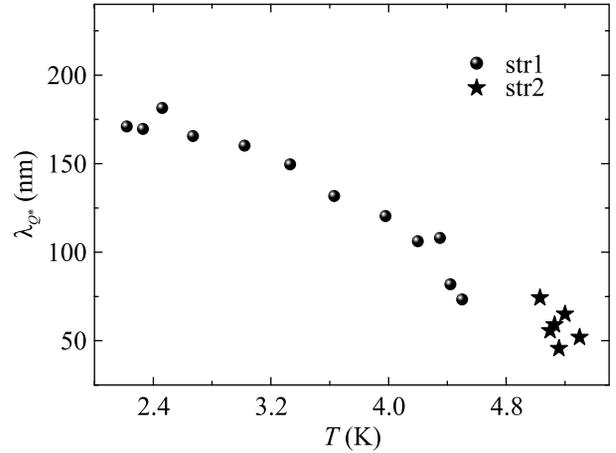


Рис. 5. Длина релаксации зарядового разбаланса λ_{Q^*} в Nb в исследуемом температурном диапазоне для серии структур SNS-2: структура str1 – точки, структура str2 – звездочки

N/S границе на инжекторе, определяется величиной критического тока джозефсоновского контакта, температурная зависимость которого представлена на рис. 4. Чем больше уменьшается критический ток при увеличении температуры, тем меньше инжектируемый ток квазичастиц, который требуется чтобы достичь критического значения на джозефсоновском контакте, и соответствующее напряжение eV . Мы полагаем, что это одна из основных причин спадающей температурной зависимости $\lambda_{Q^*}(T)$, представленной на рис. 5.

Также нами была реализована и исследована другая система для изучения зарядового разбаланса, представленная на рис. 6а вместе с измерительной схемой. Образцы были изготовлены методом электронной литографии с совмещением слоев в два этапа. Сначала при помощи электронной литографии формировалась маска на двойном резисте, затем под прямым углом термически распылялся слой золота (это делалось для того, чтобы избежать изгибов пленки на краях слоя), после чего проводилась взрывная литография и формировались полоски Au. Затем наносился одинарный слой электронного резиста и выполнялась электронная литография с совмещением слоев. После чего магнетронным распылением с предварительной очисткой ионами аргона формировался слой Nb.

В данном случае джозефсоновский SNS переход Nb-Au-Nb (толщины слоев: Nb – 70 нм, Au – 30 нм) использовался уже как инжектор заряда Q неравновесных квазичастиц. В качестве детектора зарядового разбаланса использовались расположенные вертикально напротив друг друга сверхпроводящий (Nb) и

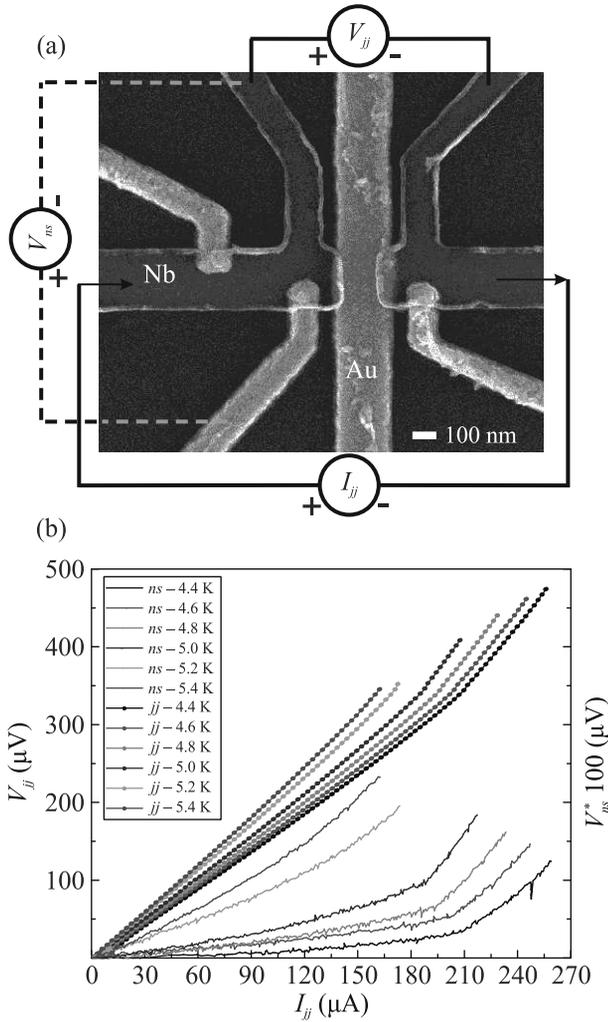


Рис. 6. (Цветной онлайн) (а) – Изображение SNS структуры Nb-Au-Nb, полученное при помощи сканирующего электронного микроскопа, и схемы измерений. (б) – В левой верхней части представлены пунктиром ВАХ джозефсоновского SNS контакта; соответствующие напряжения V_{jj} на схеме показаны на левой оси. Сплошными линиями представлено напряжение зарядового разбаланса, возникающее между сверхпроводящим и нормальным электродами V_{ns} при тех же токах через контакт (правая ось, масштаб которой увеличен в 100 раз по сравнению с левой осью). Кривые для одинаковых температур показаны одним цветом

нормальный (Au) электроды, измеряющие разность химических потенциалов нормальной μ_N и сверхпроводящей μ_S электронных компонент в сверхпроводнике. Напряжение, возникающее между этими S и N контактами и определяемое разностью химпотенциалов $(\mu_N - \mu_S)$, непосредственно связано с разбалансом заряда $Q = 2N(0)(\mu_N - \mu_S)$, где $N(0)$ – плотность состояний электронов на уровне Ферми [22].

Заряд Q релаксирует в сверхпроводнике на характерной длине λ_{Q^*} . Градиент ∇Q определяет проникновение в сверхпроводник продольного электрического поля $E = -\nabla Q/[2eN(0)]$ и возникновение дополнительного к сопротивлению N-барьера избыточного сопротивления SNS перехода $R = 2R_{exc} + R_0$, $R_{exc} = Z(T)\rho_S\lambda_{Q^*}/S$ [23, 37], где $Z(T)$ – доля квазичастиц, не испытавших андреевского отражения на NS-границе и прошедших в сверхпроводник, а S – площадь поперечного сечения сверхпроводника. Такое избыточное сопротивление в нашем случае должно наблюдаться при измерении V_{jj} сверхпроводящими ниобиевыми контактами, расположенными по разные стороны от джозефсоновского SNS перехода. При подключении вольтметра к нормальному и сверхпроводящему контактам, расположенным напротив друг друга на одном расстоянии от NS границ джозефсоновского перехода можно измерить напряжение V_{ns} , определяющее разность химических потенциалов $\mu_N - \mu_S$: $V_{ns}(x) = (\mu_N - \mu_S)/e$. На рисунке 6б показаны две серии кривых для разных температур, одна из которых представляет ВАХ SNS перехода, измеренную двумя сверхпроводящими (S) электродами (на схеме рис. 6а напряжение V_{jj}), а вторая – напряжение между сверхпроводящим и нормальным электродами (на схеме рис. 6а напряжение V_{ns}) при одном и том же токе через SNS контакт, задаваемом вдоль сверхпроводящих берегов (ток I_{jj}). ВАХ контактов при низких температурах показывают небольшой критический ток (слабо различимый в представленном масштабе). Практически линейный, особенно при самых низких температурах, участок ВАХ сопровождается заметным изломом при достижении “целевого” напряжения. Можно видеть, что сверхпроводящая энергетическая щель ниобиевой пленки (~ 0.3 мэВ) заметно подавлена близостью с золотой пленкой, на которую она нахлестнута (невозмущенная щель Nb ~ 1.4 мэВ). При этих же значениях тока возникает еще более заметный перелом на кривой для напряжения V_{ns} между S и N электродами, поскольку в сверхпроводник из нормального металла инжектируется большое количество надщелевых неравновесных квазичастиц. Можно видеть, что и до излома, фактически, при всех температурах существует небольшое напряжение V_{ns} , связанное с проникновением квазичастиц над щелью. Их доля определяется превышением над щелью суммы приложенного к SNS переходу напряжения (вернее, энергии eV) и температурного распределения kT . Остальные (подщелевые) квазичастицы испытывают андреевское отражение на NS границах и не проникают в сверхпроводник.

Можно видеть, что чем выше температура, тем выше вклад неравновесных квазичастиц в оба измеряемых напряжения.

В отличие от хорошо исследованного теоретически и экспериментально высокотемпературного режима вблизи критической температуры сверхпроводника, когда возникновение явления зарядового разбаланса определяется в основном температурой, в низкотемпературной области появление зарядового разбаланса, как это указывалось выше, существенно зависит от напряжения, при котором происходит инжектирование квазичастиц через NS границу. В условиях достаточно низкой температуры и хорошо развитой сверхпроводящей щели инжектированные в сверхпроводник неравновесные электроны довольно сильно перегреты. Их эффективная температура тем выше, чем выше напряжение инжекции. Электрон-электронная релаксация является одним из основных механизмов релаксации зарядового разбаланса при низких температурах.

Таким образом, экспериментально были изучены неравновесные эффекты в многотерминальных джозефсоновских SNS наноструктурах с Nb в качестве сверхпроводника в низкотемпературном режиме $T \ll T_c$. Впервые экспериментально определена характерная длина релаксации зарядового разбаланса в Nb $\lambda_{Q^*} \approx 140$ нм при температуре ниже 4 К при помощи нелокальной схемы измерения критических токов. Эта длина оказалась существенно меньше, чем в сверхпроводящем Al ($\lambda_{Q^*} \approx 5$ мкм), что может быть полезно для реализации различных сверхпроводящих квантовых схем, детекторов излучения и других устройств, включающих в себя Nb. Детальное обсуждение механизмов возникновения и релаксации зарядового разбаланса в гибридных сверхпроводящих наноструктурах будет опубликовано вскоре нами в более подробной статье.

Изготовление наноструктур и низкотемпературные измерения были выполнены при поддержке гранта Российского научного фонда # 22-12-00342.

1. D. Beckmann, H. B. Weber, and H. v. Löhneysen, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 197003 (2004).
2. F. J. Jedema, M. S. Nijboer, A. T. Filip, and B. J. van Wees, *Phys. Rev. B* **67**, 085319 (2003).
3. P. Santhanam, C. C. Chi, S. J. Wind, M. J. Brady, and J. J. Bucchignano, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2254 (1991).
4. P. Cadden-Zimansky and V. Chandrasekhar, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 237003 (2006).
5. K. Ohnishi, T. Kimura, and Y. Otani, *J. Supercond. Nov. Magn.* **24**, 303306 (2011).
6. G. Catelani, R. J. Schoelkopf, M. H. Devoret, and L. I. Glazman, *Phys. Rev. B* **84**, 064517 (2011).
7. H. Courtois, M. Meschke, J. T. Peltonen, and J. P. Pekola, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 067002 (2008).
8. D. S. Golubev, N. S. Kirsanov, Z. B. Tan, A. Laitinen, A. Galda, V. M. Vinokur, M. Haque, A. Savin, G. B. Lesovik, and P. J. Hakonen, *AIP Conf. Proc.* **2362**, 030003 (2021).
9. S. B. Kaplan, C. C. Chi, D. N. Langenberg, J. J. Chang, S. Jafarey, and D. J. Scalapino, *Phys. Rev. B* **14**, 4854 (1976).
10. S. N. Artemenko and A. F. Volkov, *Sov. Phys. Usp.* **22**, 295 (1979).
11. F. S. Bergeret, M. Silaev, P. Virtanen, and T. T. Heikkilä, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 041001 (2018).
12. M. I. Khabipov, D. V. Balashov, F. Maibaum, A. B. Zorin, V. A. Oboznov, V. V. Bolginov, A. N. Rossolenko, and V. V. Ryazanov, *Supercond. Sci. Technol.* **23**, 045032 (2010).
13. T. Scheller, F. Mueller, R. Wendisch, O. Kieler, U. Springborn, K. Stoer, B. Egeling, T. Weimann, L. Palafox, R. Behr, and J. Kohlmann, *Physics Procedia* **36**, 48 (2012).
14. A. K. Feofanov, V. A. Oboznov, V. V. Bol'ginov, J. Lisenfeld, S. Poletto, V. V. Ryazanov, A. N. Rossolenko, M. Khabipov, D. Balashov, A. B. Zorin, P. N. Dmitriev, V. P. Koshelets, and A. V. Ustinov, *Nat. Phys.* **6**, 593 (2010).
15. A. V. Shcherbakova, K. G. Fedorov, K. V. Shulga, V. V. Ryazanov, V. V. Bolginov, V. A. Oboznov, S. V. Egorov, V. O. Shkolnikov, M. J. Wolf, D. Beckmann, and A. V. Ustinov, *Supercond. Sci. Technol.* **28**, 025009 (2015).
16. U. Patel, I. V. Pechenezhskiy, B. L. T. Plourde, M. G. Vavilov, and R. McDermott, *Phys. Rev. B* **96**, 220501(R) (2017).
17. E. T. Mannila, P. Samuelsson, S. Simbierowicz, J. T. Peltonen, V. Vesterinen, L. Grönberg, J. Hassel, V. F. Maisi, and J. P. Pekola, *Nat. Phys.* **18**, 145 (2022).
18. M. Marin-Suarez, J. T. Peltonen, and J. P. Pekola, *Nano Lett.* **20**(7), 5065 (2020).
19. G. N. Goltsman, O. Okunev, G. Chulkova, A. Lipatov, A. Semenov, K. Smirnov, B. Voronov, A. Dzardanov, C. Williams, and R. Sobolewski, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 705 (2001).
20. Yu. Korneeva, I. Florya, S. Vdovichev, M. Moshkova, N. Simonov, N. Kaurova, A. Korneev, and G. Goltsman, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **27** 2201504 (2017).
21. A. Schmid and G. Schön, *J. Low Temp. Phys.* **20**, 207 (1975).
22. G. J. Dolan and L. D. Jackel, *Phys. Rev. Lett.* **39**, 1628 (1977).
23. Yu. I. Latyshev and F. Ya. Nad', *JETP Lett.* **29**, 557 (1979).

24. В.К. Каплуненко, В.В. Рязанов, В.В. Шмидт, *ЖЭТФ* **89**(4(10)), 1389 (1985).
25. F. Hübler, J. Camirand Lemyre, D. Beckmann, and H. v. Löhneysen, *Phys. Rev. B* **81** 184524 (2010).
26. T. E. Golikova, M. J. Wolf, D. Beckmann, I. E. Batov, I. V. Bobkova, A. M. Bobkov, and V. V. Ryazanov, *Phys. Rev. B* **89**, 104507 (2014).
27. K. Yu. Arutyunov, S. A. Chernyaev, T. Karabassov, D. S. Lvov, V. S. Stolyarov, and A. S. Vasenko, *J. Phys.: Condens. Matter* **30**, 343001 (2018).
28. D. W. Floet, J. J. A. Baselmans, T. M. Klapwijk, and J. R. Gao, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2826 (1998).
29. A. M. Kadin, L. N. Smith, and W. J. Skocpol, *J. Low Temp. Phys.* **38**, 497 (1980).
30. V. K. Kaplunenko and V. V. Ryazanov, *Phys. Lett. A* **110**, 145 (1985).
31. М.В. Карцовник, В.В. Рязанов, В.В. Шмидт, *Письма в ЖЭТФ* **33**, 373 (1981).
32. F. S. Bergeret and J. C. Cuevas, *J. Low Temp. Phys.* **153**, 304 (2008).
33. J. C. Hammer, J. C. Cuevas, F. S. Bergeret, and W. Belzig, *Phys. Rev. B* **76**, 064514 (2007).
34. F. Carillo, D. Born, V. Pellegrini, F. Tafuri, G. Biasiol, L. Sorba, and F. Beltram, *Phys. Rev. B* **78**, 052506 (2008).
35. R. Frielinghaus, I. E. Batov, M. Weides, H. Kohlstedt, R. Calarco, and Th. Schäpers, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 132504 (2010).
36. H. Y. Guenel, I. E. Batov, H. Hardtdegen, K. Sladek, A. Winden, K. Weis, G. Panaitov, D. Grützmacher, and Th. Schäpers, *J. Appl. Phys.* **112**, 034316 (2012).
37. V. V. Ryazanov, V. V. Schmidt, and L. A. Ermolaeva, *J. Low Temp. Phys.* **45**, 507 (1981).

Эволюция электронной структуры и транспортных свойств Ca_2N при изменении размерности электридного подпространства под давлением

М. А. Мазанникова^{+*×1)}, Д. М. Коротин^{+*}, В. И. Анисимов^{+*×}, А. Р. Оганов^{*}, Д. Ю. Новоселов^{+*×}

⁺Институт физики металлов имени М. Н. Михеева Уральского отделения РАН,
620108 Екатеринбург, Россия

^{*}Сколковский институт науки и технологий, 121205 Москва, Россия

[×]Физико-технологический институт,
Уральский федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 7 сентября 2023 г.

После переработки 26 сентября 2023 г.

Принята к публикации 26 сентября 2023 г.

Используя метод максимально локализованных функций Ванье (MLWF) описаны меузельные квазиатомные состояния (МКС), находящиеся в центрах неядерных аттаркторов, соответствующих определенным позициям Вайкоффа между атомами кальция. Это позволило сделать вывод о том, что именно волновые функции электридной подсистемы формируют зонную структуру вблизи уровня Ферми во всех фазах Ca_2N , наблюдаемых под давлением. Используя полученный базис МЛФВ для решения квазиклассических уравнений переноса Больцмана, вычислены электронная проводимость и теплопроводность, а также коэффициент Зеебека. Показано, что экспериментально наблюдаемое, на первый взгляд контринтуитивное, увеличение электрического сопротивления под давлением в Ca_2N объясняется ростом локализации меузельных электронных состояний при $2\text{D} \rightarrow 1\text{D} \rightarrow 0\text{D}$ переходах. Кроме того, обнаружена существенная анизотропия электронных транспортных свойств 2D -фазы, а также установлено, что проводимость внутри плоскости электридных слоев обеспечивается электронами, тогда как вдоль нормали к слоям основными носителями являются дырки.

DOI: 10.31857/S1234567823210061, EDN: pqwjid

1. Введение. В последнее время в научном сообществе наблюдается заметный рост интереса к новому классу материалов, известных как неорганические электриды [1–12]. Они обладают значительным потенциалом для разработок новых перспективных материалов. Электриды относятся к уникальной категории ионных соединений, в которых избыточные электроны распределяются внутри пустот кристаллической решетки, играя роль анионов [13]. Наличие в электридах электронов, слабо связанных с атомами решетки, приводит к появлению особенностей электронной структуры, которые обуславливают их уникальные физические и химические свойства. Эти свойства включают высокую подвижность электронов, чрезвычайно низкую работу выхода, способность выступать в роли эффективных доноров электронов, а также окислительную и каталитическую активность [7, 14]. Упомянутые особенности электронной структуры делают электриды весьма при-

влекательными для широкого спектра применений, включая их использование в качестве катализаторов [15], материалов для электродов аккумуляторов [16], сверхпроводников [17], и новых магнитных материалов [18].

Одним из таких соединений является слоистый электрид $[\text{Ca}_2\text{N}]^+ \cdot e^-$, характеризующийся наличием анионных электронов, заключенных в двумерной области между двумя слоями Ca-N [19]. Исследования [19] показывают, что этот материал под воздействием внешнего давления претерпевает последовательность структурных фазовых переходов, начиная с фазы $R\bar{3}m$, затем переходя в фазу $Fd\bar{3}m$, далее в фазу $I\bar{4}2d$, и, наконец, в фазу Cc . Эти переходы сопровождаются постепенным уменьшением размерности электридного подпространства $2\text{D} \rightarrow 1\text{D} \rightarrow 0\text{D}$. В то же время, экспериментальные измерения электрического сопротивления [19] обнаруживают переход из металлической фазы в полупроводниковую фазу с ростом давления. Ранее было показано [12, 20], что локализация меузельных электронных состояний

¹⁾e-mail: mazannikova@imp.uran.ru

играет важную роль в формировании электронной структуры электридов, в особенности вблизи уровня Ферми. Следовательно, любые изменения степени локализации могут вызвать существенные изменения транспортных свойств таких материалов. Целью данной работы является теоретическое исследование роли межузельных электронных состояний в формировании транспортных свойств Ca_2N , таких как электронная проводимость, теплопроводность и коэффициент Зеебека, а также их эволюции с изменением размерности электридного подпространства. В настоящей работе для описания подпространства электридных состояний предлагается использовать базис максимально локализованных функций Ванье (МЛФВ) [21], центрированных в позициях Вайкоффа, соответствующих неядерным аттракторам. Далее полученный базис используется для решения полуклассических уравнений переноса Больцмана [22].

2. Вычислительные методы. Расчеты электронной структуры проводились с использованием метода теории функционала плотности (ТФП) в рамках обобщенного градиентного приближения и функционала PBE [23], реализованного в пакете Quantum ESPRESSO [24]. Исходные данные о кристаллической структуре Ca_2N были взяты из [19]. Интегрирование в обратном пространстве проводилось на регулярной сетке k -точек размером $16 \times 16 \times 16$ в неприводимой части зоны Бриллюэна. Базис МЛФВ был построен с использованием пакета Wannier90 [25]. Электронные транспортные свойства рассчитывались путем решения полуклассических уравнений переноса Больцмана в приближении постоянного времени релаксации с использованием кода BoltzWann [22], встроенного в пакет Wannier90 [25]. Заряды Бейдера [26] рассчитывались с помощью программы Critic2 [27].

3. Результаты и обсуждение.

3.1. Волновые функции межузельных состояний.

При нормальных условиях избыточные анионные электроны в Ca_2N образуют двумерные электронные слои в плоскости xy кристаллической структуры $R\bar{3}m$ [19]. Зонная структура в окрестности уровня Ферми состоит из 4 гибридизированных энергетических зон, включая три p -N зоны и одну зону, соответствующую межузельному электронному состоянию (см. рис. 1). Таким образом, в базис состояний, лежащих вблизи Ферми, входят 4 МЛФВ. Первая МЛФВ, соответствующая электридному состоянию, центрирована в позициях Вайкоффа $3b$ и имеет s -подобную орбитальную симметрию. Вклад первой МЛФВ в зонную структуру показан на рис. 1a светло-фиолетовым цветом. Как видно, межузель-

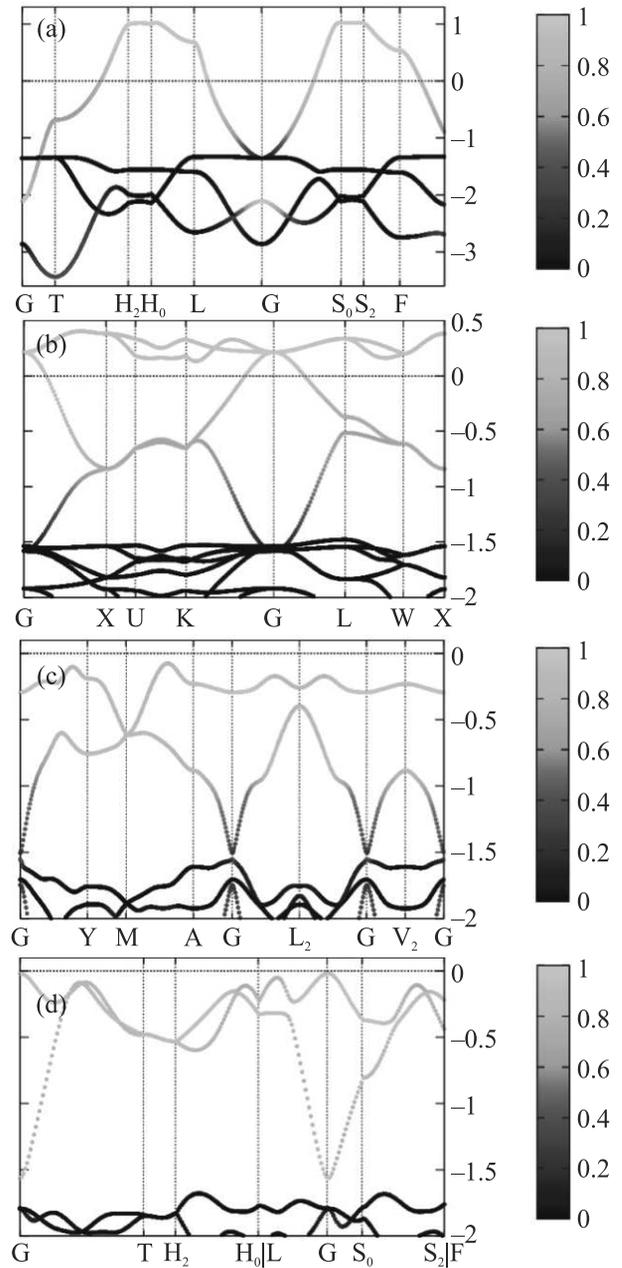


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зонная структура Ca_2N относительно уровня Ферми (E_F) для: (a) – $R\bar{3}m$; (b) – $Fd\bar{3}m$; (c) – $I\bar{4}2d$; (d) – Cc структур (сплошные черные кривые) и МЛФВ с цветными проекциями компонент межузельных МЛФВ

ные электроны в основном занимают частично заполненную зону, пересекающую уровень Ферми и обеспечивающую металличность этой фазы. Ширина электридной зоны в этом случае составляет около 2 эВ. Остальные три МЛФВ описывают три полностью заполненные энергетические зоны в интервале $[-3, 5; -1, 2]$ эВ. Они имеют p -орбитальную симметрию и центрированы на атомах азота. Из рисунка 1a

видно, что единственная энергетическая зона, пересекающая уровень Ферми, преимущественно образована межузельными электронными состояниями, что наглядно подтверждает предположение о том, что именно избыточные анионные электроны ответственны за транспортные свойства этого материала в двумерной фазе.

Как показано в [19], увеличение давления примерно до 12.7 ГПа приводит к переходу из фазы $R\bar{3}m$ в фазу $Fd\bar{3}m$. Этот переход сопровождается уменьшением размерности электридного подпространства с 2D до 1D. Базис МЛФВ структуры $Fd\bar{3}m$ включает 16 состояний, 4 из которых соответствуют анионным электронным состояниям, расположенным в 16с позициях Вайкоффа. Остальные 12 представляют собой полностью занятые p -состояния четырех атомов азота. Вклад первых четырех МЛФВ в зонную структуру показан на рис. 1b. Как видно из этого рисунка, основной вклад в четыре энергетических зоны, лежащие вблизи уровня Ферми и пересекающие его, вносят межузельные электронные состояния. Общая ширина электридной зоны для 1D-случая близка к ширине в 2D-фазе и составляет около 2 эВ. Однако в этом случае в спектре межузельных состояний образуются две подзоны с различной дисперсией: одна частично заполненная имеет ширину около 1.7 эВ, а вторая – полностью пустая шириной менее 0.5 эВ. Такая дисперсия свидетельствует об увеличении степени локализации межузельных состояний при 2D–1D переходе. Кроме того, можно заключить, что как и в 2D случае, транспортные свойства в 1D фазе также определяются межузельными электронами.

Дальнейшее увеличение давления вызывает следующий переход в фазу $I\bar{4}2d$ примерно при 20.5 ГПа [19]. В этой фазе подпространство межузельных электронов имеет нулевую размерность. Другой переход, также в 0D-электридную фазу с симметрией C_6 происходит при 37.5 ГПа [19]. Для получения базиса МЛФВ для фаз $I\bar{4}2d$ и C_6 было спроектировано 14 состояний; первые два соответствуют состояниям электрида, а остальные 12 связаны с полностью заполненными p -состояниями четырех атомов N. Для структуры $I\bar{4}2d$ первые две функции Ванье были центрированы в позициях Вайкоффа 4b. Для кристаллической структуры с симметрией C_6 первые два состояния были центрированы в позициях (0.500, 0.750, 0.125), (0.000, 0.125, 0.750). Вклад межузельных МЛФВ в зонную структуру фаз $I\bar{4}2d$ и C_6 показан на рис. 1c и 1d соответственно. Обе 0D-фазы имеют энергетическую щель, а их межузельные состояния полностью

заполнены, и образуют потолок валентной зоны. В обоих случаях дисперсия двух электридных зон заметно различается. При этом верхняя зона – достаточно плоская и имеет ширину всего около 0.5 эВ, что указывает на сильную локализацию соответствующих электронных состояний.

Таким образом, во всех рассмотренных фазах Ca_2N основной вклад в зонную структуру вблизи уровня Ферми вносят межузельные электронные состояния. Изменение дисперсии энергетических зон и уменьшение размерности электридного подпространства свидетельствуют об увеличении степени локализации этих состояний при фазовых переходах. Эти наблюдения позволяют предположить, что характер наблюдаемого в эксперименте необычного поведения сопротивления, возрастающего с ростом давления, полностью определяется свойствами электридной электронной подсистемы Ca_2N .

3.2. Пространственное распределение ФЛЭ и МЛФВ. Для описания топологии пространственного распределения межузельной зарядовой плотности и степени локализации анионных электронов в различных фазах Ca_2N мы рассчитали функцию локализации электронов (ФЛЭ) [28] и заряд Бейдера. Поиск неядерных аттракторов в бассейнах Бейдера позволил определить позиции Вайкоффа для межузельных центров локализации. На рисунке 2 (верхняя панель) показаны изоповерхности ФЛЭ для структур с $R\bar{3}$, $Fd\bar{3}m$, $I\bar{4}2d$, C_6 симметрией со значениями коэффициента изоповерхности 0.55, 0.7, 0.8 и 0.8 соответственно.

В кристаллической структуре $R\bar{3}m$ анионные электроны образуют двумерный слой электронного газа, ограниченный атомами кальция. Расчеты заряда Бейдера показывают наличие максимума неядерной зарядовой плотности в том же положении, что и максимально локализованная функция Ванье электрида (МЛФВ). МЛФВ, соответствующие электридным электронным состояниям, изображены на нижней панели рис. 2. Однако интегральный заряд внутри этого бассейна Бейдера чрезвычайно низок, менее 0.01 электрона. Это наблюдение объясняется высокой степенью делокализации электронов, присущей этой структурной конфигурации.

В кристаллической структуре $Fd\bar{3}m$ анионные электроны образуют непрерывную одномерную зарядовую сеть, как это видно из представления изоповерхности ФЛЭ (рис. 2, верхняя панель). Изоповерхность суммы четырех получившихся электридных МЛФВ показана на нижней панели рис. 2. Рассчитанный заряд Бейдера составляет 1.5 электрона (0.375 на одну формульную единицу), что значительно

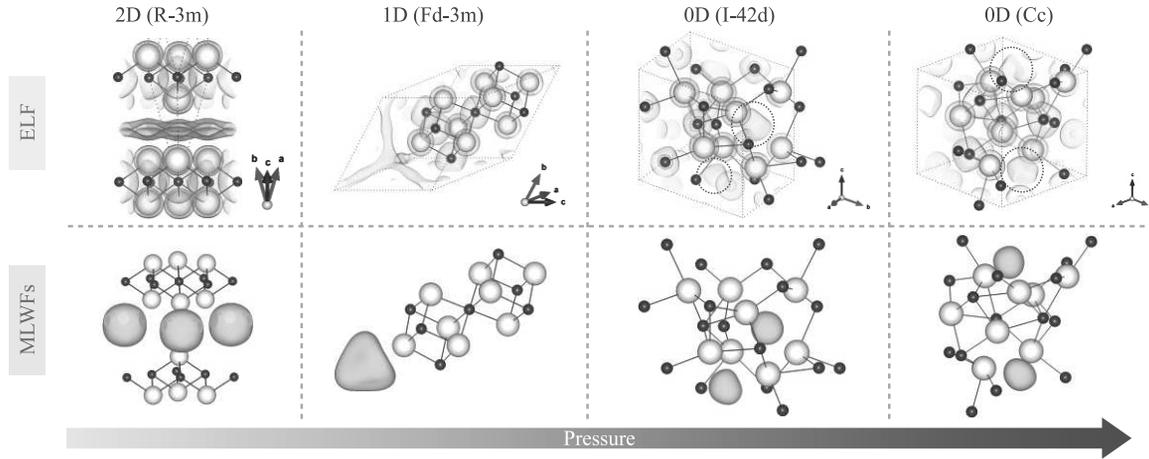


Рис. 2. (Цветной онлайн) Эволюция изоповерхности функции локализации электронов (верхняя панель) и МЛФВ (нижняя панель) Ca_2N под давлением. Коэффициенты изоповерхности ФЛЭ для структур $R\bar{3}m$, $Fd\bar{3}m$, $I\bar{4}2d$, Cc равны 0.55, 0.7, 0.8 и 0.8, соответственно. Белые и зеленые сферы обозначают атомы Ca и N

но превышает значение, наблюдаемое в фазе $R\bar{3}m$. Этот результат означает заметное повышение уровня локализации межузельного состояния в 1D фазе по сравнению с 2D фазой.

Изоповерхность распределения функции локализации электронов (2) указывает на то, что структуры, обладающие симметрией $I\bar{4}2d$ и Cc , имеют нулевую размерность (0D) межузельной области зарядовой плотности. Пространственное расположение максимально локализованных функций Ванье (МЛФВ) в этих структурах имеет сходство с изоповерхностями ФЛЭ. Рассчитанные заряды бассейнов Бейдера для структур $I\bar{4}2d$ и Cc составляют 1.5 (0.374 на формульную единицу) и 1.3 (0.325 на формульную единицу) электронов соответственно.

Таким образом, анализ изменений изоповерхности ФЛЭ, а также формы и пространственного распределения МЛФВ подтверждает, что вызванные давлением структурные переходы в Ca_2N сопровождаются постепенным уменьшением размерности подпространства, занимаемого анионными электронами, состояния которого могут быть эффективно описаны через МЛФВ, центрированные в соответствующих межузельных кристаллической решетки.

3.3. Электрическая проводимость. Затем, для определения транспортных свойств Ca_2N в каждой фазе, мы использовали полученные наборы базисов МЛФВ, соответствующие электривидным состояниям, для решения полуклассических уравнений Больцмана. Графики, иллюстрирующие зависимость электропроводности, деленной на время релаксации, от химического потенциала для $R\bar{3}m$, $Fd\bar{3}m$, $I\bar{4}2d$ и Cc структур при трех постоянных температурах (100, 200 и 300 К) изображены на рис. 3. Как видно из это-

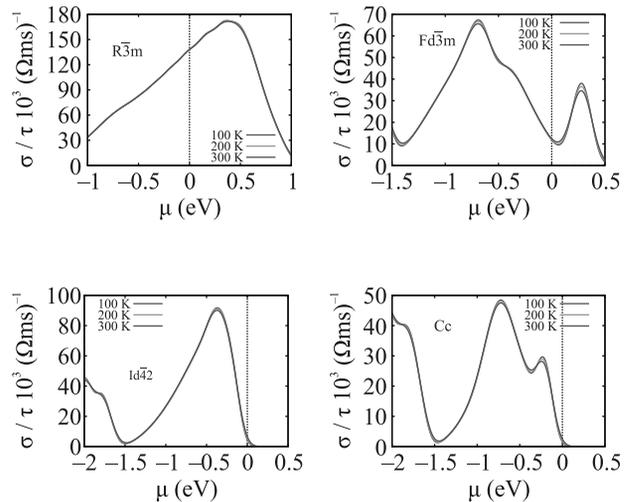


Рис. 3. (Цветной онлайн) Электропроводность относительно времени релаксации в зависимости от химического потенциала при трех постоянных температурах 100, 200 и 300 К для $R\bar{3}m$, $Fd\bar{3}m$, $I\bar{4}2d$, Cc структур

го рисунка, среди рассмотренных структур электропроводность на уровне Ферми является наибольшей для фазы $R\bar{3}m$. Она увеличивается при электронном легировании и имеет пик около химического потенциала примерно 0.4 эВ, связанного с максимальной электронной емкостью электривидного слоя. Как и ожидалось, легирование дырками приводит к уменьшению электропроводности, что объясняется уменьшением концентрации носителей заряда внутри межузельных слоев. Переход от 2D к 1D фазе сопровождается снижением электропроводности в несколько раз. Однако легирование электронами в 1D фазе может привести к примерно трехкратному увеличе-

нию проводимости, поскольку эта фаза демонстрирует пик в области электронного легирования, связанный с наличием дополнительной электронной емкости внутри электридных цепочек 1D-канала. В нульмерных фазах, в силу того что расчеты предсказывают энергетическую щель и межузельные состояния являются полностью заполненными, полученное решение соответствует изолятору. Таким образом, расчет электропроводности на основе межузельной волновой функции указывает на снижение электропроводности, в соответствии с экспериментальными наблюдениями [19].

Уменьшение проводимости с увеличением внешнего давления является нетипичным поведением для металлов, за исключением некоторых щелочных металлов (Li, K и Na) [29–32]. Природа этого необычного явления заключается в особенностях электронных состояний вблизи уровня Ферми. В электридах эти состояния соответствуют электронам, слабо связанным с атомами и находящимся в периодических кристаллических пустотах. Увеличение давления приводит к сжатию пространственной области, в которой они заключены, что вызывает усиление локализации. Это также приводит к увеличению кулоновского отталкивания между избыточными электронами. Особенно ярко этот эффект проявляется при переходе 1D-0D от связной топологии зарядовой плотности к несвязной, что сопровождается резким скачком сопротивления и открытием энергетической щели.

Также из рис. 3 видно, что изменение температуры не оказывает существенного влияния на электропроводность. Это противоречит экспериментальным наблюдениям [19], которые указывают на значительную температурную зависимость сопротивления, особенно в двумерной и нульмерной фазах. Расхождение можно объяснить тем, что использованный в работе метод расчета не учитывает температурные эффекты колебаний атомов в кристаллической решетке.

Электронная проводимость 2D-структуры с симметрией $R\bar{3}m$ демонстрирует высокую направленную анизотропию (рис. 4, верхняя панель). Плоскостная составляющая σ на порядок превышает внеплоскостную проводимость при 300 К. Такое поведение является следствием значительной анизотропии двумерной электридной подсистемы, определяющей дисперсию энергетических состояний электронов непосредственно на уровне Ферми и в его окрестности.

3.4. Коэффициент Зеебека. Коэффициент Зеебека может быть положительным или отрицательным, его знак указывает тип основных носителей заряда: $+S$ соответствует материалам p -типа с положи-

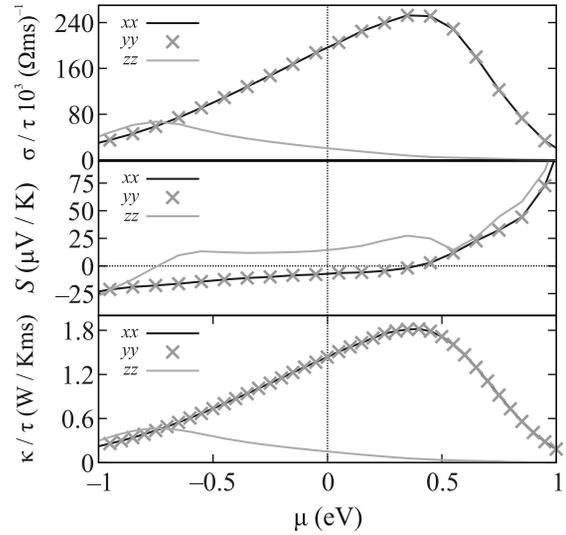


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость электропроводности, деленной на время релаксации, коэффициента Зеебека и электронной теплопроводности от химического потенциала при 300 К для структуры $R\bar{3}m$

тельными носителями заряда (дырки), материалам n -типа соответствует $-S$. [33].

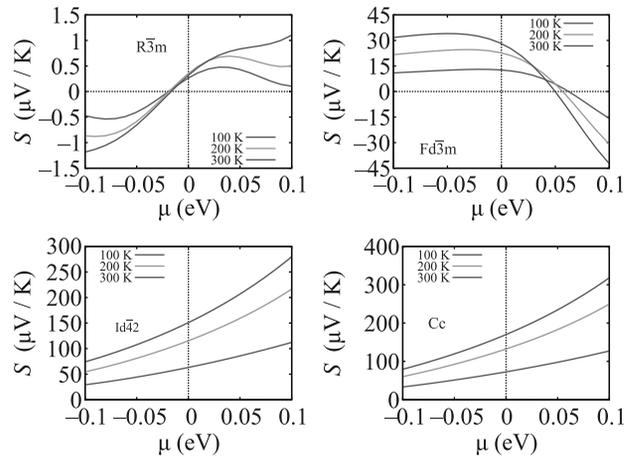


Рис. 5. (Цветной онлайн) Коэффициент Зеебека как функция химического потенциала при трех постоянных температурах 100, 200 и 300 К для $R\bar{3}m$, $Fd\bar{3}m$, $I42d$, Cc структур

Зависимости коэффициента Зеебека от химического потенциала для структур $R\bar{3}m$, $Fd\bar{3}m$, $I42d$ и Cc при трех различных температурах (100, 200 и 300 К) показаны на рис. 5. Из этого рисунка видно, что коэффициент Зеебека при E_F положителен для всех фаз, что указывает на то, что дырки являются основными носителями заряда. При этом наблюдается увеличение коэффициента Зеебека при переходе из металлического состояния в полупроводниковое,

что является характерным поведением для случая уменьшения концентрации носителей заряда [34]. В структуре $\text{Fd}\bar{3}\text{m}$, за счет небольшого электронного легирования, возможно изменение типа основных носителей заряда с дырок на электроны, что также приведет к увеличению электропроводности.

В 2D-фазе Ca_2N , как и в случае электропроводности, коэффициент Зеебека имеет отчетливую анизотропию. Зависимость компонент S_{xx} , S_{yy} , S_{zz} коэффициента Зеебека от химического потенциала для структуры $\text{R}\bar{3}\text{m}$ представлена на рис. 4 (средняя панель). Значения коэффициента Зеебека в плоскости xy отрицательны, что указывает на то, что электроны являются основными носителями заряда внутри электродных слоев. И наоборот, в направлении нормали к этим слоям дырки служат основными носителями заряда.

3.5. Электронная теплопроводность. Лучшими термоэлектриками являются материалы, обладающие низкой теплопроводностью. Теплопроводность обычно состоит из двух компонент: электронной (k_e), в которой электроны и дырки отвечают за перенос тепла, и фоновой (k_l). Следует подчеркнуть, что код BoltzWann позволяет рассчитывать только электронную часть k_e . На рисунке 6 представлена элек-

(рис. 4) почти свободных электронов, которые играют роль среды для переноса тепловой энергии. Для 1D структуры картина аналогична, но теплопроводность для нее заметно ниже. Прямо противоположная зависимость наблюдается для 0D фаз, где теплопроводность ниже и зависимость от температуры не столь выражена. Анизотропия теплопроводности для 2D-структуры возникает по той же причине, что и анизотропия электропроводности. В фазах $\text{I}\bar{4}2\text{d}$ и Cc электронная подсистема не дает вклада в теплопроводность при электронном легировании, поскольку обе фазы имеют энергетическую щель. Поэтому электронная теплопроводность Ca_2N , как и электропроводность, демонстрируют заметную тенденцию к резкому снижению с ростом давления.

4. Заключение. В работе исследовался вклад межузельных электронных состояний в электронную структуру и транспортные свойства Ca_2N в его 2D, 1D и 0D электродных фазах, возникающих при приложении внешнего давления. Путем анализа функции локализации электронов, определены позиции Вайкоффа межузельных квазиатомов. Для каждой фазы применялся подход, заключающийся в построении базиса максимально локализованных функций Ванье, центрированных в точках неядерных аттракторов. Это позволило строго идентифицировать вклады электродных состояний в зонную структуру Ca_2N , что привело к выводу об их ключевой роли в формировании транспортных свойств всех фаз Ca_2N , индуцированных давлением. Мы показали, что увеличение электрического сопротивления под давлением, наблюдаемое экспериментально [19], вызвано ростом локализации межузельных электронных состояний, которое происходит при уменьшении размерности $2\text{D} \rightarrow 1\text{D} \rightarrow 0\text{D}$ области пространства электродной подсистемы. Во всех фазах Ca_2N наблюдается положительный коэффициент Зеебека, что означает, что дырки являются основными носителями заряда. Однако для 2D-фазы обнаружено, что компоненты коэффициента Зеебека в плоскости электродных слоев отрицательны, что указывает на то, что проводимость внутри плоскости обеспечивается электронами, тогда как вдоль нормали к слоям основными носителями являются дырки. Установлено, что уменьшение размерности электродного подпространства также приводит к уменьшению электронной теплопроводности, а переход к 0D-фазе вызывает ее резкое падение. Таким образом, наши результаты показывают, что транспортные свойства электрида Ca_2N определяются электронными состояниями, описываемыми межузельными волновыми функциями.

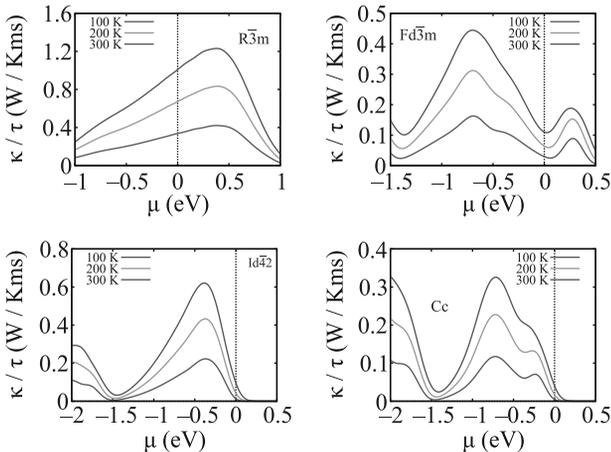


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость электронной теплопроводности, деленной на время релаксации, от химического потенциала при температурах 100, 200 и 300 К для $\text{R}\bar{3}\text{m}$, $\text{Fd}\bar{3}\text{m}$, $\text{I}\bar{4}2\text{d}$ и Cc структур

тронная теплопроводность исследуемых структур в зависимости от химического потенциала для трех постоянных температур (100, 200 и 300 К).

У 2D-структуры теплопроводность заметно выше, чем у остальных, кроме того она имеет сильную температурную зависимость. Такое поведение объясняется наличием в плоскости xy связанной области

Этапы исследования ТФП и МЛФВ выполнены при поддержке Российского научного фонда (проект # 19-72-30043). Результаты решения уравнений переноса Больцмана были получены в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ по теме “Электрон” # 122021000039-4, которое выполнялось в рамках молодежного проекта ИФМ УрО РАН # 22-7.

1. P. P. Edwards, *Science* **333**, 49 (2011).
2. Q. Zhu, T. Frolov, and K. Choudhary, *Matter* **1**, 1293 (2019).
3. D. Y. Novoselov, D. M. Korotin, A. O. Shorikov, A. R. Oganov, V. I. Anisimov, *JETP Lett.* **109**, 387 (2019).
4. D. Y. Novoselov, D. M. Korotin, A. O. Shorikov, A. R. Oganov, and V. I. Anisimov, *J. Phys.: Condens. Matter* **32**, 445501 (2020).
5. D. Y. Novoselov, D. M. Korotin, A. O. Shorikov, V. I. Anisimov, and A. R. Oganov, *J. Phys. Chem. C* **125**, 15724 (2021).
6. D. Y. Novoselov, V. I. Anisimov, and A. R. Oganov, *Phys. Rev. B* **103**, 235126 (2021).
7. H. Hosono and M. Kitano, *Chem. Rev.* **121**, 3121 (2021).
8. Z. Wan, W. Xu, T. Yang, and R. Zhang, *Phys. Rev. B* **106**, L060506 (2022).
9. S. Liu, C. Wang, H. Jeon, Y. Jia, and J. H. Cho, *Phys. Rev. B* **105**, L220401 (2022).
10. Z. Liu, Q. Zhuang, F. Tian, D. Duan, H. Song, Z. Zhang, and T. Cui, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 157002 (2021).
11. A. Fujimori, *Nat. Mater.* **21**, 1217 (2022).
12. M. A. Mazannikova, D. M. Korotin, A. O. Shorikov, V. I. Anisimov, and D. Y. Novoselov, *J. Phys. Chem. C* **127**, 8714 (2023).
13. K. Lee, S. W. Kim, Y. Toda, S. Matsuishi, and H. Hosono, *Nature* **494**, 336 (2013).
14. X. Zhang and G. Yang, *Phys. Chem. Lett.* **11**, 3841 (2020).
15. J. Li, S. Inagi, T. Fuchigami, H. Hosono, and S. Ito, *Electrochem. Commun.* **44**, 45 (2014).
16. T. Kocabas, A. Ozden, I. Demiroglu, D. Çakır, and C. Sevik, *J. Phys. Chem. Lett.* **9**, 4267 (2018).
17. B. Sa, R. Xiong, C. Wen, Y. L. Li, P. Lin, Q. Lin, and Z. Sun, *J. Phys. Chem. C* **124**, 7683 (2020).
18. D. Liu and D. Tomanek, *Nano Lett.* **19**, 1359 (2019).
19. H. Tang, B. Wan, B. Gao, Muraba et al. (Collaboration), *Adv. Sci.* **5**, 1800666 (2018).
20. D. Y. Novoselov, M. A. Mazannikova, D. M. Korotin, A. O. Shorikov, M. A. Korotin, V. I. Anisimov, and A. R. Oganov, *J. Phys. Chem. Lett.* **13**, 7155 (2022).
21. I. Souza, N. Marzari, and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* **65**, 035109 (2001).
22. G. Pizzi, D. Volja, B. Kozinsky, M. Fornari, and N. Marzari, *Comput. Phys. Commun.* **185**, 422 (2014).
23. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett. B* **77**, 3865 (1996).
24. P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini et al. (Collaboration), *Phys. Condens. Matter.* **21**, 395502 (2009).
25. A. A. Mostofi, J. R. Yates, G. Pizzi, Y.-S. Lee, I. Souza, D. Vanderbilt, and N. Marzari, *Comput. Phys. Commun.* **185**, 2309 (2014).
26. R. F. Bader, *Chem. Rev.* **91**, 893 (1991).
27. A. Otero-de-la-Roza, E. R. Johnson, and V. Luaña, *Comp. Phys. Comm.* **185**, 1007 (2014).
28. A. Savin, R. Nesper, S. Wengert, and T. F. Fässler, *Angew Chem. Int. Ed. Engl.* **36**, 1808 (1997).
29. Y. Ma, M. Eremets, A. R. Oganov, Y. Xie, I. Trojan, S. Medvedev, and V. Prakapenka, *Nature* **458**, 182 (2009).
30. T. Matsuoka and K. Shimizu, *Nature* **458**, 186 (2009).
31. T. Yabuuchi, Y. Nakamoto, K. Shimizu, and T. Kikegawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 2391 (2005).
32. N. W. Ashcroft, *Nature* **458**, 158 (2009).
33. S. Kasap, *Thermoelectric effects in metals: thermocouples*, Department of Electrical Engineering University of Saskatchewan, Canada (2001).
34. D. M. Rowe, *CRC handbook of thermoelectrics: macro to nano*, RC, Boca Raton, FL. (2006).

Джозефсоновская динамика при высоких прозрачностях: пределы заданного тока и заданного напряжения

А. В. Галактионов¹⁾, А. Д. Заикин

Отдел теоретической физики имени И. Е. Тамма,
Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 августа 2023 г.

После переработки 26 сентября 2023 г.

Принята к публикации 26 сентября 2023 г.

Мы устанавливаем непосредственное соответствие между вольт-амперными характеристиками джозефсоновского контакта с высокой прозрачностью в режимах заданного тока и заданного напряжения. Мы показываем, что наличие субомической диссипации при подщелевых напряжениях и температурах приводит к линейной зависимости среднего напряжения \bar{V} от заданного тока I , когда последний превосходит критический ток I_c . Это существенно отличается от корневой зависимости $\bar{V} \propto \sqrt{I - I_c}$ в омическом пределе. Наши предсказания сравниваются с недавними экспериментальными данными.

DOI: 10.31857/S1234567823210073, EDN: psjpui

1. Введение. Классическая динамика туннельных джозефсоновских контактов хорошо установлена и уже стала учебным материалом [1–3]. Наиболее простое и чаще всего используемое описание основано на так называемой резистивно-шунтированной модели (RSJ), которая применима либо при температурах, близких к критической, либо в случае, когда контакт шунтирован проводником в нормальном состоянии. Если через туннельный контакт протекает постоянный внешний ток I , немного превышающий критический I_c , модель RSJ приводит к универсальной зависимости среднего напряжения на контакте \bar{V} в виде $\bar{V} \propto \sqrt{I - I_c}$. В отсутствие шунта в нормальном состоянии и при низких температурах $T \rightarrow 0$ вольт-амперные характеристики вблизи I_c становятся сильно нелинейными и приводят к так называемому пику Риделя, см., например, [2] для дальнейшего обсуждения. Такое отклонение от результатов, выведенных в модели RSJ, ни в коем случае не является удивительным, поскольку при низких T через сверхпроводящий туннельный контакт не может протекать диссипативный ток при подщелевых напряжениях и энергиях.

Положение изменяется при выходе за пределы туннельного приближения, когда перенос заряда через сверхпроводящие контакты определяется механизмом многократного андреевского отражения (MAR), см. [4], и в силу вступает внутренне присущая диссипация при подщелевых напряжениях и температурах. В случае полностью прозрачных

сверхпроводящих слабых связей с заданным напряжением можно разработать полную микроскопическую теорию [5, 6] и вывести выражение как для вольт-амперных характеристик, так и для зависимости ток-фаза при малых напряжениях. Однако выход за пределы заданного напряжения оказывается более сложным. При шунтировании прозрачной слабой связи дополнительным омическим резистором режим заданного тока снова приводит [7] к корневой зависимости $\bar{V} \propto \sqrt{I - I_c}$ при малых напряжениях подобно результатам, выведенным в рамках RSJ-модели. С другой стороны, указания на линейную зависимость

$$\bar{V} \propto I - I_c \quad (1)$$

при подщелевых напряжениях были получены в ряде недавних экспериментов [8–10] с различными типами прозрачных сверхпроводящих контактов.

В данной статье мы показываем, что внутренне присущая диссипация в прозрачных сверхпроводящих слабых связях при подщелевых энергиях характеризуется лидирующей *субомической* компонентой, которая, по существу, определяет форму вольт-амперной характеристики в режиме заданного тока при достаточно низких температурах. В частности, используя данное свойство в пределе малых напряжений, мы выведем зависимость (1), которая, вероятно, объясняет недавние экспериментальные наблюдения [8–10].

2. Вольт-амперная характеристика и динамика тока при постоянных напряжениях. Впоследствии мы будем рассматривать баллистическую сверхпроводящую слабую связь (например, SNS-

¹⁾e-mail: galakt@lpi.ru

контакт) с \mathcal{N} полностью прозрачными каналами проводимости и сопротивлением в нормальном состоянии $1/R_N = \mathcal{N}e^2/\pi$. Толщина d нормального (N) слоя, соединяющего два сверхпроводящих (S) электрода, полагается много меньшей сверхпроводящей длины когерентности $d \ll \xi_0 \sim v_F/\Delta$. Здесь v_F – скорость Ферми, и Δ обозначает абсолютную величину параметра порядка в сверхпроводящих электродах. Заряд электрона обозначен как $-e$, и постоянные Планка и Больцмана полагаются равными единице ($\hbar = k_B = 1$).

В случае, когда к контакту приложено постоянное во времени напряжение V , ток $I(t)$ через контакт был выведен в микроскопической теории [5, 6]. Он имеет вид

$$I(t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} I_l e^{-2ileVt}, \quad I_{-l} = I_l^*, \quad (2)$$

где гармоники тока могут быть выражены в форме [11]

$$I_0 = \frac{V}{R_N} + \frac{1}{eR_N} \sum_{n=1}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon \left(\tanh \frac{\epsilon + eV}{2T} - \tanh \frac{\epsilon}{2T} \right) \times \\ \times \prod_{1 \leq m \leq n} |a^R(\epsilon + meV)|^2 \quad (3)$$

и

$$I_{l>0} = -\frac{1}{eR_N} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon \tanh \frac{\epsilon}{2T} \prod_{1 \leq k \leq 2l} a^R(\epsilon + keV) + \\ + \frac{1}{eR_N} \sum_{n=1}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon \left(\tanh \frac{\epsilon + eV}{2T} - \tanh \frac{\epsilon}{2T} \right) \times \\ \times \prod_{1 \leq m \leq n} |a^R(\epsilon + meV)|^2 \prod_{n+1 \leq k \leq n+2l} a^R(\epsilon + keV). \quad (4)$$

Здесь комбинация

$$a^R(\epsilon) = \frac{f^R(\epsilon)}{1 + g^R(\epsilon)} \quad (5)$$

определяет амплитуду андреевского отражения. Имея в виду, что запаздывающие функции Грина–Эйленберга записываются как

$$g^R(\epsilon) = \frac{\epsilon + i\theta}{\xi^R(\epsilon)}, \quad f^R(\epsilon) = \frac{\Delta}{\xi^R(\epsilon)}, \quad (6)$$

где $\xi^R(\epsilon) = \sqrt{(\epsilon + i\theta)^2 - \Delta^2}$, а θ феноменологически контролирует силу неупругой релаксации, из уравнения (5) в пределе $\theta \rightarrow 0$ мы получаем

$$a^R(\epsilon) = \frac{\epsilon}{\Delta} - \frac{i\sqrt{\Delta^2 - \epsilon^2}}{\Delta} = \exp\left(-i \arccos \frac{\epsilon}{\Delta}\right) \quad (7)$$

при $|\epsilon| < \Delta$ и

$$a^R(\epsilon) = \frac{\text{sgn} \epsilon}{\Delta} \left(|\epsilon| - \sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2} \right) \quad (8)$$

при $|\epsilon| > \Delta$.

Далее мы будем интересоваться лишь случаем низких температур $T \ll \Delta$ и малых напряжений $eV \ll \Delta$. Тогда, отбрасывая сублидирующие члены $\sim V/R_N$ и меньшие их, можно переписать уравнение (3) как

$$I_0 \simeq \frac{2V}{R_N} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left(\sum_{m=1}^n \ln |a^R(meV)|^2\right) \quad (9)$$

и заменить суммирование по m в показателе экспоненты интегрированием.

Оценивая интеграл, мы приходим к соотношению

$$\sum_{m=1}^n \ln |a^R(meV)|^2 \simeq 2N\theta(z-1) \left[\sqrt{z^2-1} + z \log\left(z - \sqrt{z^2-1}\right) \right], \quad (10)$$

где $\theta(x)$ – функция Хевисайда, $N = \Delta/(eV)$ и $z = n/N$.

Используя выражения выше и заметив, что характерные значения n , которые вносят вклад в сумму в выражении (3) имеют порядок $n - N \sim N^{1/3}$, после простых преобразований мы приходим к следующему выражению:

$$\sum_{n=1}^{\infty} \prod_{1 \leq m \leq n} |a^R(meV)|^2 \simeq N + N^{1/3} \frac{\Gamma(5/3)3^{2/3}}{2^{5/3}}, \quad (11)$$

где $\Gamma(x)$ – гамма-функция Эйлера. Далее мы получаем

$$\bar{I} = I_0 \simeq \frac{2\Delta}{eR_N} \text{sgn} V \left[1 + 0.59 \left(\frac{e|V|}{\Delta} \right)^{2/3} \right]. \quad (12)$$

Это уравнение определяет вольт-амперную характеристику полностью прозрачных сверхпроводящих слабых связей в пределе малых заданных напряжений $eV \ll \Delta$ и низких температур $T \ll \Delta$. Любопытно отметить, что хотя эта вольт-амперная характеристика детально изучалась в многочисленных предыдущих публикациях (см., например, [5–7, 11, 12]) – лидирующий член, зависящий от напряжения $\propto |V|^{2/3} \text{sgn} V$ (12) при малых V , не был выписан ранее.

Теперь мы обратимся к осциллирующей части тока и оценим Фурье-компоненты (4) при малых

$eV \ll \Delta$. Нетрудно проверить, что в лидирующем приближении вкладом первого слагаемого $\sim V/R_N$ в (4) можно пренебречь, в то время как второе слагаемое можно переписать в виде

$$I_{l>0} \simeq \frac{2V}{R_N} \sum_{n=1}^{\infty} \prod_{1 \leq m \leq n} |a^R(meV)|^2 \prod_{n+1 \leq k \leq n+2l} a^R(keV). \quad (13)$$

Действуя подобно тому выводу, который использовался выше, мы получаем

$$I_{l>0} \simeq \frac{2V}{R_N} \left(\frac{N}{1-4l^2} + 0.59N^{1/3} + O(N^0) \right). \quad (14)$$

В действительности, последний член $O(N^0)$ в (14) превосходит принятую точность вычислений, поэтому мы будем им пренебрегать. Заметим, что поступая так для достаточно больших l , необходимо проверить, что отброшенные члены не растут с l , иначе это приближение перестанет работать для достаточно больших l . В дополнение, нетрудно проверить, что используемая процедура получения вклада $\sim N^{1/3}$ в (14) справедлива только для $l \ll N$. Имея это в виду и собирая все существенные вклады, мы приходим к выражению для тока $I(t)$

$$I(t) = I_c \operatorname{sgn} V \left(|\sin \varphi(t)| + 1.18 \left(\frac{|\dot{\varphi}(t)|}{\Delta} \right)^{2/3} Y(\varphi(t)) \right), \quad (15)$$

где $I_c = \pi\Delta/(eR_N)$ – критической ток слабой связи [13] при $T \rightarrow 0$, $\varphi(t) = eVt$ – половина фазы Джозефсона и

$$Y(\varphi) = \sum_{|l| < l_{\max}} e^{-2il\varphi(t)}, \quad l_{\max} \lesssim N. \quad (16)$$

Разумеется, усредняя (15) по времени, мы вновь приходим к выражению (12).

3. Режим заданного тока. Теперь мы рассмотрим режим заданного тока, т.е. случай постоянного во времени тока I , протекающего через сверхпроводящую слабую связь. Очевидно, в этом случае напряжение V не может считаться независимым от времени, и вышеприведенные рассуждения, приводящие, например, к вольт-амперной характеристике (12), перестают быть верными. Для дальнейшего продвижения мы (а) предположим, что напряжение остается малым при наших вычислениях, т.е. $V(t) \ll \Delta/e$, и (б) применим своего рода адиабатическое приближение для $V(t) = \dot{\varphi}(t)/e$. Эти два приближения (которые будут проверены к концу вычислений) позволяют использовать зависимость ток-фаза (15), первоначально выведенную для постоянного во времени V .

Рассматриваемая задача сводится к решению следующего уравнения на фазовую переменную $\varphi(t)$:

$$I = I_c |\sin \varphi| + \frac{1.18}{\pi} I_c \left(\frac{\dot{\varphi}}{\Delta} \right)^{2/3} Y(\varphi). \quad (17)$$

Вводя новую безразмерную переменную

$$s = \left(\frac{\pi}{1.18} \right)^{3/2} \Delta t \quad (18)$$

и полагая $Y(\varphi) = 1$ (т.е. пренебрегая всеми осциллирующими членами в выражении (16)), мы приходим к уравнению

$$\frac{d\varphi}{ds} = (a - |\sin \varphi|)^{3/2}, \quad a = I/I_c > 1 \quad (19)$$

с очевидным решением

$$s = F(\varphi, a) = \int_0^{\varphi} \frac{dx}{(a - |\sin x|)^{3/2}}. \quad (20)$$

Для $0 \leq \varphi \leq \pi$ получается

$$F(\varphi, a) = \frac{2 \cos \varphi}{(1-a^2)\sqrt{a-\sin \varphi}} + \frac{2}{\sqrt{a}(a^2-1)} + \frac{2E\left(\frac{\pi}{4}, -\frac{2}{a-1}\right)}{\sqrt{a-1}(a+1)} - \frac{2E\left(\frac{1}{4}(\pi-2\varphi), -\frac{2}{a-1}\right)}{\sqrt{a-1}(a+1)}, \quad (21)$$

где $E(\varphi, m) = \int_0^{\varphi} dx \sqrt{1-m \sin^2 x}$ – неполный эллиптический интеграл. Для больших φ в интервале $p\pi < \varphi < (p+1)\pi$ с целым p мы приходим к

$$F(\varphi, a) = pF(\pi, a) + F(\varphi - p\pi, a). \quad (22)$$

Зависимости фазовой переменной φ и напряжения V от s , следующие из приведенного решения, представлены на рис. 1. Мы видим, что при $a-1 \ll 1$ напряжение остается малым большую часть времени и резко возрастает в коротких временных интервалах, когда фазовая переменная приближается к значениям $\varphi = \pi m$ (с $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$), при которых компонента тока $I_c |\sin \varphi|$ стремится к нулю.

Усредняя вышеприведенные уравнения по времени, мы приходим к вольт-амперной характеристике в виде

$$\bar{V} = \left(\frac{\pi}{1.18} \right)^{3/2} \frac{\pi\Delta}{e} \left(\frac{4}{\sqrt{a}(a^2-1)} + \frac{4E\left(\frac{\pi}{4}, -\frac{2}{a-1}\right)}{\sqrt{a-1}(a+1)} \right)^{-1}. \quad (23)$$

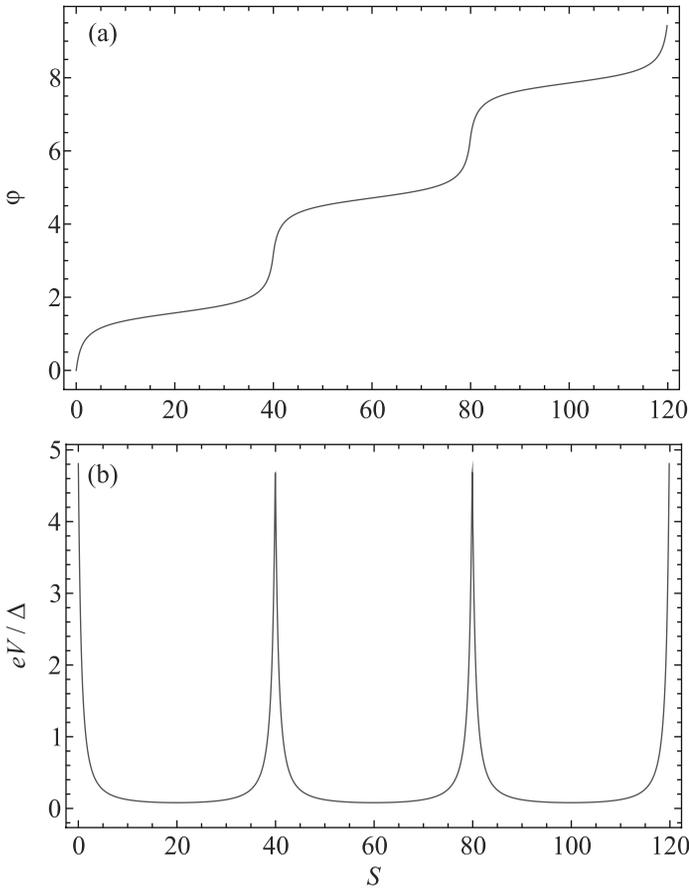


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость фазовой переменной φ (а) и напряжения V (б) от времени, следующие из уравнений (20)–(22) при $a = 1.07$

В частности, когда величина тока I лишь немного превосходит I_c , т.е. при $a - 1 \ll 1$, это выражение сводится к простому результату

$$\bar{V} \simeq \frac{\pi}{2\sqrt{2}} \left(\frac{\pi}{1.18} \right)^{3/2} \frac{\Delta}{e} (a - 1) \simeq 1.54 R_N (I - I_c). \quad (24)$$

С помощью полученных результатов мы можем проверить правомерность предположений (а) и (б), принятых в начале нашего вычисления. Разумеется, среднее напряжение (24) подчиняется условию (а) $\bar{V} \ll \Delta/e$ в интересующем нас пределе $I - I_c \ll I_c$. То же касается и мгновенных значений $V(t)$ за исключением узких интервалов вблизи его максимальных значений, где приближение (а) достигает границы своей применимости, см. рис. 1б. При пиковых значениях напряжения (т.е. для $eV > 2\Delta$) диссипация должна перейти от субомической к преимущественно омической, что, тем не менее, не может повлиять на наши выводы.

Что касается условия адиабатичности (б), оно выполняется при условии, что напряжение $V(t)$ не из-

меняется существенно за время δt , которое требуется квазичастице, чтобы завершить цикл MAR, состоящий из $\sim 2N = 2\Delta/eV$ проходов через контакт. Поскольку каждое из таких проходов происходит в течение интервала времени $\sim 1/\Delta$, мы можем оценить $\delta t \sim N/\Delta \sim 1/eV$. Таким образом, предположение (б) оправдано при условии, что напряжение $V(t)$ изменяется медленно на временном масштабе $\sim 1/eV$. Используя вышеприведенные результаты, нетрудно проверить, что данное условие выполняется, если $eV(t)$ не превосходит Δ (см. рис. 1б), т.е. при $I - I_c \ll I_c$. Другими словами, область выполнения обоих наших предположений (а) и (б) по существу совпадает для выведенного здесь решения.

Теперь осталось оценить осциллирующие члены в выражении для $Y(\varphi)$ (16), которыми мы пренебрегли при выводе уравнения (19). Применяя как аналитические, так и численные расчеты, нетрудно проверить, что при $a - 1 \ll 1$ и достаточно большом, но конечном l_{\max} , вклад в ток от отброшенных членов оказывается малым (это свидетельствует, что в уравнении (17) мы действительно можем положить $Y(\varphi) \simeq 1$), за исключением узких окрестностей значений фазы $\varphi = \pi m$. Заметим, однако, что $eV(t)$ принимает значения $\sim \Delta$ в окрестностях этих фаз (см. рис. 1), вследствие чего $N = \Delta/eV \sim 1$ для таких значений φ . Вспоминая, что члены $\sim N^{1/3}$ в уравнении (14) могут быть получены только при $l \ll N$, мы заключаем, что всеми членами в выражении (16), за исключением $l = 0$, можно пренебречь, когда $N \sim 1$ и, следовательно, $Y(\varphi) = 1$ также для $\varphi \approx \pi m$. Это замечание завершает наш анализ.

4. Обсуждение. Вольт-амперные характеристики (12) и (24), выведенные соответственно в режимах заданного напряжения и заданного тока, изображены и сопоставлены на рис. 2.

Для того, чтобы сравнить наши результаты с недавними экспериментальными наблюдениями [8–10], необходимо иметь в виду, что использованная нами модель короткой баллистической слабой связи не в полной мере соответствует образцам, которые исследовались в данных экспериментах. Например, авторы [8] сообщают, что их джозефсоновские контакты на основе HgTe “не соответствуют ни короткому, ни баллистическому пределу”, поэтому они находятся в промежуточном режиме, описываемом эффективным коэффициентом прохождения $\mathcal{T} < 1$. Авторы [9], в свою очередь, оценивают средний коэффициент прохождения их джозефсоновских контактов, состоящих из алюминиевых электродов и квантовых ям InAs, как $\mathcal{T} \simeq 0.85$, в то время как наши расчеты исходили из $\mathcal{T} = 1$. Из чего непосред-

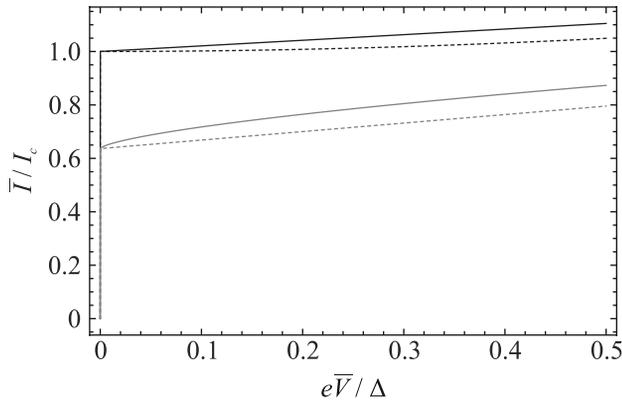


Рис. 2. (Цветной онлайн) Вольт-амперные характеристики короткого баллистического контакта в режимах заданного напряжения и заданного тока, определяемые соответственно выражениями (12) (сплошная оранжевая линия) и (24) (сплошная синяя линия). Для сравнения штриховыми линиями и теми же цветами проведены вольт-амперные характеристики в случае омической диссипации

ственно следует, что настоящая модель применима для описания экспериментальных результатов лишь при напряжениях, удовлетворяющих условию [14]

$$eV \gg (1 - \mathcal{T})\Delta, \quad (25)$$

при котором мала пертурбативная по $1 - \mathcal{T} \ll 1$ поправка к вольт-амперной характеристике полностью прозрачных контактов. Для объемной сверхпроводящей щели $\Delta \simeq 220$ мкэВ в экспериментах [9], мы приходим к оценке $(1 - \mathcal{T})\Delta/e \sim 0.033$ мВ и замечаем, что в согласии с выражением (25), линейная часть вольт-амперной характеристики начинается при напряжениях, превышающих это значение, см. вставку на рис. 1d работы [9].

Сходным образом, в экспериментах [8] с объемной щелью $\Delta \simeq 350$ мкэВ, линейный участок в зависимости среднего напряжения \bar{V} от заданного тока I наблюдался при напряжениях, превышающих ~ 0.1 мВ, см. вставку на рис. 4 этой работы. К сожалению, авторами [8] не была приведена надежная оценка коэффициента прохождения \mathcal{T} . Если для определенности мы будем исходить из довольно консервативной оценки $\mathcal{T} \gtrsim 0.9$, мы получим $(1 - \mathcal{T})\Delta/e \lesssim 0.035$ мВ. Эта оценка снова согласуется с экспериментальными данными [8], в частности с учетом дополнительных числовых префакторов [14].

Заметим, что при меньших напряжениях, т.е. вне области применимости нашей теории (25), в обоих экспериментах [8, 9] наблюдался гистерезис вольт-амперных характеристик. Такое поведение довольно характерно для сверхпроводящих слабых связей

и может быть объяснено целым рядом причин, включая, например, эффекты нагрева или влияние емкостей. Подобный гистерезис не получается в нашей модели, что никоим образом не удивительно и не свидетельствует о противоречии с экспериментальными данными [8, 9].

Наблюдаемый линейный участок вольт-амперной характеристики может быть описан соотношением

$$d\bar{V}/dI = \gamma R_N, \quad (26)$$

где γ – числовой множитель, почти равный единице и примерно половине в экспериментах [8] и [9] соответственно. Другое указание на зависимость (26) было получено в экспериментах на джозефсоновских контактах с квантовыми ямами Al/InAs [10]. Как следует из рис. S2b этой работы, дифференциальное сопротивление осциллирует около постоянного значения $\sim R_N$, когда ток превышает критический (в статье [10] отмечено, что “многочисленные пики и провалы ... связаны с многократными андреевскими отражениями”, что служит указанием на наличие нормального отражения, т.е. $\mathcal{T} < 1$, в этих экспериментах, см. также рис. 3 статьи [14]). В данном случае можно оценить, что $\gamma \approx 0.6$.

Наблюдаемое соотношение (26) согласуется с нашим результатом (24) с точностью до численного множителя порядка единицы. Это согласие уже может считаться удовлетворительным (в особенности, если принять во внимание отличие нашей простой модели от образцов [8–10]), и оно может быть улучшено далее, если учесть два следующих обстоятельства. Во-первых, вспоминая выражение для нормальной проводимости контакта $1/R_N = \mathcal{N}\mathcal{T}e^2/\pi$, становится понятно, что численный множитель в выражении (24) нужно сравнивать с комбинацией $\gamma/\mathcal{T} > \gamma$, а не с γ . Во-вторых, как уже отмечалось, наш анализ несколько недооценивает диссипативные токи в непосредственной окрестности пиков напряжения. Соответственно, фактические пики должны быть несколько ниже изображенных на рис. 1b, и численный множитель в выражении (24) нужно скорректировать умножением на некоторое число < 1 . Дальнейшие эксперименты могут внести существенный вклад в проверку наших предсказаний.

В заключение, наши результаты показывают, что вольт-амперные характеристики сверхпроводящих слабых связей в режиме заданного тока и при достаточно низких напряжениях могут существенно зависеть от формы лидирующего диссипативного вклада в ток. Например, заменяя последнее слагае-

мое в правой части выражений (12) и (17) на $\propto V^q$, и повторяя те же шаги, мы приходим к

$$\bar{V} \propto (I - I_c)^{\frac{1}{q} - \frac{1}{2}}. \quad (27)$$

Это соотношение объединяет как наш результат (24), так и корневую зависимость [7], полученную в омическом пределе.

1. M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, 2nd ed., McGraw-Hill, N.Y. (1996).
2. A. Barone and G. Paterno, *Physics and Applications of the Josephson Effect*, John Wiley & Sons, N.Y. (1982).
3. K. K. Likharev, *Dynamics of Josephson Junctions and Circuits*, Gordon and Breach, N.Y. (1986).
4. M. Octavio, M. Tinkham, G. E. Blonder, and T. M. Klapwijk, *Phys. Rev. B* **27**, 6739 (1983).
5. U. Günsenheimer and A. D. Zaikin, *Phys. Rev. B* **50**, 6317 (1994).
6. D. Averin and A. Bardas, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1831 (1995).
7. D. Averin and A. Bardas, *Phys. Rev. B* **53**, R1705 (1996).
8. E. Bocquillon, J. Wiedenmann, R. S. Deacon, T. M. Klapwijk, H. Buhmann, and L. W. Molenkamp, *Microwave studies of the fractional Josephson effect in 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, Springer, Cham, Switzerland (2018), v. 190, p. 115.
9. M. C. Dartailh, J. J. Cuzzo, B. H. Elfeky, W. Mayer, J. Yuan, K. S. Wickramasinghe, E. Rossi, and J. Shabani, *Nat. Comm.* **12**, 78 (2021).
10. P. Zhang, S. Mudi, M. Pendharkar, J. S. Lee, C. P. Dempsey, A. P. McFadden, S. D. Harrington, J. T. Dong, H. Wu, A.-H. Chen, M. Hocevar, C. J. Palmström, and S. M. Frolov, arXiv:2211.08710v1.
11. A. V. Galaktionov and A. D. Zaikin, *Phys. Rev. B* **104**, 054521 (2021).
12. J. C. Cuevas, A. Martín-Rodero, and A. Levy Yeyati, *Phys. Rev. B* **54**, 7366 (1996).
13. I. O. Kulik and A. N. Omel'yanchuk, *Fizika Nizkikh Temperatur* **3**, 945 (1977) [*Sov. J. Low Temp. Phys.* **3**, 459 (1977)].
14. A. V. Galaktionov and A. D. Zaikin, *Phys. Rev. B* **107**, 214507 (2023).

Особенности брэгговских резонансов в магнном кристалле с двумя периодами

М. А. Морозова¹⁾, О. В. Матвеев⁺, А. С. Пташенко⁺, А. В. Садовников⁺, С. А. Никитов^{+*}

⁺Саратовский национальный исследовательский государственный университет имени Н. Г. Чернышевского, 410012 Саратов, Россия

^{*}Институт радиотехники и электроники имени В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

Поступила в редакцию 3 августа 2023 г.

После переработки 2 октября 2023 г.

Принята к публикации 4 октября 2023 г.

В работе выявлены особенности брэгговских резонансов в магнном кристалле с металлической решеткой на поверхности, содержащей два периода. С использованием сшивания магнитных пронцаемостей на границах металлического слоя и ферромагнитной пленки, а также метода связанных волн построена теоретическая модель, описывающая спектральные характеристики магнитостатических волн. Методом конечных элементов рассчитано распределение амплитуды намагниченности на частотах каждого из брэгговских резонансов. Показано, что в такой структуре формируются три брэгговских резонанса в первой зоне Бриллюэна для решетки с меньшим периодом и один резонанс в первой зоне Бриллюэна для решетки с большим периодом. Резонансные частоты определяются соотношением большого и малого периодов.

DOI: 10.31857/S1234567823210085, EDN: tbount

1. Введение. В настоящее время ферромагнитные структуры рассматривают как одни из базовых элементов для разработки чисто спиновых информационных и коммуникационных технологий, в которых движущиеся заряды заменены спиновыми волнами или магнонами [1, 2]. Одними из основных структур, предлагаемых для создания магнной компонентной базы, являются магнные кристаллы (МК) [3, 4]. МК представляют собой периодические структуры, сформированные на основе магнитных материалов. В МК возникают условия для формирования брэгговских резонансов для волновых чисел $k_B = \pi/L$ (L – период структуры), удовлетворяющих условию Брэгга. На частотах брэгговских резонансов формируются запрещенные зоны – полосы непропускания в спектре спиновых волн. Формирование брэгговских резонансов делает МК функционально более гибкими, и они обладают большими возможностями для управления характеристиками спиновых волн, по сравнению с непериодическими магнитными структурами.

В этом случае важной является задача управления характеристиками брэгговских резонансов в спектре распространяющихся волн (частотой, плотностью, добротностью и др.). Для решения этой задачи в последние годы были проведены теоретиче-

ские и экспериментальные исследования 1D и 2D МК, в которых периодичность создавалась различными способами: путем создания модуляции геометрических параметров ферромагнитной пленки (толщины, ширины, создания дырок), создания периодических граничных условий, использования слоев из различных материалов, создания переменного магнитного поля и т.д. [1–11]. Одним из способов расширения возможностей управления запрещенными зонами в магнных кристаллах, является создание квазипериодических МК [10, 11], а также МК с несколькими периодами [5–9].

Резонансные свойства спиновых волн в МК с несколькими периодами ранее исследовались как с помощью радиофизических экспериментальных методик [6, 11], так и оптическими методами Мандельштам–Бриллюэновской спектроскопии [7–9]. Результаты экспериментальных исследований сравнивались с микромагнитным моделированием и моделированием методом конечных элементов [7–9]. Построение теоретической волновой модели позволит выявить физические механизмы формирования резонансов и выявить общие закономерности по управлению запрещенными зонами в таких структурах.

Целью настоящей работы является исследование особенностей брэгговских резонансов поверхностных магнитостатических волн в магнном кристалле с

¹⁾e-mail: mamorozovama@yandex.ru

металлической решеткой на поверхности, содержащей два периода. С использованием метода шивания магнитных проницаемостей на границах металлического слоя и ферромагнитной пленки, а также метода связанных волн построена волновая модель для описания спектральных характеристик волн в исследуемой структуре. Установлен механизм формирования и возможность управления брэгговскими резонансами в зависимости от соотношения периодов. Методом конечных элементов рассчитаны дисперсионные характеристики спиновых волн и распределение амплитуды намагниченности на частотах каждого из брэгговских резонансов.

2. Модель и основные соотношения. Схема МК с двумя периодами (МК с периодической системой дефектов) приведена на рис. 1. Структура представляет собой ферромагнитную пленку (ФП) толщиной d , на поверхности которой нанесены металлические полоски толщиной d_1 (больше толщины скин-слоя), шириной m с периодом l (расстояние между полосками $c = l - m$) на длине L_1 . Участки L_1 располагаются на расстоянии ΔL друг от друга. Длина суперрешетки в направлении распространения волны L_g , где $L_g = NL - \Delta L$ ($L = \Delta L + L_1$, N – порядок решетки, L/l – целое число). Постоянное магнитное поле \vec{H}_0 направлено вдоль оси x (структура бесконечна в этом направлении). Вдоль оси y распространяются поверхностные магнитостатические волны (ПМСВ).

3. Метод шивания магнитных проницаемостей. Для построения теоретической модели, описывающей особенности распространения спиновых волн в МК с двумя периодами, использовался подход, основанный на шивании поверхностных магнитных проницаемостей на границах слоев μ_S . Введем поверхностную магнитную проницаемость в виде [12]²⁾:

$$\mu_s = -j \frac{b_z}{h_y}, \quad (1)$$

где b_z – нормальная составляющая переменной магнитной индукции, h_y – тангенциальная составляющая переменного магнитного поля. Эти компоненты сохраняют на границе сред конечное значение и непрерывны.

Если ФП при $z = d$ ограничена идеальным металлом, то имеем $b_z = 0$ и $\mu_S^1 = 0$, а если диэлектриком, то $\mu_S^1 = 1$. При $z = 0$ структура снизу ограничена полубесконечным слоем диэлектрика с $\mu_S^0 = 1$.

²⁾Использование величины μ_s позволяет упростить решение задачи для многослойных электродинамических структур, так как величина μ_s должна быть непрерывна на границах слоев.

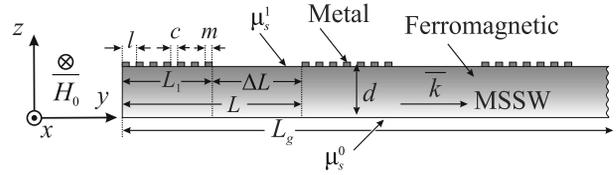


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема МК с двумя периодами

Верхняя поверхность структуры на рис. 1 имеет два периода l и L . В этом случае μ_S^1 на верхней поверхности структуры можно разложить в ряд Фурье:

$$\mu_S^1 = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \mu_{S_n}^1 e^{j \frac{2\pi n}{L} y} \left(\text{Re} \sum_{m=1}^{\infty} \mu_{S_m}^1 e^{j \frac{2\pi m}{L} y} \right). \quad (2)$$

Ограничиваясь в (2) членами с $n = 0, \pm 1$ и $m = 1$ для огибающей, получим следующее выражение³⁾:

$$\begin{aligned} \mu_S^1 = & \frac{c}{l} + \frac{2}{\pi} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \cos\left(\frac{2\pi y}{l}\right) + \\ & + \frac{2}{\pi} \sin\left(\frac{\pi \Delta L}{L}\right) \cos\left(\frac{2\pi y}{L}\right) + \\ & + \frac{4}{\pi^2} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \sin\left(\frac{\pi \Delta L}{L}\right) \times \\ & \times \cos\left(\frac{2\pi y}{l}\right) \cos\left(\frac{2\pi y}{L}\right). \end{aligned} \quad (3)$$

Соотношение (3) можно представить в виде:

$$\begin{aligned} \mu_S^1 = & \frac{c}{l} + \frac{2}{\pi} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \cos\left(\frac{2\pi y}{l}\right) + \\ & + \frac{2}{\pi} \sin\left(\frac{\pi \Delta L}{L}\right) \cos\left(\frac{2\pi y}{L}\right) + \\ & + \frac{4}{\pi^2} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \sin\left(\frac{\pi \Delta L}{L}\right) \times \\ & \times \left[\cos\left(\frac{2\pi y}{\lambda_+}\right) + \cos\left(\frac{2\pi y}{\lambda_-}\right) \right], \end{aligned} \quad (4)$$

где

$$\lambda_+ = l \left(1 + \frac{l}{L} \right), \quad \lambda_- = l \left(1 - \frac{l}{L} \right). \quad (5)$$

4. Метод связанных волн. Для определения поверхностной проницаемости со стороны ферромагнитной пленки при $z = d(\mu_S^1)$ и $z = 0(\mu_S^0)$ при распространении в структуре ПМСВ воспользуемся методом связанных волн и магнитостатический потенциал представим в виде [13, 14]:

$$\psi(y, z) = \sum_{p=-\infty}^{\infty} (A_p e^{k_z z} + B_p e^{-k_z z}) e^{j(\omega t - k_y y)}, \quad (6)$$

³⁾При $p = l$ и $c = 0$, $\Delta L = 0$ имеем $\mu_S^1 = 0$, при $p = 0$ и $c = l$ имеем $\mu_S^1 = 1$.

где ω – частота, A_p и B_p – медленно меняющиеся комплексные амплитуды огибающих прямых и отраженных волн. Рассматривая только волны вдоль оси y и полагая $k_x = 0$, исходя из уравнения Уокера $k_y = k_z = k_p$ [15], а $k_p = k_0 + \frac{2\pi}{L_p}p, p = 0, \pm 1, \dots$

На основе формулы (6) определим компоненты переменного магнитного поля \vec{h} и значение переменной магнитной индукции \vec{b} . Выражения для компонент h_y и h_z с учетом (6) будут иметь вид:

$$h_y = \frac{\partial \psi}{\partial y}, h_z = \frac{\partial \psi}{\partial z}. \quad (7)$$

Вектор переменной магнитной индукции [16]:

$$\vec{b} = \overline{\vec{\mu}} \vec{h}, \quad (8)$$

где

$$\overline{\vec{\mu}} = \begin{vmatrix} -j\mu_a & \mu & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ \mu & j\mu_a & 0 \end{vmatrix}, \quad (9)$$

$\mu = \frac{\omega_H(\omega_H + \omega_M) - \omega^2}{\omega_H^2 - \omega^2}, \mu_a = \frac{\omega_M \omega}{\omega_H^2 - \omega^2}, \omega_H = \gamma H_0, \omega_M = 4\pi\gamma M_0, M_0$ – намагниченность насыщения, γ – гиромагнитное отношение.

В этом случае поверхностная магнитная проницаемость с учетом формулы (1) и соотношений (6)–(9) будет иметь вид:

$$\mu_S^1 = -j \frac{b_z}{h_y} = -\frac{\mu_a h_y + j\mu h_z}{h_y}. \quad (10)$$

С учетом соотношений (6)–(10) граничное условие при $z = d$ для p -пространственной гармоники можно представить в виде:

$$k_p [(\mu + \mu_a)A_p e^{k_p d} + (\mu_a - \mu)B_p e^{-k_p d}] e^{-jk_p y} = \sum_{m+n=p} (\mu_{S_m}^1(k_n)(A_n e^{k_n d} + B_n e^{-k_n d}) e^{-jk_n y}), \quad (11)$$

где суммирование в правой части проводится по всем индексам так, чтобы выполнялось условие $m + n = p$.

Граничное условие для нижней поверхности ферромагнитной пленки, граничащей с полубесконечным слоем диэлектрика при $z = 0$ ($\mu_S^0 = 1$), будет иметь вид:

$$k_p [(\mu + \mu_a)A_p + (\mu_a - \mu)B_p] e^{-jk_p y} = k_n (A_n + B_n) e^{-jk_n y}.$$

При $p = n$ последнее соотношение можно представить следующим образом:

$$B_{p,n} = \frac{\mu + \mu_a - 1}{\mu - \mu_a + 1} A_{p,n}. \quad (12)$$

Подставляя соотношение (12) в (11), получаем систему уравнений для исследуемой структуры в виде:

$$k_p \left[(\mu + \mu_a) e^{k_p d} + \frac{\mu + \mu_a - 1}{\mu + \mu_a + 1} e^{-k_p d} \right] A_p e^{-jk_p y} = - \sum_{m+n=p} \mu_{S_m}^1 e^{j\frac{2\pi m}{L} y} (k_n) \times \left(e^{k_n d} + \frac{\mu + \mu_a - 1}{\mu - \mu_a + 1} e^{-k_n d} \right) A_n e^{-jk_n y}, \quad (13)$$

где в общем случае соотношение (13) представляет собой бесконечную систему уравнений.

Подставим (5) в систему (13) и ограничимся значениями $n = 0, \pm 1$ и $m = 1$. При указанных значениях m и n , определитель системы (13) приводит к дисперсионному уравнению для ПМСВ в МК с двумя периодами:

$$\begin{vmatrix} \eta_0 & \kappa_0^+ & \kappa_0^- & \kappa_0^L & \kappa_0^l \\ \kappa_{-1}^+ & \eta_{-1}^+ & 0 & 0 & 0 \\ \kappa_{-1}^- & 0 & \eta_{-1}^- & 0 & 0 \\ \kappa_{-1}^L & 0 & 0 & \eta_{-1}^L & 0 \\ \kappa_{-1}^l & 0 & 0 & 0 & \eta_{-1}^l \end{vmatrix} = 0, \quad (14)$$

где

$$\begin{aligned} \eta_0 &= \left(\mu^2 - \mu_a^2 + \frac{c}{l} \right) \text{sh}(k_0 d) + \mu \left(1 + \frac{c}{l} \right) \text{ch}(k_0 d), \\ \eta_{-1}^\pm &= \left(\mu^2 - \mu_a^2 + \frac{c}{l} \right) \text{sh}(k_{-1}^\pm d) + \mu \left(1 + \frac{c}{l} \right) \text{ch}(k_{-1}^\pm d), \\ \eta_{L,l}^\pm &= \left(\mu^2 - \mu_a^2 + \frac{c}{l} \right) \text{sh}(k_{-1}^{L,l} d) + \mu \left(1 + \frac{c}{l} \right) \text{ch}(k_{-1}^{L,l} d), \\ \kappa_0^\pm &= \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \frac{k_{-1}^\pm}{k_0} \times \\ &\quad \times [\mu \text{ch}(k_{-1}^\pm d) + (1 - \mu_a) \text{sh}(k_{-1}^\pm d)], \\ \kappa_{-1}^\pm &= \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \frac{k_0}{k_{-1}^\pm} [\mu \text{ch}(k_0 d) + (1 - \mu_a) \text{sh}(k_0 d)], \\ \kappa_{L,l}^\pm &= \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \frac{k_0}{k_{-1}^{L,l}} \times \\ &\quad \times [\mu \text{ch}(k_{-1}^{L,l} d) + (1 - \mu_a) \text{sh}(k_{-1}^{L,l} d)], \\ \kappa_0^{L,l} &= \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{\pi c}{l}\right) \frac{k_0}{k_{-1}^{L,l}} [\mu \text{ch}(k_0 d) + (1 - \mu_a) \text{sh}(k_0 d)]. \end{aligned} \quad (15)$$

В соотношениях (15) используются выражения для постоянных распространения на основе формул (2) и (5) в виде:

$$k_{-1}^\pm = -k_0 + \frac{2\pi}{\lambda_\pm}, k_{-1}^l = -k_0 + \frac{2\pi}{l}, k_{-1}^L = -k_0 + \frac{2\pi}{L}. \quad (16)$$

5. Результаты численного исследования. На основе дисперсионного соотношения (14) были рассчитаны дисперсионные характеристики ПМСВ в МК с периодом l , МК с периодом L и МК с двумя периодами. Сплошными кривыми на рис. 2 показаны зависимости для действительной части волнового числа $\text{Re}(k_0)$, а пунктирными кривыми – для $\text{Im}(k_0)$, при обозначениях далее введена замена $k_0 \rightarrow k$. На рисунке 2а приведены дисперсионные характеристики для МК с периодом $l = 40$ мкм (красные кривые) и МК с периодом $L = 560$ мкм (синие кривые). Видно, что в областях частот, показанных заливкой $\text{Im}(k) \neq 0$, что свидетельствует о затухании волны в направлении распространения, обусловленным отражением от периодической структуры (первым брэгговским резонансом). Данные области частот соответствуют запрещенным зонам (33) – полосам непропускания ПМСВ. Для МК с периодом L и l ЗЗ обозначены как MC(L)-1 и MC(l)-1, и выделены синей и красной заливкой, соответственно. ЗЗ для МК с периодом L и l формируются при волновых числах $k_1 = \frac{\pi}{L} = 56.07 \text{ см}^{-1}$ и $k_2 = \frac{\pi}{l} = 785 \text{ см}^{-1}$. Видно, что ЗЗ для МК с периодом L располагается значительно ниже по частоте ЗЗ МК с периодом l .

На рисунке 2б красными кривыми приведены дисперсионные характеристики ПМСВ для МК с двумя периодами. Заливкой разного цвета выделены области запрещенных зон SL-1, SL-2, SL-3 и SL-4, соответственно. Из сравнения рис. 2а и б видно, что зона SL-1 располагается в области первого брэгговского резонанса решетки с периодом L , а зоны SL-2, SL-3 и SL-4 располагаются в области первого брэгговского резонанса решетки с периодом l . В МК с двумя периодами запрещенные зоны SL-1 и SL-2 формируются при волновых числах k_1 и k_2 , соответствующих волновым числам МК с периодами l и L . В свою очередь, запрещенные зоны SL-3 и SL-4 формируются при волновых числах $k_3 = \pi/\lambda_+$ и $k_4 = \pi/\lambda_-$. Частотный интервал и интервал волновых чисел между SL-3 и SL-4 определяется отношением периодов l/L , частотный интервал и интервал волновых чисел между SL-1 и SL-2 определяется разностью периодов $L - l$. Ширина запрещенных зон и затухание в центрах всех запрещенных зон определяется значением параметра c и уменьшается при $c \rightarrow 0$ и $c \rightarrow l$. При $c \rightarrow 0$ и сохранении l также увеличивается длина металлизированной области в структуре и все запрещенные зоны сдвигаются вверх по частоте.

6. Метод конечных элементов. С использованием программного пакета COMSOL Multiphysics было проведено численное моделирование и расчет спектров электромагнитных волн в МК с двумя пе-

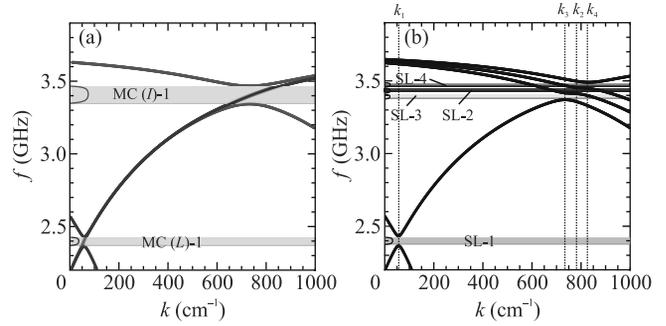


Рис. 2. (Цветной онлайн) Дисперсионные характеристики ПМСВ: (а) – в МК с периодом l (красные кривые), МК с периодом L (синие кривые); (б) – в МК с двумя периодами (черные кривые). Закрашенные области соответствуют запрещенным зонам. Сплошными кривыми показаны зависимости для действительной части волнового числа $\text{Re}(k)$, а пунктирными кривыми – для $\text{Im}(k)$ ($H_0 = 350$ Э, $M_0 = 140$ Гс, $d = 10$ мкм, $L = 560$ мкм, $l = 40$ мкм, $c = 20$ мкм). k_1, k_2 – волновые числа первого брэгговского резонанса в решетках с периодами L и l , соответственно, $k_3 = \pi/\lambda_+$ и $k_4 = \pi/\lambda_-$

риодами методом конечных элементов путем решения системы уравнений Максвелла [17]. Предполагалось, что компоненты электромагнитного поля зависят от частоты по гармоническому закону $e^{j\omega t}$, исследуемое уравнение второго порядка для вектора напряженности электрического поля E имело вид:

$$\nabla \times (\bar{\mu}^{-1} \nabla \times E) - k^2 \varepsilon E = 0, \quad (17)$$

где $k = \omega/c$ – волновое число в вакууме, ω – круговая частота электромагнитной волны, ε – эффективное значение диэлектрической проницаемости ферромагнитного слоя.

Параметры для расчетов выбирались характерными для МК на основе пленки железо-иттриевого граната (YIG) и полосок из меди (Cu). Для моделирования распространения собственных волн в периодической структуре достаточно рассмотреть один период структуры. На правой панели к рис. За схематично изображена примитивная ячейка МК и показано, что на правой и левой границе расчетной области были установлены периодические граничные условия Флоке (Periodic Boundary Condition, PBC). В правой панели к рис. Зс приведена схема разбиения расчетной области на конечные элементы в элементарной ячейке структуры. При этом расчетная область разбивалась на конечные элементы таким образом, что размер треугольного элемента уменьшался вблизи полосок металла и на границах ферромагнитной структуры.

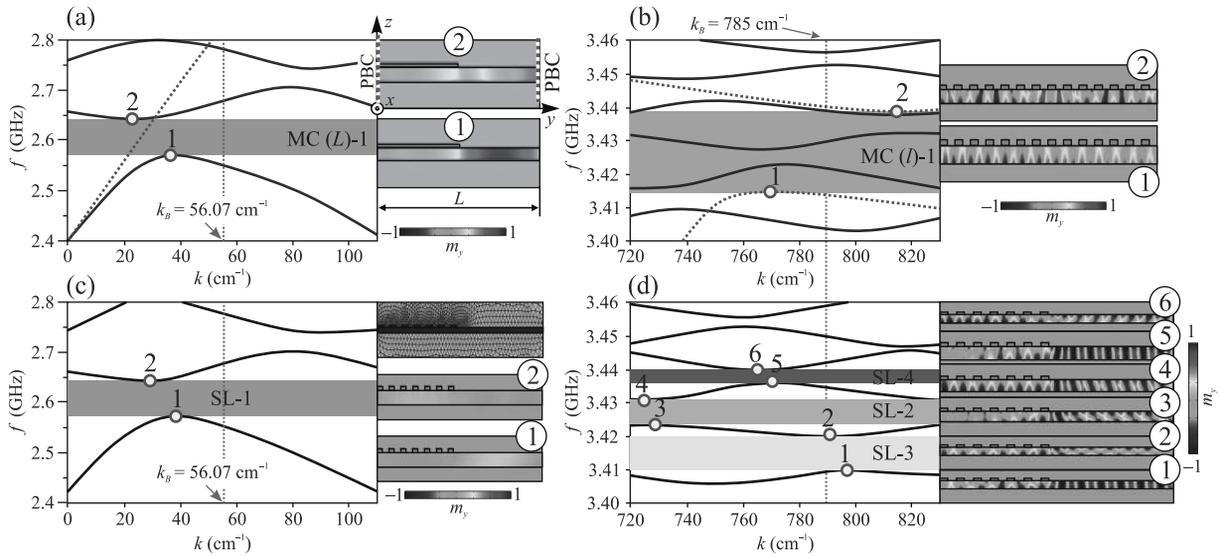


Рис. 3. (Цветной онлайн) Дисперсионные характеристики ПМСВ (а), (b) в МК с периодом l (красные кривые), МК с периодом L (синие кривые), (c), (d) – в МК с двумя периодами (черные кривые). Закрашенные области соответствуют запрещенным зонам. На правых панелях приведено распределение m_y компоненты намагниченности для частот, соответствующих краям ЗЗ. На правой панели к рис. (c) показан фрагмент разбиения расчетной области на элементы для примитивной ячейки магнной суперрешетки. Расчетные параметры: $\epsilon = 14$, $N = 14$, $d_1 = 3$ мкм, остальные параметры как на рис. 2

7. Результаты численного исследования. В результате численного моделирования были построены дисперсионные характеристики ПМСВ для МК с периодами L и l , а также для МК с двумя периодами. На рисунке 3а, b приведены дисперсионные характеристики для МК с периодом $l = 40$ мкм (красные штрих-пунктирные кривые) и для МК с периодом $L = 560$ мкм (синие кривые). ЗЗ, формируемые при условии первого брэгговского резонанса, для МК с периодом l и периодом L обозначены как $MC(l)-1$ (красная заливка) и $MC(L)-1$ (синяя заливка), соответственно. Параметры для расчетов выбирались характерными для МК на основе пленок железо-иттриевого граната (YIG) и полосок из меди (Cu).

На рисунке 3с, d черными кривыми приведены дисперсионные характеристики ПМСВ в МК с двумя периодами в тех же диапазонах частот, где наблюдались ЗЗ $MC(l)-1$ и $MC(L)-1$. Видно, что в области частот ЗЗ $MC(l)-1$ формируются одна ЗЗ $SL-1$ (рис. 3с), а в области частот $MC(L)-1$ формируется три ЗЗ $SL-2$, $SL-3$ и $SL-4$ (ЗЗ показаны заливкой). Из сравнения рис. 2b и 3с, d видно, что ЗЗ формируются при волновых числах, несколько отличных от $k_{1,2,3,4}$, соответственно. Данное отличие объясняется невязимностью ПМСВ: максимум амплитуды волны, бегущей в положительном направлении оси y , локализован вблизи верхней (металлизированной) поверх-

ности МК, в то время как максимум волны, распространяющейся в отрицательном направлении оси y , локализован вблизи нижней (неметаллизированной) поверхности МК.

На правых панелях к рис. 3а–d приведено распределение m_y компоненты намагниченности для частот, соответствующих краям ЗЗ. Из правой панели к рис. 3а видно, что профиль амплитуды волны имеет асимметричный вид относительно центра примитивной ячейки (по оси y) вблизи нижней границы ЗЗ $MC(L)-1$ (для точки 1 на рис. 3а), и симметричный вид вблизи верхней границы (для точки 2 на рис. 3а). Из правой панели к рис. 3b видно, что профиль амплитуды волны для точек 1 и 2, соответствующих краям ЗЗ $MC(l)-1$, оказывается смещенным на величину l вдоль оси y . Из правой панели к рис. 3с видно, что профиль амплитуды волны для точек 1 и 2, соответствующих краям ЗЗ $SL-1$, также оказывается смещенным на величину l вдоль оси y . Из правой панели на рис. 3d видно, что для точек 1, 3 и 5, соответствующих нижним границам ЗЗ $SL-1$, $SL-2$ и $SL-3$, максимум компоненты m_y локализован в области, где металлизация отсутствует.

8. Выводы. В работе исследованы особенности брэгговских резонансов в магнном кристалле, представляющего собой ферромагнитную пленку, на поверхности которой наложены металлические полоски с двумя периодами $l < L$.

С использованием метода связанных волн и метода шивания магнитных проницаемостей на границах слоев получено дисперсионное соотношение для ПМСВ в исследуемой структуре. Показано, что в такой структуре, за счет взаимодействия одной прямой и четырех отраженных волн, имеет место формирование трех брэгговских резонансов в первой зоне Бриллюэна для решетки с меньшим периодом l и одного резонанса в первой зоне Бриллюэна для решетки с большим периодом L . Резонансы формируются как при брэгговских длинах волн для решеток с периодом l и L , так и длинах волн, отстроенных от брэгговских на величину, пропорциональную отношению периодов l и L . Резонансные частоты и частотный интервал между ними определяется отношением периодов l и L . Методом конечных элементов проведено численное моделирование и получено распределение намагниченности в металлизированной и неметаллизированной частях структуры на границах каждой из запрещенных зон.

Выявленные особенности позволяют рассматривать магнотонные кристаллы с двумя периодами в качестве основного элемента частотно-селективного устройства для обработки микроволновых сигналов. Полученные результаты представляют значительный интерес для широкого класса резонансных явлений в более сложных структурах на основе ферромагнитных пленок, в частности, для структур на основе магнотонных кристаллов с тремя и более периодами или слоистых структур на основе магнитных свехрешеток.

Работа поддержана Российским научным фондом (грант # 23-79-30027).

1. A. Kimel, A. Zvezdin, S. Sharma et al. (Collaboration), *Journal of Physics D: Applied Physics* **55**(46), 463003 (2022).
2. С. А. Никитов, А. Р. Сафин, Д. В. Калябин, А. В. Садовников, Е. Н. Бегинин, М. В. Логунов, М. А. Морозова, С. А. Одинцов, С. А. Осокин, А. Ю. Шаравская, Ю. П. Шараевский, А. И. Кириллук, *Успехи физических наук* **190**(10), 1009 (2020).
3. A. Chumak, A. Serga, and B. Hillebrands, *Journal of Physics D: Applied Physics* **50**(24), 244001 (2017).
4. M. Krawczyk and D. Grundler, *J. Phys. Condens. Matter* **26**(12), 123202 (2014).
5. R. A. Gallardo, T. Schneider, A. Roldán-Molina, M. Langer, A. Núñez, K. Lenz, J. Lindner, and P. Landeros, *Phys. Rev. B* **97**(17), 174404 (2018).
6. С. Л. Высоцкий, Ю. В. Хивинцев, Ю. А. Филимонов, С. А. Никитов, А. И. Стогний, Н. Н. Новицкий, *Письма в Журнал технической физики* **41**(22), 66 (2015).
7. M. Morozova, O. Matveev, Y. P. Sharaevskii, S. Nikitov, and A. Sadovnikov, *Appl. Phys. Lett.* **120**(12), 122407 (2022).
8. K. Di, V. L. Zhang, M. H. Kuok, H. S. Lim, S. C. Ng, K. Narayanapillai, and H. Yang, *Phys. Rev. B* **90**(6), 060405 (2014).
9. V. Zhang, H. Lim, S. Ng, M. Kuok, X. Zhou, and A. Adeyeye, *AIP Advances* **6**(11), 115106 (2016).
10. I. P. Coelho, M. S. d. Vasconcelos, and C. G. Bezerra, *Solid State Commun.* **150**(37–38), 1760 (2010).
11. S. V. Grishin, O. I. Moskalenko, A. N. Pavlov, D. V. Romanenko, A. V. Sadovnikov, Y. P. Sharaevskii, I. V. Sysoev, T. M. Medvedeva, E. P. Seleznev, and S. A. Nikitov, *Phys. Rev. Appl.* **16**(5), 054029 (2021).
12. P. Emtage, *J. Appl. Phys.* **49**(8), 4475 (1978).
13. L. N. Brillouin, *Wave propagation in periodic structures: electric filters and crystal lattices*, Dover, N.Y. (1953).
14. D. Marcuse, *Light transmission optics*, Cincinnati: Bell Laboratory Series, N.Y. (1972).
15. А. В. Вашковский, В. С. Стальмахов, Ю. П. Шараевский, *Магнитостатические волны в электронике сверхвысоких частот: учебное пособие для физ. спец. ун-тов*, из-во Саратовского университета, Саратов (1993).
16. А. Г. Гуревич, Г. А. Мелков, *Магнитные колебания и волны*, Наука, М. (1994).
17. G. Gubbiotti, A. Sadovnikov, S. Sheshukova, E. Beginin, S. Nikitov, G. Talmelli, C. Adelman, and F. Ciubotaru, *J. Appl. Phys.* **132**(8), 083902 (2022).

Первопринципные исследования адсорбции Li и Na на поверхности монослоя MgCl₂

С. В. Устюжанина⁺, А. А. Кистанов^{+*1)}

⁺ Институт проблем сверхпластичности металлов РАН, 450001 Уфа, Россия

* Лаборатория Металлы и сплавы при экстремальных воздействиях,
Уфимский университет науки и технологий, 450076 Уфа, Россия

Поступила в редакцию 14 августа 2023 г.

После переработки 4 октября 2023 г.

Принята к публикации 5 октября 2023 г.

С использованием первопринципных расчетов исследована динамическая устойчивость нового монослоя дихлорида магния (MgCl₂) и образование в нем точечных дефектов. Изучена возможность использования монослоя MgCl₂ в литий(Li)- и натрий(Na)-ионных батареях. Показано, что монослой MgCl₂ обладает динамической стабильностью, но может содержать точечные дефекты. Эти точечные дефекты могут улучшить адсорбционную способность монослоя MgCl₂ по отношению к атомам Li и Na. Результаты, показанные в этой работе, делают монослой MgCl₂ перспективным материалом для применения в Li- и Na-ионных батареях.

DOI: 10.31857/S1234567823210097, EDN: ptdeba

Введение. Недавно была предсказана и исследована новая группа двумерных (2Д) материалов, двумерных дихлоридов переходных металлов [1]. Кроме того, повышенное внимание уделяется другим 2Д хлоридам металлов, таким как 2Д MgCl₂, в связи с их исключительными оптоэлектронными и магнитными свойствами [2, 3]. К примеру, в работе [4] было показано, что монослой обладает шириной запрещенной зоны, равной 6.08 эВ.

В настоящее время также растет спрос на Li- и Na-ионные аккумуляторы для различных применений, в том числе для электромобилей, возобновляемых источников энергии и систем хранения энергии [5, 6]. В последнее время интерес исследователей направлен на новый класс хлоридов лития из-за их очень высокой окислительной стабильности [7]. Различные хлориды переходных металлов, такие как NiCl₂ и KNiCl₃, были протестированы в качестве материалов катода в Li- и Na-ионных батареях и показали многообещающие результаты благодаря их сравнительно высокой емкости и напряжению [8, 9]. Кроме того, мезопористый углерод, наполненный CuCl₂, был предложен в качестве катодного материала для литий-ионных аккумуляторов с высокой емкостью из-за его обратимой реакции переноса двух электронов, обеспечивающей очень высокую обратимую емкость [10].

Однако, насколько известно, нет исследований по возможному применению монослоя MgCl₂ в качестве материала для применения в Li- и Na-ионных батареях. Кроме того, недостаточно изучено влияние образования типичных точечных дефектов в монослое MgCl₂ на его адсорбционную способность по отношению к атомам Li и Na. Поэтому в данной работе влияние типичных точечных дефектов и возможность применения монослоя MgCl₂ в Li- и Na-ионных батареях исследуется с помощью теории функционала плотности с использованием первопринципных расчетов.

Вычислительные методы. Структура монослоя MgCl₂ была спроектирована на основе геометрии примитивной элементарной ячейки монослоя MgCl₂, имеющейся в базе данных 2DMatPedia (ID 2dm-3734) [11], и найденных ранее 2Д дихлоридов переходных металлов [1], а также экспериментальных данных [12] по монослою MgCl₂. Расчеты проводились методом плоских волн, реализованным в пакете Vienna Ab initio Simulation Package [13]. Расчеты по оптимизации геометрии были выполнены с использованием обменно-корреляционного функционала Пердью–Берка–Эрнзергофа (PBE) в приближении обобщенного градиента (GGA) [14]. Оптимизация была остановлена, как только все компоненты всех атомных сил стали меньше 10⁻⁴ эВ/Å, а изменение полной энергии было меньше 10⁻⁸ эВ. Первая зона Бриллюэна была отобрана с сеткой *k*-точек

¹⁾e-mail andrei.kistanov.ufa@gmail.com

$10 \times 10 \times 1$ для элементарной ячейки и сеткой k -точек $3 \times 3 \times 1$ для суперячейки. Энергия обрезки потенциала была выбрана равной 520 эВ. Периодические граничные условия применялись вдоль поперечных направлений в плоскости, а вакуумное пространство 20 \AA вводилось в направлении, перпендикулярном плоскости поверхности. Для построения фононного спектра, расчеты, основанные на теории возмущений функционала плотности (DFPT), с помощью программного пакета PhonoPy [15], были выполнены для суперячейки монослоя MgCl_2 размером $3 \times 3 \times 1$ с использованием сетки k -точек $2 \times 2 \times 1$. Поправка DFT-D3 [16] использовалась для учета Ван-дер-Ваальсовых взаимодействий между атомами Li и Na и поверхностью монослоя MgCl_2 . Для исследования моно вакансионных (МВ) дефектов и энергии адсорбции рассматривалась супер ячейка MgCl_2 размером $4 \times 4 \times 1$ элементарных ячеек.

Энергия образования E_{form} МВ дефектов в монослое MgCl_2 рассчитывалась следующим образом:

$$E_{\text{form}} = E_{\text{perfect}} - E_{\text{defect}} - N_{\text{Mg}}E_{\text{Mg}} - N_{\text{Cl}}E_{\text{Cl}}, \quad (1)$$

где E_{perfect} и E_{defect} – полные энергии чистого и содержащего МВ монослоя MgCl_2 , E_{Mg} и E_{Cl} – энергии атомов Mg и Cl, соответственно, рассчитанные из объемных фаз материалов.

Энергия адсорбции атомов Li и Na на поверхности монослоя MgCl_2 рассчитывалась следующим образом:

$$E_a = E_{\text{MgCl}_2/\text{mol}} - E_{\text{MgCl}_2} - E_{\text{atom}}, \quad (2)$$

где $E_{\text{MgCl}_2/\text{mol}}$ – полная энергия монослоя MgCl_2 , адсорбированного Li(Na), E_{MgCl_2} и E_{atom} – полные энергии исходного монослоя MgCl_2 и свободного атома Li(Na), соответственно.

Заселенность кристаллических орбиталей Гамильтона (Crystal Orbital Hamilton Populations – COHP) [17] рассчитывалась с помощью программы LOBSTER [18].

Результаты и обсуждения. На рисунке 1а показана структура элементарной ячейки монослоя MgCl_2 . Он принадлежит к тригональной пространственной группе симметрии $164 R-3m1$ и состоит из одного атома Mg и двух атомов Cl. Оптимизированные структурные параметры монослоя MgCl_2 собраны в табл. 1. Полученные данные по расчету параметров решетки монослоя MgCl_2 $a = b = 3.64 \text{ \AA}$ аналогичны ранее представленным результатам [19] и соотносятся с экспериментальными данными [20]. Для подтверждения динамической стабильности монослоя MgCl_2 рассчитан его фононный спектр, который показан на рис. 1b. Видно, что все фононные

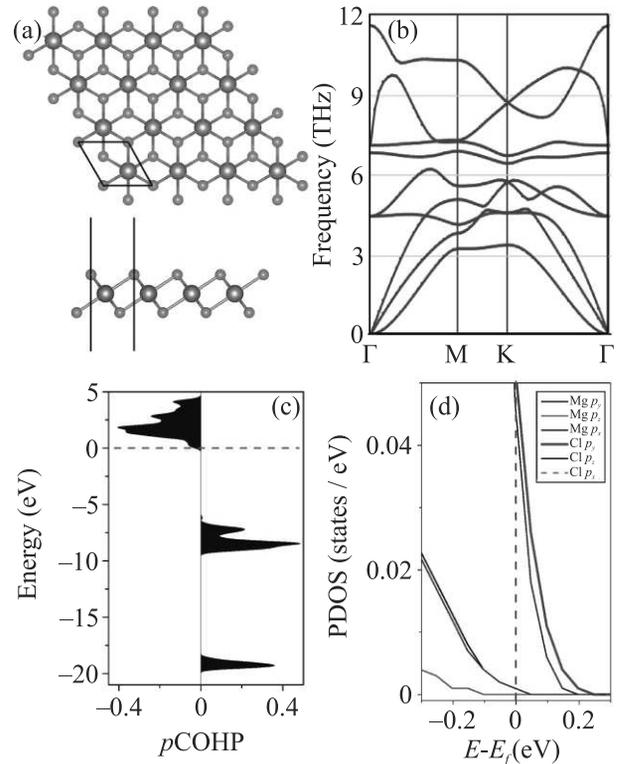


Рис. 1. (Цветной онлайн) Структура элементарной ячейки (а), фононный спектр (b), $p\text{COHP}$ (c) и PDOS (d), где уровень Ферми показан красной пунктирной линией, для монослоя MgCl_2

дисперсионные кривые монослоя MgCl_2 положительны во всей зоне Бриллюэна, что свидетельствует о динамической устойчивости монослоя MgCl_2 . Стоит отметить, что ранее, в работе [21], уже был рассчитан фононный спектр монослоя MgCl_2 , наши результаты показывают высокую сходимость с ранее представленными.

Таблица 1. Структурные параметры монослоя MgCl_2

$a, \text{ \AA}$	$b, \text{ \AA}$	α	β	γ
3.64	3.64	90	90	120

В 2D материалах обычно присутствуют различные точечные дефекты, которые самопроизвольно образуются в процессе их изготовления и эксплуатации [22–24]. Поэтому здесь рассматривается устойчивость и образование точечных дефектов в монослое MgCl_2 , в частности, МВ дефектов. В данной работе рассматриваются следующие дефекты: МВ атома Cl (MBCl) и МВ атома Mg (MBMg). Термическая устойчивость этих МВ-дефектов в монослое MgCl_2 оценивается по энергии их образования E_{form} . Установлено, что дефект MBCl имеет низкую $E_{\text{form}} = 5.86 \text{ эВ}$,

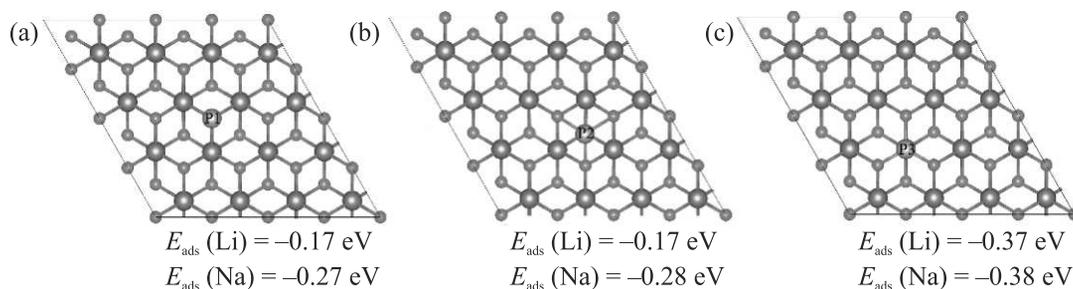


Рис. 2. (Цветной онлайн) Три наиболее энергетически выгодные конфигурации атомов Li и Na на поверхности монослоя MgCl_2 , положение атомов Li и Na показано, как P1, P2 и P3

в то время как дефект MB_{Mg} имеет гораздо более высокую $E_{\text{form}} = 7.90$ эВ, что сравнимо с E_{form} MB в графене (7.50 эВ) [25] и MB дефектами в хлоридах металлов (до 7.37 эВ) [1]. Кроме того, прочность связи в материале можно приблизительно оценить при помощи СОНР анализа [26, 27]. Зная площадь под кривой p СОНР, можно дать оценку энергии связи в материале. p СОНР и для монослоя MgCl_2 представлен на рис. 1с. Из рисунке 1с также видно, что состояния в интервале энергий от -0.2 эВ до 4.7 эВ являются разрыхляющими и не дают вклад в химическую связь Mg с Cl. Согласно рис. 1d, где представлена диаграмма парционной плотности состояний (PDOS) монослоя MgCl_2 , данными разрыхляющими орбиталями являются $2p$ -орбитали Cl и $2p_x$ - и $2p_y$ -орбитали Mg. Полученное значение площади под кривой p СОНР ($-I p$ СОНР), иными словами энергия связи Cl-Mg, составляет ~ 0.84 эВ. Таким образом, для удаления одного атома хлора с образованием MB_{Cl} , требующее разрыва трех связей с ближайшими атомами Mg, потребуется ~ 2.52 эВ, что существенно ниже энергии формирования MB_{Cl} , полученной согласно формулы (1). Стоит отметить, что данные по расчетам E_{form} MB и СОНР анализа дают результаты, отличающиеся более чем в 2 раза. Необходимо подчеркнуть тот факт, что химический потенциал атомов Mg и Cl в объемной фазе отличается от такового в их соединении [28], что может приводить к меньшей точности в оценке результатов, полученных для энергии формирования MB_{Cl} . Тем не менее, оба метода подтверждают низкую энергию формирования моновакансий в монослое MgCl_2 , относительно других 2Д материалов, таких как графен.

Были рассмотрены различные атомные конфигурации атомов Li и Na на поверхности монослоя MgCl_2 . В частности, рассмотрены позиции атомов Li и Na – над атомом Cl первого слоя, над атомом Mg второго слоя, над атомом Cl третьего слоя, над центром связи Cl-Mg и над центром шестичленного кольца. На рисунке 2 представлены три наиболее

энергетически выгодные конфигурации (P1-P3) атомов Li и Na на поверхности монослоя MgCl_2 из всех рассмотренных в данной работе. Из рисунка 2 следует, что E_a Li и Na на поверхности монослоя MgCl_2 для конфигурации P3 (рис. 2с) значительно ниже таковой для случаев P1 (рис. 2а) и P2 (рис. 2б), на ~ 0.1 эВ в случае Li и на ~ 0.2 эВ в случае Na. Кроме того, обнаружено, что полная энергия систем Li- MgCl_2 и Na- MgCl_2 , представленных на рис. 2с (конфигурация P3), ниже таковой для систем Li- MgCl_2 и Na- MgCl_2 , представленных на рис. 2а, б. Далее, в работе рассматривался только случай для наиболее энергетически выгодной конфигурации Li и Na на поверхности монослоя MgCl_2 , т.е. конфигурация P3 (рис. 2с). Далее, на рис. 3а показана данная энергетически выгодная конфигурация атома Li, адсорбированного на поверхности монослоя MgCl_2 . Атом Li расположен над атомом Mg на расстоянии 0.15 Å от поверхности. Видно, что адсорбированный атом Li смещает атом Mg из положения равновесия. Расчетная энергия адсорбции E_a одного атома Li на поверхности монослоя MgCl_2 оказалась равной -0.37 эВ (см. табл. 2). Учитывая обнаруженную сравнительно низкую энергию образования MB дефектов в монослое MgCl_2 и наблюдаемое смещение атома Mg, активированное адсорбцией Li, важно учитывать взаимодействие Li с поверхностью монослоя MgCl_2 , содержащей MB дефект. На рисунке 3б показана конфигурация атома Li, адсорбированного на монослое MgCl_2 , содержащем MB_{Cl} , при расположении Li на дефекте MB_{Cl} . В этом случае атом Li находится в шестигольнике на расстоянии 0.97 Å, при этом значение E_a составляет -1.94 эВ (см. табл. 2). На рисунке 3с показана адсорбция атома Li на монослое MgCl_2 , содержащем MB_{Mg} дефект. После оптимизации геометрии структуры атом Li занимает свободное место на MB_{Mg} . В этом случае значение E_a составляет -6.67 эВ (см. табл. 2), что свидетельствует об экзотермическом и самопроизвольном процессе адсорбции атома Li на монослое MgCl_2 , содержащем

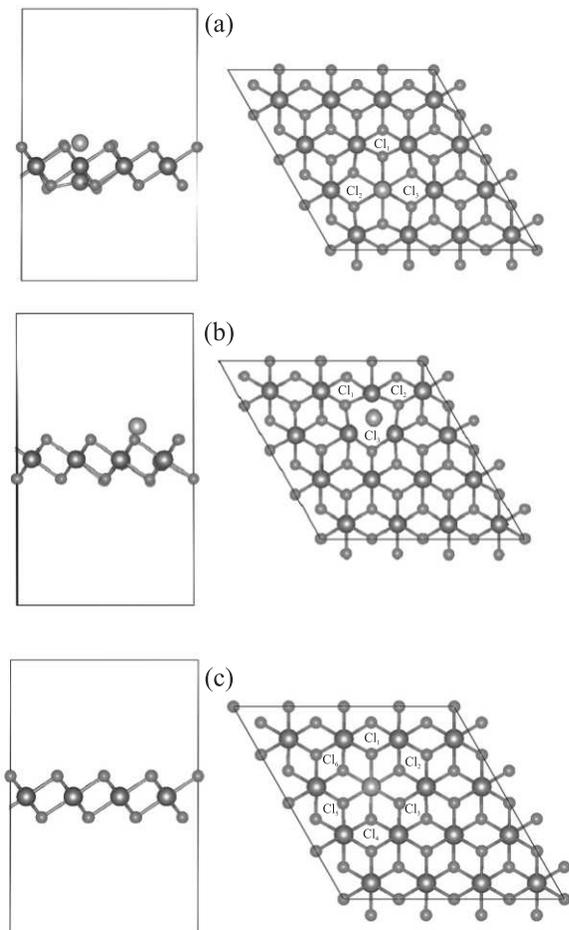


Рис. 3. (Цветной онлайн) Чистый (а), содержащий MB_{Cl} (b) и содержащий MB_{Mg} (c) монослой $MgCl_2$ с адсорбированным атомом Li

MB_{Mg} . Как известно, тепловое самовозгорание материалов может ускоряться биохимическим или адсорбционным самонагревом [29], ввиду чего существует опасность самовозгорания устройств, таких как Li- и Na-ионные батареи. Таким образом, Li- и Na-ионные батареи на основе монослой $MgCl_2$, ввиду больших отрицательных энергий абсорбции атомов Li и Na на его поверхности, могут быть подвержены данному эффекту.

Таблица 2. Энергия адсорбции Li и Na на монослое $MgCl_2$

	Li	Na
Монослой $MgCl_2$	-0.37 эВ	-0.38 эВ
Монослой $MgCl_2$ с MB_{Cl}	-1.94 эВ	-1.59 эВ
Монослой $MgCl_2$ с MB_{Mg}	-6.67 эВ	-5.68 эВ

На рисунке 4а показана наиболее энергетически выгодная конфигурация атома Na на поверхности монослой $MgCl_2$. Атом Na расположен над атомом

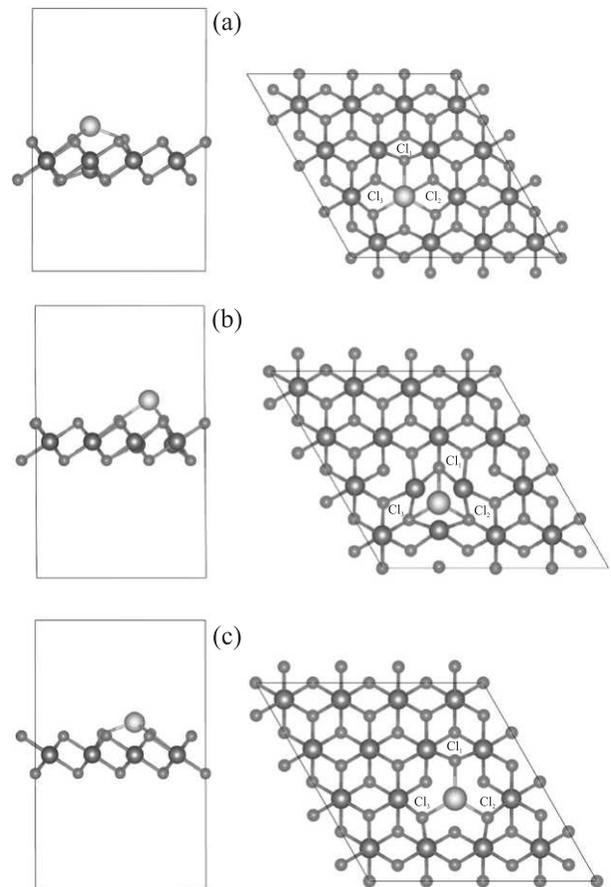


Рис. 4. (Цветной онлайн) Чистый (а), содержащий MB_{Cl} (b) и содержащий MB_{Mg} (c) монослой $MgCl_2$ с адсорбированным атомом Na

Mg на расстоянии 1.15 \AA от поверхности. Видно, что адсорбированный атом Na смещает атом Mg из положения равновесия, как это было в случае с атомом Li. Расчетная энергия адсорбции E_a одного атома Na на поверхности монослой $MgCl_2$ равна -0.38 эВ (см. табл. 2). На рисунке 4b показана конфигурация атома Na, адсорбированного на монослое $MgCl_2$, содержащем MB_{Cl} . В этом случае атом Na находится в шестиугольнике на расстоянии 1.42 \AA от поверхности монослой $MgCl_2$, при этом значение E_a равно -1.59 эВ (см. табл. 2). На рисунке 4c показана адсорбция атома Na на монослое $MgCl_2$, содержащем MB_{Mg} . После оптимизации геометрии структуры атом Na занимает свободное место на MB_{Mg} . В этом случае значение E_a составляет всего -5.68 эВ (см. табл. 2), что свидетельствует об экзотермическом и самопроизвольном процессе адсорбции атома Na на монослое $MgCl_2$, содержащем MB_{Mg} .

Стоит отметить, что E_a атома Na на монослое

Таблица 3. Величина переноса заряда Δq и донорно-акцепторные характеристики атомов Li и Na, а также соседних атомов Cl. Положительное/отрицательное Δq характеризует потерю/приобретение электронов. Нумерация атомов согласно рис. 3 и 4

	Δq [e] Li/Na	Δq [e] Cl ₁	Δq [e] Cl ₂	Δq [e] Cl ₃	Δq [e] Cl ₄	Δq [e] Cl ₅	Δq [e] Cl ₆
Li на MgCl ₂	1 (донор)	-0.032 (акцептор)	-0.034 (акцептор)	-0.034 (акцептор)			
Li MgCl ₂ с MB _{Cl}	1 (донор)	-0.063 (акцептор)	-0.064 (акцептор)	-0.067 (акцептор)			
Li MgCl ₂ с MB _{Mg}	1 (донор)	0.112 (донор)	0.111 (донор)	0.113 (донор)	0.112 (донор)	0.110 (донор)	0.11 (донор)
Na на MgCl ₂	0.867 (донор)	-0.005 (акцептор)	-0.005 (акцептор)	-0.007 (акцептор)			
Na MgCl ₂ с MB _{Cl}	0.907 (донор)	-0.038 (акцептор)	-0.036 (акцептор)	-0.036 (акцептор)			
Na MgCl ₂ с MB _{Mg}	0.890 (донор)	0.059 (донор)	0.060 (донор)	0.060 (донор)			

MgCl₂, содержащем MB_{Cl} и MB_{Mg} несколько выше таковой для атома Li. Для объяснения полученных результатов проведен анализ зарядового распределения на атомах кристаллической решетки при помощи анализа Бадера [30] с использованием кода Хенкельмана [31]. Представленные в табл. 3 результаты данного анализа показывают, что Li и Na являются сильными донорами во всех рассмотренных случаях, в то время как ближайшие к атомам Li и Na атомы Cl меняют свою роль с акцепторной (в случае адсорбции атомов Li и Na на монослой MgCl₂, содержащем MB_{Cl}) на донорную (в случае адсорбции атомов Li и Na на монослой MgCl₂, содержащем MB_{Mg}). Наибольшее различие в E_a Li и Na наблюдается для монослоя MgCl₂, содержащего MB_{Mg}. При этом значительный вклад в адсорбцию Li и Na вносят близлежащие к ним атомы Cl. Согласно табл. 3, атомы Cl являются достаточно слабыми донорами ($\Delta q \cong 0.060e$) в случае адсорбции атома Na, в то время как при адсорбции атома Li атомы Cl являются сильными донорами ($\Delta q \cong -0.112e$). При этом атом Li занимает вакантную позицию Mg и имеет 6 ближайших соседних атомов Cl, в то время как атом Na остается на поверхности монослоя MgCl₂ и имеет только 3 ближайших соседних атомов Cl. Таким образом, перенос заряда от атомов Li(Na) к поверхности монослоя MgCl₂ через ближайшие атомы Cl, а также роль этих атомов Cl в каждом конкретном случае имеют решающее значение при адсорбции атомов Li и Na на монослой MgCl₂.

Выводы. В заключение, в данной работе при помощи первопринципных расчетов были проведены исследования недавно обнаруженного монослоя MgCl₂ для его возможного применения в Li- и Na-ионных батареях. Во-первых, смоделированный фо-

нонный спектр монослоя MgCl₂ показал его структурную стабильность, что важно для его применения. Показано также, что монослой MgCl₂ может содержать MB дефекты из-за сравнительно низкой энергии образования в нем этих дефектов. Во-вторых, показано, что энергия адсорбции E_a атома Li и атома Na на поверхности монослоя MgCl₂ сравнительно велики, -0.37 эВ и -0.38 эВ, соответственно, а наличие MB-дефектов на поверхности монослоя MgCl₂ приводит к значительному уменьшению энергии адсорбции E_a до -6.67 эВ (для Li) и до -5.68 эВ (для Na). Следовательно, монослой MgCl₂ может быть универсальным кандидатом для применения в качестве анодного материала, применяемых в Li- и Na-ионных батареях.

Для А. А. Кистанова исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 23-73-01001, <https://rscf.ru/project/23-73-01001/>.

Исследования проводились на оборудовании коллективной исследовательской базы объединенного суперкомпьютерного центра Российской академии наук.

1. A. A. Kistanov, S. A. Shcherbinin, R. Botella, A. Davletshin, and W. Cao, *J. Phys. Chem. Lett.* **13**, 2165 (2022); <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.2c00367>.
2. I. T. Lima, R. Vasconcelos, R. Gargano, and E. N. C. Paurad, *New J. Chem.* **44**, 8833 (2020); <https://doi.org/10.1039/D0Nj01264E>.
3. G. Bhattacharyya, I. Choudhuri, P. Bhauriyal, P. Garg, and B. Pathak, *Nanoscale* **10**, 22280 (2018); <https://doi.org/10.1039/C8NR07429A>.

4. F. Lu, W. Wang, X. Luo, X. Xie, Y. Cheng, H. Dong, H. Liu, and W.-H. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 132104 (2016); <https://doi.org/10.1063/1.4945366>.
5. W. Mroziak, M. A. Rajaeifar, O. Heidrich, and P. Christensen, *Energy Environ. Sci.* **14**, 6099 (2021); <https://doi.org/10.1039/D1EE00691F>.
6. A. A. Kistanov, D. R. Kripalani, Y. Cai, S. V. Dmitriev, K. Zhou, and Y.-W. Zhang, *J. Mater. Chem. A* **7**, 2901 (2019); <https://doi.org/10.1039/C8TA11503F>.
7. I. Kochetkov, T. T. Zuo, R. Ruess, B. Singh, L. Zhou, K. Kaup, J. Janek, and L. Nazar, *Energy Environ. Sci.* **15**, 3933 (2022); <https://doi.org/10.1039/D2EE00803C>.
8. K. Giagloglou, J. L. Payne, Ch. Crouch, R. K. B. Gover, P. A. Connor, and J. T. S. Irvin, *J. Electrochem. Soc.* **165**, A3510 (2018); <https://doi.org/10.4191/kcers.2019.56.3.05>.
9. Y. Li, L. Shi, X. Gao, J. Wang, Y. Hu, X. Wu, and Z. Wen, *Chem. Eng. J.* **421**, 127853 (2021); <https://doi.org/10.1016/j.cej.2020.127853>.
10. T. Li, Z. X. Chen, Y. L. Cao, X. P. Ai, and H. X. Yang, *Electrochim. Acta* **68**, 202 (2012); <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2012.02.061>.
11. J. Zhou, L. Shen, M. D. Costa, K. A. Persson, S. P. Ong, P. Huck, Y. Lu, X. Ma, Y. Chen, H. Tang, and Y. P. Feng, *Sci. Data* **6**, 86 (2019); <https://doi.org/10.1038/s41597-019-0097-3>.
12. D. H. Fairbrother, J. G. Roberts, and G. A. Somorjai, *Surf. Sci.* **399**(1), 109 (1998); [https://doi.org/10.1016/S0039-6028\(97\)00816-9](https://doi.org/10.1016/S0039-6028(97)00816-9).
13. G. Kresse, and J. Furthmuller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996); <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.54.11169>.
14. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.3865>.
15. A. Togo, L. Chaput, T. Tadano, and I. Tanaka, *J. Phys. Condens. Matter* **35**, 353001 (2023); <https://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/acd831>.
16. S. Grimme, J. Antony, S. Ehrlich, and H. Krieg, *J. Chem. Phys.* **132**, 154104 (2010); <https://doi.org/10.1063/1.3382344>.
17. V. L. Deringer, A. L. Tchougreff, and R. Dronskowski, *J. Phys. Chem. A* **115**(21), 5461 (2011); <https://doi.org/10.1021/jp202489>.
18. R. Nelson, C. Ertural, J. George, V. L. Deringer, G. Hautier, and R. Dronskowski, *J. Comput. Chem.* **41**(21), 1931 (2020); <https://doi.org/10.1002/jcc.26353>.
19. G. Bhattacharyya, I. Choudhuri, P. Bhauriyal, P. Garg and B. Pathak, *Nanoscale* **10**, 22280 (2018); <https://doi.org/10.1039/c8nr07429a>.
20. J. Zhu and U. Schwingenschlogl, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **6**, 11675 (2014); <https://doi.org/10.1021/am502469m>.
21. H. R. Mahida, A. Patel, D. Singh, Y. Sonvane, P. B. Thakor, and R. Ahuja, *Superlattices Microstruct.* **162**, 107132 (2022); <https://doi.org/10.1016/j.spmi.2021.107132>.
22. H.-P. Komsa and A. V. Krasheninnikov, *Physics and theory of defects in 2D materials: the role of reduced dimensionality*, Amsterdam (2022), p. 7; <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-820292-0.00008-2>.
23. S. Abdolhosseinzadeh, Ch. Zhang, R. Schneider, M. Shakoorioskooie, F. Nüesch, and J. Heier, *Adv. Mater.* **34**, 2103660 (2022); <https://doi.org/10.1002/adma.202103660>.
24. A. A. Kistanov, V. R. Nikitenko, and O. V. Prezhdo, *J. Phys. Chem. Lett.* **12**, 620 (2021); <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.0c03608>.
25. A. V. Krasheninnikov, P. O. Lehtinen, A. S. Foster, and R. M. Nieminen, *Chem. Phys. Lett.* **418**, 132 (2006); <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2005.10.106>.
26. X. Yu, H. Shao, X. Wang, Y. Zhu, D. Fang, and J. Hong, *J. Mater. Chem. A* **8**, 3128 (2020); <https://doi.org/10.1039/C9TA12600G>.
27. Л. С. Чумакова, А. В. Бакулин, С. Е. Кулькова, *ЖЭТФ* **161**(6), 874 (2022); <https://doi.org/10.31857/S0044451022060116>.
28. А. В. Бакулин, С. Е. Кулькова, *ЖЭТФ* **6**(12), 1136 (2018); <https://doi.org/10.1134/S004445101812009X>.
29. А. С. Харламенков, *Пожаровзрывобезопасность/Fire and Explosion Safety.* **31**(3), 96 (2022).
30. R. F. W. Bader, *Atoms in Molecules. A Quantum Theory*, Clarendon Press, Oxford, UK (1990).
31. W. Tang, E. Sanville, and G. Henkelman, *J. Phys.: Condens. Matter.* **21**, 084204 (2009); <https://doi.org/10.1088/0953-8984/21/8/084204>.

Переход металл-диэлектрик и другие электронные свойства двухслойного АВ-графена на ферромагнитной подложке

И. Е. Гобелко⁺, А. В. Рожков^{*1)}, Д. Н. Дресвянкин[×]

⁺Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет) (МФТИ),
141701 Долгопрудный, Россия

^{*}Институт теоретической и прикладной электродинамики РАН, 125412 Москва, Россия

[×]Сколковский институт науки и технологий, 121205 Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 сентября 2023 г.

После переработки 5 октября 2023 г.

Принята к публикации 6 октября 2023 г.

Используя простую теоретическую модель, мы исследуем двухслойный АВ-графен на диэлектрической ферромагнитной подложке. Кроме обменного зеемановского поля, создаваемого подложкой, модель позволяет учитывать внешнее эффективное электрическое поле, направленное по нормали к плоскости графенового образца (такое поле возникает из-за контакта с подложкой, а также его создают, прикладывая напряжение на затворные электроды). Мы продемонстрируем, что при нулевом электрическом поле АВ-графен находится в металлическом состоянии. При повышении поля происходит переход в диэлектрическую фазу. Мы вычисляем спектр электронных состояний, диэлектрическую щель и другие свойства фаз по обе стороны перехода металл-диэлектрик. Наши результаты согласуются с численными расчетами по методу функционала плотности. Наши расчеты могут быть востребованы в спинтронике.

DOI: 10.31857/S1234567823210103, EDN: szvcbn

1. Введение. Графен и материалы на его основе являются перспективными системами для использования в спинтронике [1–3]. Основной объект изучения в данной работе – двухслойный графен с берналловской упаковкой (также называемый АВ-графеном) [4–6], уложенный на ферромагнитную подложку. Привлекательность подобных гетероструктур связана с возможностью создавать значительное обменное зеемановское поле, влияя таким образом на спиновые свойства электронной жидкости графенового образца.

Экспериментальные и теоретические исследования в этом направлении активно ведутся в последние годы. Например, в экспериментальной статье [7] авторы сообщают, что диэлектрические магнитные подложки из EuS способны обеспечивать в образце однослойного графена сильное обменное поле в десятки, и даже сотни тесла. (Хотя магнитная индукция постоянных полей, создаваемых в лабораторных условиях, не превосходит несколько десятков тесла, с сильными обменными полями ситуация проще.) Авторам удалось наблюдать расщепление электронных зон графенового образца, переход электронной жидкости в ферромагнитное состо-

яние с квантовым спин-поляризованным транспортом, а также спиновый эффект Холла. В теоретических работах [8, 9] рассматриваются похожие системы: двухслойный графен помещается на диэлектрические магнитные подложки из разных материалов. В каждом случае рассчитывается электронный спектр с помощью компьютерного моделирования на основе метода функционала плотности.

Безусловно, численные расчеты играют важную роль в исследованиях материалов. Однако многие свойства углеродных систем можно описывать в рамках простых одноэлектронных моделей, допускающих аналитические или полуаналитические решения. В данной работе именно такой подход мы применим к исследованию двухслойного АВ-графена на ферромагнитной диэлектрической подложке, помещенного во внешнее электрическое поле. Наш модельный гамильтониан обобщает гамильтониан, ранее предложенный в работе [10]. Аналитически найдя одноэлектронные спектры АВ-графена, мы изучим магнитные и транспортные свойства образца. В частности, мы теоретически покажем, что при различных соотношениях между обменным зеемановским и нормальным электрическим полем двухслойный графен может находиться как в диэлектрическом состоянии, так и в металлическом. Следова-

¹⁾e-mail: arozhkov@gmail.com

тельно, меняя напряжение на затворном электроде, можно контролировать спиновый и зарядовый транспорт в двухслойном графене. Такая возможность может быть востребованной для приложений в спинтронике.

Наша работа организована следующим образом. В части 2 мы формулируем модель и изучаем ее простейшие свойства. Переход металл-диэлектрик рассматривается в части 3, а в части 4 мы сравниваем результаты наших расчетов с численными данными. Мы обсуждаем полученные результаты и представляем выводы в части 5.

2. Модель. Двухслойный АВ-графен представляет из себя два листа однослойного графена, разделенных расстоянием $d = 0.36$ нм. Слои смещены друг относительно друга на длину химической связи углерод-углерод $a_0 = 0.142$ нм, см. рис. 1. В такой решетке в каждой элементарной ячейке находятся четыре атома углерода, каждый из которых представляет одну из четырех подрешеток, по две от каждого из слоев (для нижнего слоя – это подрешетки A1 и B1, для верхнего слоя – A2 и B2).

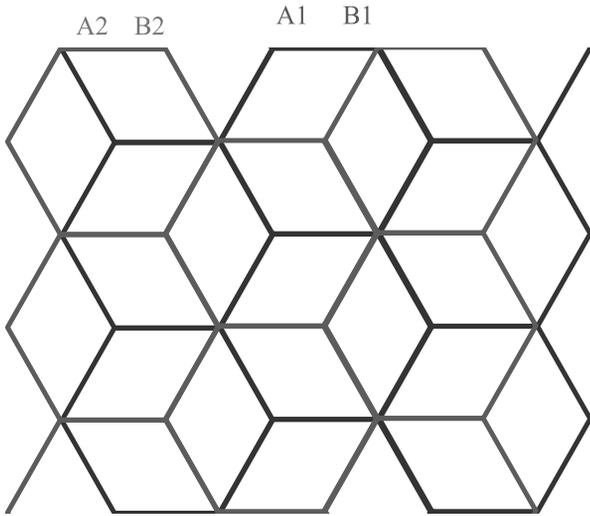


Рис. 1. (Цветной онлайн) Решетка двухслойного АВ-графена, вид сверху. Синим изображен нижний слой, красным – верхний. Четыре подрешетки обозначены A1, B1, A2, B2

Для описания электрона с квазиимпульсом \mathbf{q} на такой решетке необходимо ввести четыре компонента волновой функции $\Psi_{\mathbf{q}}^{A1}$, $\Psi_{\mathbf{q}}^{B1}$, $\Psi_{\mathbf{q}}^{A2}$ и $\Psi_{\mathbf{q}}^{B2}$. Их удобно организовать в биспинор $\Psi_{\mathbf{q}}$ следующим образом:

$$\Psi_{\mathbf{q}} = (\Psi_{\mathbf{q}}^{A1}, \Psi_{\mathbf{q}}^{B1}, \Psi_{\mathbf{q}}^{A2}, \Psi_{\mathbf{q}}^{B2})^T. \quad (1)$$

Тогда уравнение Шредингера можно записать так:

$$H_{\mathbf{q}}\Psi_{\mathbf{q}} = \varepsilon_{\mathbf{q}}\Psi_{\mathbf{q}}, \quad (2)$$

где $\varepsilon_{\mathbf{q}}$ – собственная энергия, а матрица $H_{\mathbf{q}}$, задаваемая равенством

$$H_{\mathbf{q}} = \begin{pmatrix} 0 & -tf_{\mathbf{q}} & 0 & 0 \\ -tf_{\mathbf{q}}^* & 0 & -t_0 & 0 \\ 0 & -t_0 & 0 & -tf_{\mathbf{q}} \\ 0 & 0 & -tf_{\mathbf{q}}^* & 0 \end{pmatrix}, \quad (3)$$

играет роль гамильтониана для состояний с квазиимпульсом \mathbf{q} . В этом определении мы использовали следующие обозначения: $t = 2.57$ эВ – амплитуда перескока между атомами в одном слое, $t_0 = 0.36$ эВ – амплитуда перескока между слоями, функция $f_{\mathbf{q}}$ равна $f_{\mathbf{q}} = 1 + 2 \exp\left(\frac{3ia_0q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}a_0q_y}{2}\right)$, где квазиимпульс \mathbf{q} отсчитывается от центра зоны Бриллюэна. Значения $\varepsilon_{\mathbf{q}}$ даются хорошо известной формулой:

$$\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(1,\dots,4)} = \pm \frac{t_0}{2} \pm \sqrt{t^2|f_{\mathbf{q}}|^2 + \frac{t_0^2}{4}}. \quad (4)$$

Вблизи точек Дирака $K_D = \left(0, \frac{4\pi}{3\sqrt{3}a_0}\right)$ и $K'_D = \left(0, -\frac{4\pi}{3\sqrt{3}a_0}\right)$ энергетические зоны (4) выглядят так, как показано на рис. 2. Без внешнего воздействия АВ-графен находится в полуметаллическом состоянии: две нижние зоны полностью заполнены электронами, две верхние полностью пусты, энергия Ферми равна нулю $\varepsilon_F = 0$, а в точке Дирака происходит касание пустой и заполненной зоны.

Теперь учтем влияние магнитной подложки. Будем предполагать, что обменное зеемановское поле, индуцированное подложкой, действует на два слоя по-разному. А именно, уточним систему уравнений (2) следующим образом:

$$(H_{\mathbf{q}} + V_{\sigma})\Psi_{\mathbf{q}} = \varepsilon_{\mathbf{q}}\Psi_{\mathbf{q}}, \quad (5)$$

где матрица V_{σ} имеет вид:

$$V_{\sigma} = \text{diag}(\sigma h, \sigma h, \tilde{\sigma} \tilde{h}, \tilde{\sigma} \tilde{h}). \quad (6)$$

В этом выражении h и \tilde{h} – обменные зеемановские энергии в нижнем и верхнем слоях соответственно. Ниже будем всегда предполагать, что $0 \leq \tilde{h} \leq h$, т.е. обменное поле в слое, непосредственно контактирующем с подложкой, всегда сильнее, чем поле в слое, с подложкой не соприкасающемся. (Мы будем указывать величины обменных полей как в эВ, так

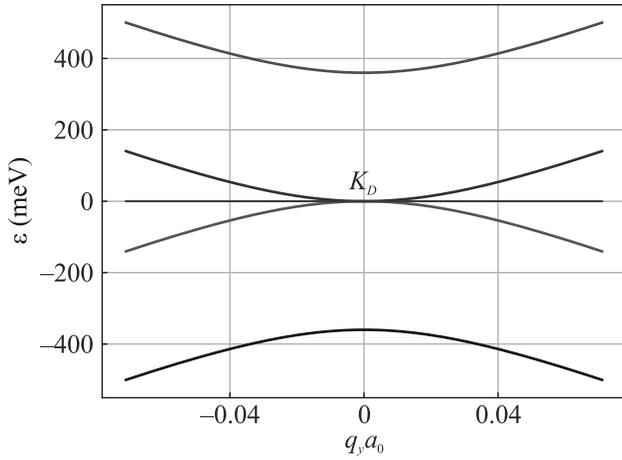


Рис. 2. (Цветной онлайн) Дисперсия АВ-графена (срез $q_x = 0$, q_y меняется в узком диапазоне вблизи точки Дирака K_D , точка Дирака соответствует $q_x = q_y = 0$). Горизонтальной линией обозначен уровень Ферми $\varepsilon_F = 0$

и в тесла; переход между этими единицами задается магнетоном Бора $\mu_B = 5.79 \cdot 10^{-5}$ эВ/Тл). Символ σ обозначает проекцию спина электрона на вектор намагниченности подложки (σ принимает значения ± 1).

Для системы (5) восемь ее собственных энергий (по четыре на одну проекцию спина) можно записать единым равенством:

$$\varepsilon_{\mathbf{q}\sigma}^{(1,\dots,8)} = \frac{\sigma(h + \tilde{h})}{2} + \chi \left[\frac{(h - \tilde{h})^2}{4} + |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 + \frac{t_0^2}{2} + \right. \quad (7)$$

$$\left. + \kappa \sqrt{(h - \tilde{h})^2 |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 + |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 t_0^2 + \frac{t_0^4}{4}} \right]^{1/2}.$$

Здесь мы ввели, в дополнение к $\sigma = \pm 1$, еще два бинарных индекса: $\chi = \pm 1$ и $\kappa = \pm 1$. В физически оправданном пределе $h \ll t_0 \ll t$ энергия электронных состояний с $\chi = +1$ ($\chi = -1$) положительна (отрицательна), за возможным исключением малых окрестностей точек Дирака.

Условимся, что двум зонам, лежащим ближе всего к уровню Ферми, будут присвоены номера 4 и 5. Договоримся также, что собственным энергиям $\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(4)}$ для зоны 4 ($\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(5)}$ для зоны 5) соответствует выбор значений параметров $\sigma = +1$, $\chi = -1$, $\kappa = -1$ ($\sigma = -1$, $\chi = +1$, $\kappa = -1$) в ур. (7). Ниже нам также понадобятся зоны 3 ($\sigma = -1$, $\chi = -1$, $\kappa = -1$) и 6 ($\sigma = +1$, $\chi = +1$, $\kappa = -1$).

Оставшиеся зоны 1, 2, 7 и 8 соответствуют $\kappa = +1$. Легко проверить, что $\min_{\mathbf{q}} |\varepsilon_{\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{q}}^{(1,2,7,8)}| \sim t_0$. Из-за столь значительного расстояния до уровня Ферми такие зоны нами рассматриваться не будут.

Уравнение (7) позволяет установить, что

$$\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(4)} = -\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(5)}, \quad \varepsilon_{\mathbf{q}}^{(3)} = -\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(6)}. \quad (8)$$

Отсюда следует, что уровень Ферми АВ-графена равен нулю, $\varepsilon_F = 0$. Легко проверить, что зоны 3 и 6 не доходят до ε_F , в то время как зоны 4 и 5 перекрываются возле точек Дирака, см. рис. 3. Это перекрытие приводит к перетеканию носителей из одной зоны в другую, что сопровождается образованием электронного и дырочного листов поверхности Ферми. Иными словами, при ненулевом обменном поле \tilde{h} двухслойный АВ-графен переходит в металлическое состояние даже без легирования.

Поверхность Ферми, возникшую в результате перетекания носителей из зоны 4 в зону 5, следует искать, решая уравнение $\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(4)} = \varepsilon_{\mathbf{q}}^{(5)} = 0$. Это условие задает в пространстве квазиимпульсов двухсвязную поверхность Ферми \mathbf{q}_F . В силу симметрии (8), электронный и дырочный листы поверхности Ферми совпадают друг с другом, т.е. наблюдается нестинг.

Пусть δ – площадь области, ограничиваемой \mathbf{q}_F . Так как эта площадь мала, то каждая компонента связности хорошо аппроксимируется окружностью малого радиуса q_F . Центр одной такой окружности совпадает с точкой Дирака K_D , центр второй окружности – с точкой Дирака K'_D . Малость импульса Ферми q_F позволяет воспользоваться следующим приближением $|f_{\mathbf{q}_F}| \approx 3a_0 q_F / 2$. Сначала рассмотрим ситуацию, когда $\tilde{h} = 0$. В этом пределе получаем:

$$q_F \approx \frac{2h}{3a_0 t}. \quad (9)$$

Однако даже небольшие \tilde{h} делают эту формулу неверной. Действительно, несложно показать, что в режиме $h \gg \tilde{h} \gg \frac{h^3}{t_0^3}$ выражение для радиуса поверхности Ферми будет принимать вид:

$$q_F \approx \frac{2}{3a_0 t} \sqrt{t_0 \sqrt{h\tilde{h}}}. \quad (10)$$

Сравнивая эту формулу для q_F с ур. (9), мы обнаруживаем, что даже маленькое \tilde{h} сильно меняет радиус Ферми.

Образовавшаяся поверхность Ферми является полуметаллической в том смысле, что из четырех типов носителей (электроны с двумя спиновыми поляризациями и дырки с двумя спиновыми поляризациями) только два типа (электроны со спином $\sigma = -1$ и дырки со спином $\sigma = +1$) достигают уровня Ферми.

Перераспределение носителей между зонами приводит к спиновой поляризации графенового образца. Так как формирующие поверхность Ферми зоны 4 и 5 характеризуются противоположными значениями σ , следовательно, перетекание носителей из одной

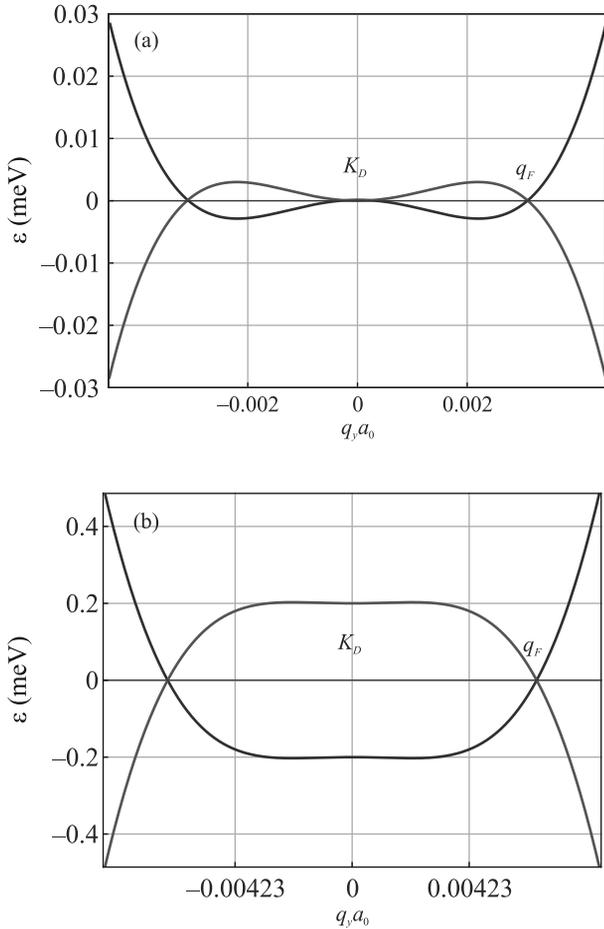


Рис. 3. (Цветной онлайн) Дисперсия АВ-графена на магнитной подложке (срез $q_x = 0$, q_y меняется в узком диапазоне вблизи точки Дирака K_D , точка Дирака соответствует $q_x = q_y = 0$). Графики построены при $h = 11.6$ мэВ (200 Тл). Энергия Ферми соответствует $\epsilon_F = 0$. Отмечен радиус Ферми q_F . Панель (а) представляет данные для $\tilde{h} = 0$. Непосредственно в точке Дирака сохраняется точка Ферми с касанием зон. Графики на панели (b) построены при $\tilde{h} = 0.2$ мэВ. Видно, что даже малое значение \tilde{h} резко увеличивает радиус Ферми q_F , а также глубину ферми-моря. Масштабы осей на панели (а) отличаются от масштабов на панели (b)

зоны в другую сопровождается перевертанием спинов перетекших носителей. Количество перетекших носителей (на одну элементарную ячейку) равно δ/S_{BZ} , где $\delta = 2\pi q_F^2$, а $S_{BZ} = 8\pi^2/(3\sqrt{3}a_0^2)$ – площадь зоны Бриллюэна для графена. Поскольку каждый перетекший электрон вносит два кванта $\hbar/2$ в полный спин системы, то, рассматривая приближение $\tilde{h} = 0$, для удельной спиновой поляризации находим:

$$m = \frac{\hbar h^2}{\sqrt{3}\pi t^2}. \quad (11)$$

В случае же, когда $h \gg \tilde{h} \gg \frac{h^3}{t_0^3}$, имеем:

$$m = \frac{\hbar t_0 \sqrt{h\tilde{h}}}{\sqrt{3}\pi t^2}, \quad (12)$$

где была использована формула (10). Мы видим, что конечное \tilde{h} приводит к резкому усилению намагниченности.

Обобщим нашу модель далее, учтя неэквивалентность слоев, вызванную контактом с подложкой и воздействием внешнего электростатического поля. Будем считать, что подложка создает конечную разность потенциальных энергий ϕ_0 между слоями. Кроме этого, предположим, что затворные электроды могут создавать электрическое поле E вдоль нормали к плоскости образца. Чтобы учесть эти воздействия, модифицируем матрицу V_σ в выражении (5):

$$V_\sigma = \text{diag} \left(\sigma h + \frac{\phi}{2}, \sigma h + \frac{\phi}{2}, \sigma \tilde{h} - \frac{\phi}{2}, \sigma \tilde{h} - \frac{\phi}{2} \right), \quad (13)$$

где

$$\phi = \phi_0 - eEd = -eE^*d. \quad (14)$$

В последнем равенстве мы ввели эффективное поле $E^* = E - \phi_0/(ed)$, учитывающее совокупное влияние подложки и электрического поля E на электроны системы. Предложенная модель обобщает работу [10].

При конечных h , \tilde{h} и ϕ зонная структура описывается следующей формулой:

$$\begin{aligned} \epsilon_{\mathbf{q}}^{(1,\dots,8)} = & \frac{\sigma(h + \tilde{h})}{2} + \quad (15) \\ & + \chi \left[\frac{(\phi + \sigma(h - \tilde{h}))^2}{4} + |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 + \frac{t_0^2}{2} + \right. \\ & \left. + \kappa \sqrt{(\phi + \sigma(h - \tilde{h}))^2 |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 + |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 t_0^2 + \frac{t_0^4}{4}} \right]^{1/2}. \end{aligned}$$

Это равенство, обобщающее ур. (7), будет использовано ниже для изучения влияния внешних полей на свойства системы.

3. Переход металл-диэлектрик. Хорошо известно, что нормальное электрическое поле переводит АВ-графен в диэлектрическое состояние. С другой стороны, мы видели, что в пределе $\phi = 0$ двухслойный АВ-графен на ферромагнитной подложке является металлом. В связи с этим возникает вопрос о нахождении минимального значения ϕ , при котором в спектре исследуемой системы открывается щель. Достаточно простой анализ показывает, что система является металлом, когда зоны 4 и 5

$$\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(4,5)} = \pm \frac{h + \tilde{h}}{2} \mp \left[\frac{(\phi \pm (h - \tilde{h}))^2}{4} + |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 + \frac{t_0^2}{2} - \sqrt{(\phi \pm (h - \tilde{h}))^2 |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 + |f_{\mathbf{q}}|^2 t^2 t_0^2 + \frac{t_0^4}{4}} \right]^{1/2} \quad (16)$$

перекрываются по энергии. В противном случае двухслойный графен – диэлектрик. Таким образом, переход металл-диэлектрик происходит при таком значении ϕ , при котором максимум зоны 4

$$\varepsilon_{\max}^{(4)} = \frac{h + \tilde{h}}{2} - \frac{t_0(h - \tilde{h} + \phi)}{2\sqrt{(h - \tilde{h} + \phi)^2 + t_0^2}} \quad (17)$$

лежит на одном уровне с минимумом зоны 5

$$\varepsilon_{\min}^{(5)} = -\frac{h + \tilde{h}}{2} + \frac{t_0|h - \tilde{h} - \phi|}{2\sqrt{(h - \tilde{h} - \phi)^2 + t_0^2}} \quad (18)$$

Приравняв $\varepsilon_{\max}^{(4)}$ и $\varepsilon_{\min}^{(5)}$, несложно продемонстрировать, что исследуемая система является диэлектриком (полупроводником), когда $\phi > \phi_c$, при этом в режиме $h, \phi \ll t_0$ критическое значение ϕ_c дается формулой

$$\phi_c \approx h + \tilde{h} + \frac{2h^3}{t_0^2} + \frac{2\tilde{h}^3}{t_0^2} \quad (19)$$

Анализируя ур. (19), можно заключить, что при характерных обменных полях величиной в сотни тесла кубические поправки к величине ϕ_c дают пренебрежимо малый вклад.

Из уравнений (17) и (18) выводим величину диэлектрической щели $\Delta = \varepsilon_{\min}^{(5)} - \varepsilon_{\max}^{(4)}$:

$$\Delta = -h - \tilde{h} + \frac{t_0(\phi - h + \tilde{h})}{2\sqrt{(\phi - h + \tilde{h})^2 + t_0^2}} + \frac{t_0(\phi + h - \tilde{h})}{2\sqrt{(\phi + h - \tilde{h})^2 + t_0^2}}, \quad (20)$$

см. рис. 4а. В пределе очень больших полей $\phi \gg t_0$ мы получаем из ур. (20), что $\Delta \approx t_0 - h - \tilde{h}$. Эту асимптотику хорошо видно на рис. 5, где представлены зависимости $\Delta = \Delta(\phi)$ для различных величин зеемановского поля h и $\tilde{h} = 0$. Стоит, однако, помнить, что создать на эксперименте столь значительные диэлектрические щели будет весьма затруднительно из-за возможного электрического пробоя гетероструктуры.

Отметим также, что спиновая поляризация диэлектрической фазы всегда нулевая, $m = 0$: из-за отсутствия поверхности Ферми перераспределение носителей между зонами с противоположными значениями σ не происходит, и количество электронов со

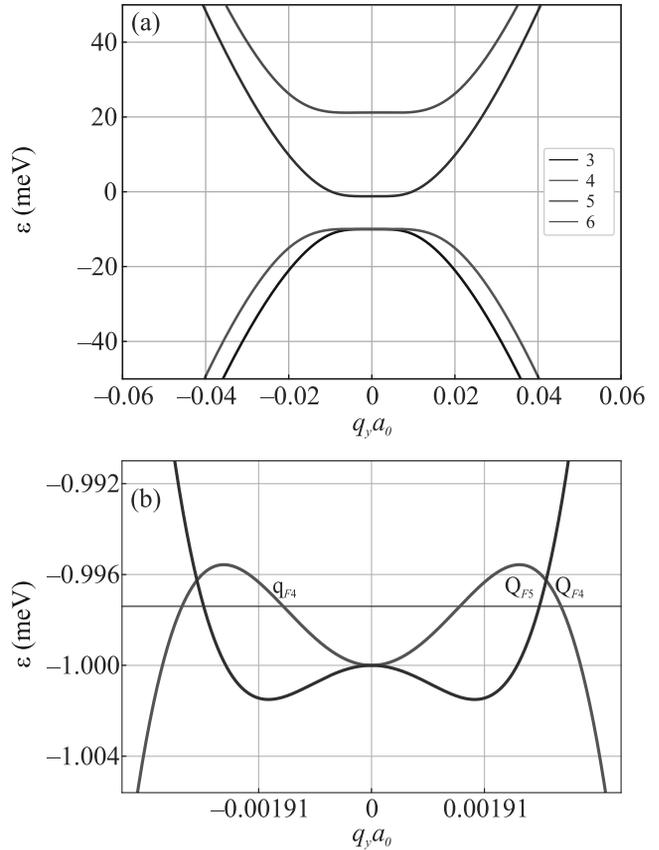


Рис. 4. (Цветной онлайн) Дисперсия АВ-графена на магнитной подложке во внешнем электрическом поле вблизи точки Дирака K_D (срез $q_x = 0$, q_y меняется в узком диапазоне вблизи точки Дирака K_D , точка Дирака соответствует $q_x = q_y = 0$). Графики построены при $\tilde{h} = 0$, $h = 11.2$ мэВ (190 Тл), так что $\phi_c = 11.22$ мэВ. (а) – Диэлектрическая фаза, $\phi = 20$ мэВ. В спектре явно видна щель, отделяющая валентные зоны 3 и 4 от зоны проводимости 5. (б) – Металлическая фаза, $\phi = 2$ мэВ. Зона 4 (зона 5) показана красной (синей) линией. Зоны 3 и 6 выходят за рамки представленного окна. Уровень Ферми отмечен горизонтальной прямой. Точки пересечения зон с уровнем Ферми соответствуют поверхности Ферми. Импульсы Ферми отмечены как Q_{F4} , Q_{F5} и q_{F4} . Масштабы осей на панели (а) отличаются от масштабов на панели (б)

спином по полю h строго равно количеству электронов со спином против поля.

Теперь обсудим область $\phi < \phi_c$, в которой наша система является металлом. Типичный металлический спектр показан на рис. 4б. Ранее, в части 2, мы обсуждали характеристики металлического состояния для случая, когда в системе отсутствует эффективное поле E^* . В конечных h и ϕ симметрия (8) более не верна, поэтому мы уже не можем зафиксировать уровень Ферми $\varepsilon_F = 0$. Необходимо рассматри-

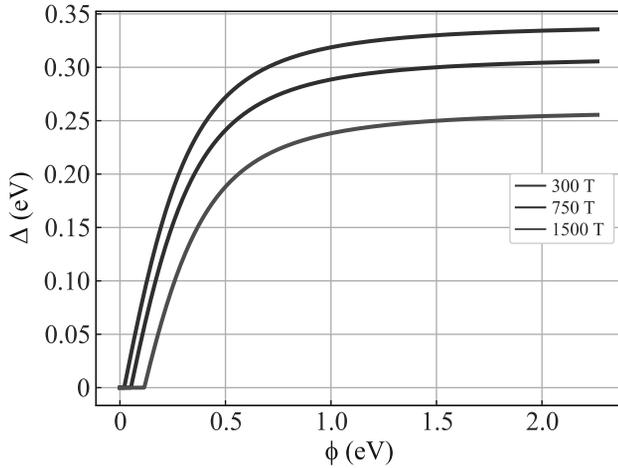


Рис. 5. (Цветной онлайн) Щель $\Delta = \Delta(\phi)$ при различных значениях обменного поля h и $\tilde{h} = 0$. В металлической фазе ($\phi < \phi_c$) щель равна нулю. Из графиков видно, что критическое значение ϕ_c растет с ростом h , что согласуется с ур. (19)

вать многокомпонентную поверхность Ферми, определяемую стандартным условием: $\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(4)} = \varepsilon_{\mathbf{q}}^{(5)} = \varepsilon_{\mathbf{F}}$. Для зоны 4 при положительном ϕ данные уравнения задают две концентрические окружности с центром в точке K_D . Обозначим радиусы этих окружностей Q_{F4} и Q_{F4}' , $Q_{F4}' < Q_{F4}$. То же самое происходит и вокруг точки K_D' . Зона 5 дает еще по одной окружности на точку Дирака. Их радиус обозначим Q_{F5} . Заметим, что при $\phi = 0$, радиусы Q_{F5} и Q_{F4} совпадают друг с другом и с q_F , определенным ур. (9), а радиус Q_{F4}' обращается в нуль. Возникшая поверхность Ферми должна удовлетворять следующему условию:

$$Q_{F4}^2 - Q_{F4}'^2 = Q_{F5}^2. \quad (21)$$

Иными словами, число состояний, занятых электронами в зоне 4, равно числу состояний, свободных от электронов в зоне 5. В пределе $\tilde{h} = 0$ и $\phi \ll h \ll t_0$ данную задачу можно решить аналитически:

$$\varepsilon_{\mathbf{F}} \approx -\frac{\phi}{2} + \frac{4h^2\phi}{3t_0^2}. \quad (22)$$

Когда $\phi \rightarrow 0$, выведенная формула показывает, что $\varepsilon_{\mathbf{F}}$ обращается в нуль, как и должно быть в случае без эффективного поля, см. часть 2. Также заметим, что во втором слагаемом присутствует величина $h^2/t_0^2 \ll 1$. В типичной физической ситуации это отношение мало. Например, при $h = 200$ Тл второе слагаемое является на три значащих порядка меньше, чем первое.

4. Сравнение с компьютерным моделированием. Чтобы продемонстрировать возможности на-

шего подхода, мы сравним наши аналитические расчеты с результатами, полученными численно [9] в рамках метода функционала плотности. Следуя работе [9], мы определили “расщепление” валентной зоны λ^{VB} и “расщепление” зоны проводимости λ^{CB} следующим образом:

$$\begin{aligned} \lambda^{VB} &= \left[\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(4)} - \varepsilon_{\mathbf{q}}^{(3)} \right]_{\mathbf{q}=0} = \\ &= h + \tilde{h} - \frac{|\phi + h - \tilde{h}|}{2} + \frac{|\phi - h + \tilde{h}|}{2}, \end{aligned} \quad (23)$$

$$\begin{aligned} \lambda^{CB} &= \left[\varepsilon_{\mathbf{q}}^{(6)} - \varepsilon_{\mathbf{q}}^{(5)} \right]_{\mathbf{q}=0} = \\ &= h + \tilde{h} + \frac{|\phi + h - \tilde{h}|}{2} - \frac{|\phi - h + \tilde{h}|}{2}. \end{aligned} \quad (24)$$

Эти два параметра характеризуют “тонкую” структуру спектра и легко вычисляются в рамках нашей модели.

“Расщепления” λ^{VB} и λ^{CB} интересны нам тем, что рис. 4b статьи [9] показывает, как эти величины (а также и щель Δ) зависят от внешнего электрического поля E_{ext} , создаваемого затворными электродами. Мы тоже можем построить λ^{VB} , λ^{CB} и Δ в зависимости от E_{ext} . Для этого необходимо учесть, что поле E_{ext} , порожденное внешним источником (затворными электродами), ослабляется в межслоевом пространстве АВ-графена из-за перераспределения электронной плотности между слоями. С этой целью мы ввели диэлектрическую проницаемость двухслойного АВ-графена ϵ и записали связь между ϕ и E_{ext} следующим образом:

$$\phi = \phi_0 - eE_{\text{ext}}d/\epsilon, \quad (25)$$

что соответствует подстановке $E = E_{\text{ext}}/\epsilon$ в ур. (14). Данные на верхней панели рис. 4 в работе [11] указывают на то, что $\epsilon \sim 3.4$. Похожие теоретические оценки можно найти и в работе [12].

Чтобы установить оптимальные значения параметров нашей модели, мы проанализировали рис. 3 и 4 в [9]. На рисунке 3 обращает на себя внимание то обстоятельство, что глубоко в диэлектрической фазе электронные зоны, чьи волновые функции преимущественно локализованные на верхнем слое, практически вырождены. Такое явление возможно в пределе очень слабого обменного поля \tilde{h} в верхнем слое. Поэтому мы выберем $\tilde{h} = 0$. Это позволяет нам воспроизводить приближенное вырождение соответствующих зон в диэлектрической фазе, см. наш рис. 4a.

Мы также видим на рис. 4b в [9], что расщепления λ^{VB} и λ^{CB} в диэлектрической фазе выходят на “полку” примерно при 8 мЭВ. Проанализировав ур. (24)

и (23), несложно убедиться, что это соответствует $h = 4$ мэВ при $\tilde{h} = 0$. Выбор $\epsilon\phi_0/(ed) = -0.38$ мэВ обеспечивает правильное положение металлической фазы на оси E_{ext} . И наконец, $\epsilon = 4$ выбирается так, чтобы наклон графика функции $\Delta = \Delta(E_{\text{ext}})$ был таким же, как и на рис. 4b в [9].

Соответствующие графики представлены на рис. 6. Построенные нами кривые хорошо согласуются как по характерным масштабам, так и по качественному поведению с графиками на рис. 4b в [9]. Иными словами, подбор всего лишь четырех подгоночных величин с прозрачным физическим смыслом позволяет воспроизводить зависимости, полученные в результате “тяжелого” численного расчета.

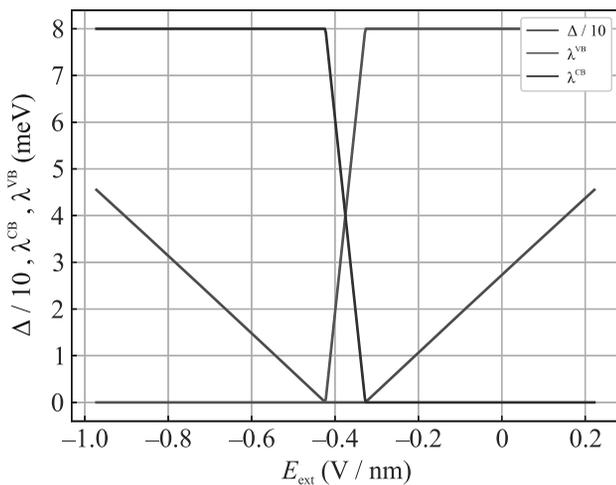


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость величины $\Delta/10$ (зеленая линия), а также величин спинового расщепления зоны проводимости (синяя линия) и валентной зоны (красная линия), от приложенного внешнего электрического поля E_{ext} . Графики построены для $\tilde{h} = 0$, $h = 4$ мэВ, $\epsilon\phi_0/(ed) = -0.38$ В/нм и $\epsilon = 4$. Заметим, что ненулевое ϕ_0 сдвигает металлическую фазу в область $E \sim \epsilon\phi_0/(ed)$. Представленные графики согласуются с рис. 4b в работе [9]

5. Обсуждение и заключение. Наверное, самая интересная особенность рассматриваемой гетероструктуры – это возможность управлять ее проводящими свойствами с помощью затворного напряжения. Возникновение запрещенной зоны при наложении на образец АВ-графена перпендикулярного электрического поля – это известный теоретический результат, описанный в работах [13, 14], подтвержденный на эксперименте [11, 15–17]. Он обобщен нами на случай магнитной подложки. Мы увидели, что магнетизм подложки неожиданным образом модифицирует зонную структуру АВ-графена. И действительно, вместо точек Ферми с параболиче-

ским касанием зон, разрушающихся при возникновении произвольно малой асимметрии между слоями ϕ , конечное h индуцирует спин-поляризованный металл при малых ϕ и диэлектрик – при больших. Наша простая модель позволяет рассчитать точку перехода металл-диэлектрик, а также исследовать свойства фаз по обе стороны перехода.

Расчеты показывают, что образец АВ-графена имеет конечную намагниченность m в проводящей фазе. При увеличении ϕ система входит в диэлектрическое состояние с нулевым m . Иными словами, появляется возможность управления магнитным свойством гетероструктуры с помощью немагнитного воздействия.

При нулевом ϕ исследуемая система демонстрирует нестинг – совпадение электронного и дырочного листов поверхности Ферми. Эта особенность зонного строения подразумевает, что при достаточно низких температурах электронная жидкость будет неустойчива по отношению к спонтанному несверхпроводящему упорядочению [18]. Поскольку отклонение от $\phi = 0$ разрушает нестинг, изменяя затворный потенциал, можно контролировать упорядочение.

Также проводящая фаза обладает полуметаллическими свойствами: спины состояний на электронном (дырочном) листе поверхности Ферми идеально поляризованы против поля h (по полю h). Эту особенность зонной структуры можно использовать в экспериментах по спиновому транспорту.

Щель в диэлектрической фазе может быть весьма значительной: согласно нашей оценке $\Delta \sim t_0 - h - \tilde{h}$, она способна достигать величин в несколько сотен мэВ. Однако большие значения щели могут потребовать больших значений приложенного электрического поля, что увеличивает риск электрического пробою всей системы.

Также, в пределе большой щели, когда $h \ll \phi \lesssim t_0$, выраженность именно магнитных явлений может теряться на фоне чисто электростатических. Представляется, что режим $\phi \sim h$ более интересен, так как он близок к переходу металл-диэлектрик. В такой ситуации нужно помнить о следующем. Для того, чтобы обсуждаемая физика стала легкодоступной для наблюдения и/или практического применения, требуются подложки, способные создавать значительные h , сравнимые или даже превосходящие энергию, соответствующую комнатной температуре $T_r = 300$ К = 26 мэВ. В противном случае использование криогенных технологий становится неизбежностью.

В заключении хотелось бы напомнить основные тезисы нашей работы. Мы аналитически исследо-

вали двухслойный АВ-графена на диэлектрической ферромагнитной подложке. Гамильтониан рассматриваемой модели включает обменное зеемановское и электростатическое поле, а также учитывает асимметрию слоев, вызванную контактом с подложкой. В низком эффективном поле АВ-графен – металл, для которого мы нашли поверхность Ферми. Она полуметаллическая, и может демонстрировать нестинг. Сам образец обладает конечной спиновой поляризацией. При превышении критического значения электрического поля в спектре графена открывается щель. В возникшем диэлектрическом состоянии полная спиновая поляризация обращается в нуль. Наши расчеты согласуются с результатами компьютерного моделирования по методу функционала плотности. Возможность управления щелью в сочетании с нетривиальными магнитными свойствами делает обсуждаемую гетероструктуру интересной для приложений в спинтронике.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 22-22-00464, <https://rscf.ru/project/22-22-00464/>.

1. W. Han, R. K. Kawakami, M. Gmitra, and J. Fabian, *Nature Nanotechnology*, **9**, 794 (2014).
2. S. Roche, J. Åkerman, B. Beschoten et al. (Collaboration), *2D Mater.* **2**, 030202 (2015).
3. S. S. Gregersen, S. R. Power, and A.-P. Jauho, *Phys. Rev. B* **95**, 121406(R) (2017).
4. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsova, *Science* **306**, 5696 (2004).
5. I. S. Sokolov, D. V. Averyanov, O. E. Parfenov, I. A. Karateev, A. N. Taldenkov, A. M. Tokmachev, and V. G. Storchak, *Mater. Horiz.* **7**, 1372 (2020).
6. A. V. Rozhkov, A. O. Sboychakov, A. L. Rakhmanov, and F. Nori, *Phys. Rep.* **648**, 1 (2016).
7. P. Wei, S. Lee, F. Lemaitre, L. Pinel, D. Cutaia, W. Cha, F. Katmis, Y. Zhu, D. Heiman, J. Hone, J. S. Moodera, and C.-T. Chen, *Nat. Mater.* **15**, 711 (2016).
8. K. Zollner, M. Gmitra, T. Frank, and J. Fabian, *Phys. Rev. B* **94**, 155441 (2016).
9. K. Zollner, M. Gmitra, and J. Fabian, *New J. Phys.* **20**, 073007 (2016).
10. P. Michetti, P. Recher, and G. Iannaccone, *Nano Lett.* **10**, 4463 (2010).
11. A. B. Kuzmenko, I. Crassee, D. van der Marel, P. Blake, and K. S. Novoselov, *Phys. Rev. B* **80**, 165406 (2009).
12. H. Min, B. Sahu, S. K. Banerjee, and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. B* **75**, 155115 (2007).
13. E. McCann, *Phys. Rev. B* **74**, 161403(R) (2006).
14. E. McCann and V. I. Fal'ko, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 086805 (2006).
15. E. A. Henriksen and J. P. Eisenstein, *Phys. Rev. B* **82**, 041412(R) (2010).
16. A. B. Kuzmenko, E. van Heumen, D. van der Marel, P. Lerch, P. Blake, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, *Phys. Rev. B* **79**, 115441 (2009).
17. E. V. Castro, K. S. Novoselov, S. V. Morozov, N. M. R. Peres, J. M. B. Lopes dos Santos, J. Nilsson, F. Guinea, A. K. Geim, and A. H. Castro Neto, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 216802 (2007).
18. Д. Н. Дресвянкин, А. В. Рожков, А. О. Сбойчаков, *Письма в ЖЭТФ* **114**(12), 824 (2021).

Природа диэлектрической релаксации в монокристаллах $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$

М. В. Таланов⁺¹⁾, Е. С. Жукова⁺, Б. М. Некрасов⁺, М. Савинов^{*}, В. И. Козлов^{×°}, Б. П. Горшунов⁺,
А. А. Буш[×]

⁺Лаборатория терагерцовой спектроскопии, Центр фотоники и двумерных материалов,
Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

^{*}Institute of Physics of the Czech Academy of Sciences, 18221 Prague, Czech Republic

[×]Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“МИРЭА – Российский технологический университет”, 119454 Москва, Россия

[°]Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН, 119334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 23 сентября 2023 г.

После переработки 5 октября 2023 г.

Принята к публикации 6 октября 2023 г.

Исследованы диэлектрические спектры монокристаллов SrTiO_3 и $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ в области частот 10–3000 cm^{-1} и в диапазоне температур 5–297 К с использованием методов терагерцовой спектроскопии временного разрешения и инфракрасной Фурье-спектроскопии. Сравнительный анализ экспериментальных результатов позволил зафиксировать значительное размытие линий поглощения, соответствующих фоновым модам Слетера и Ласта, и неизменность параметров моды Акса при замещении Ti на Mn (2 ат. %). Данный эффект связывается с возрастанием структурного беспорядка в катионной подсистеме (B-подрешетке) кристалла SrTiO_3 . Установлено, что допирование ионами Mn приводит к понижению температуры антиферродисторсионного фазового перехода на ~ 20 К, но практически не влияет на характер температурного поведения параметров сегнетоэлектрической мягкой моды при температурах ~ 60 –297 К. Обнаружено, что для адекватного модельного описания дисперсии диэлектрической проницаемости $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ в терагерцовой области частот необходим учет дополнительного возбуждения с частотой, лежащей ниже частоты сегнетоэлектрической мягкой моды. Из двух активно обсуждаемых в литературе механизмов радиочастотной релаксации в $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ – прыжкового и поляронного – полученные результаты свидетельствуют в пользу того, что механизм формирования диэлектрической релаксации в кристалле $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ связан с температурно-активированными перескоками атомов марганца между смещенными (нецентральными) кристаллографическими позициями.

DOI: 10.31857/S1234567823210115, EDN: ptimcv

Введение. Титанат стронция SrTiO_3 относится к материалам-архетипам, всестороннее изучение которых привело к взрывному росту научного интереса к богатому спектру явлений, включая квантовые, наблюдаемых в этих материалах, и к развитию сразу нескольких новых направлений фундаментальных и прикладных исследований. Прежде всего отметим, что именно при исследовании монокристаллов SrTiO_3 впервые в истории была экспериментально обнаружена сегнетоэлектрическая мода [1, 2]. Температурное поведение ее параметров следовало предсказанию динамической теории сегнетоэлектричества Гинзбурга–Андерсона–Кохрана [3–5], согласно которой фазовый переход обусловлен конденсацией (смягчением) некоторого критического колебания (мягкой моды), частота которого ω_{SM} стремится к

нулю при приближении к точке фазового перехода (T_C – температура Кюри) согласно закону [3–5]:

$$\nu_{\text{SM}}^2 \sim A \cdot (T - T_C), \quad (1)$$

где A – константа Кохрана. В дальнейшем развитие этой теории послужило прогрессу в понимании физики фазовых переходов типа смещения в кристаллах различных классов, в том числе и не относящихся к сегнетоэлектрикам [6], а концепция мягкой моды стала активно использоваться при интерпретации экспериментальных результатов, полученных методами терагерцовой и инфракрасной спектроскопии, комбинационного рассеяния света, а также неупругого рассеяния нейтронов [7–10].

При охлаждении кристалла SrTiO_3 ниже некоторой температуры T_1 наблюдается отклонение в температурном поведении квадрата частоты мягкой полярной моды от линейного закона Кохрана

¹⁾e-mail: mvtalanov@gmail.com

(с $T_C \approx 35$ К), в результате чего она остается устойчивой вплоть до субгелиевых температур, и фазовый переход не происходит. При этом температурная зависимость низкочастотной диэлектрической проницаемости ϵ , возрастая в соответствии с законом Кюри–Вейсса при охлаждении от комнатных температур, претерпевает насыщение [11], достигая аномально высоких значений $\epsilon \sim 10^4$ при минимальных диэлектрических потерях (отсутствие дисперсии) в микроволновом диапазоне частот [12]. Последнее обстоятельство обуславливает неослабевающий практический интерес к кристаллам, пленкам, керамикам и гетероструктурам на основе SrTiO₃ как к активным компонентам перестраиваемых сверхвысокочастотных (СВЧ) устройств [13, 14].

За счет специфического температурного поведения параметров мягкой полярной моды соединения SrTiO₃, наряду с другими кристаллами со структурой типа перовскита – KTaO₃ и CaTiO₃, было отнесено к классу зарождающихся (*incipient*) или виртуальных сегнетоэлектриков. Особое фундаментальное значение представляет вопрос о природе подавления сегнетоэлектрической неустойчивости при низких температурах, которая обычно связывается с влиянием квантовых флуктуаций на колебания атомов кристаллической решетки [15], что послужило основанием для использования в отношении SrTiO₃ термина “квантовый параэлектрик” [16]. Согласно гипотезе Мюллера, при охлаждении SrTiO₃ ниже температуры 37 К возможен переход в фазу с когерентным квантовым состоянием, подобную состоянию сверхтекучего гелия [17], что в дальнейшем породило многочисленные дискуссии [15]. Несмотря на то, что эта гипотеза, по всей видимости, не нашла явных экспериментальных подтверждений, природа низкотемпературного состояния SrTiO₃ вызывает неослабевающий интерес исследователей. В частности, Роули с соавторами была предложена концепция квантовой критичности для материалов, находящихся в пограничном состоянии вблизи квантовой критической точки на фазовых диаграммах с эффективной размерностью не ниже четырех [18]. Согласно этой концепции, температурное поведение обратной диэлектрической проницаемости кристалла SrTiO₃ при $T < 50$ К в так называемом квантовом режиме может быть описано соотношением $1/\epsilon \sim T^2$, отличным от обычной зависимости Кюри–Вейсса $1/\epsilon \sim T^{-1}$, и не требующим подгоночных параметров [18]. Отметим, что с ролью критических флуктуаций параметров полярной мягкой моды связывается повышение температуры перехода в сверхпроводящее состояние в системах, находящихся вблизи

квантового сегнетоэлектрического перехода, например, в кристаллах SrTiO₃ с частичным замещением Sr на Ca или O¹⁶ на O¹⁸ [19–21]. Идея о возможности сосуществования в одном кристалле квантового критического поведения и в магнитной, и в сегнетоэлектрической подсистемах позволила выдвинуть концепцию квантового критического мультиферроика [22]. В качестве возможных систем – кандидатов в квантовые критические мультиферроики были предложены квантовые параэлектрики SrTiO₃ и KTaO₃, допированные атомами марганца (в обоих случаях рассматривалось замещение только в А-подрешетке) [23].

В структуре SrTiO₃ атомы Mn могут заселять как А- (замещение Sr на Mn), так и В- (замещение Ti на Mn) подрешетку, принимая различные валентные состояния в зависимости от химико-технологических режимов изготовления образцов [23, 24]. На основании результатов электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) [24, 25] и XAFS [26, 27] было показано, что при замещении в А-позиции ионы Mn²⁺ заселяют нецентральную позицию, смещенную вдоль направления $\langle 001 \rangle$ на 0.77 Å относительно Sr. Сопоставление параметров, полученных ЭПР и диэлектрической спектроскопией, позволило сделать вывод о том, что причиной низкочастотной релаксации при температурах $T \sim 20$ –60 К являются температурно-активированные прыжки ионов Mn²⁺ между симметрично эквивалентными смещенными позициями и связанные с этим динамические диполи [25, 28], что также согласуется с результатами *ab initio* молекулярно-динамического моделирования [24]. В случае с катионным замещением в В-позиции до недавнего времени никаких структурных предпосылок к нецентральному расположению атомов Mn не было обнаружено, а наблюдаемую диэлектрическую релаксацию связывают с поляронным механизмом [29, 30]. Тем не менее, как было отмечено Савиновым с соавторами [29], характер проявления диэлектрических аномалий и параметры релаксационных процессов в кристаллах с замещением как в А-, так и в В-подрешетках, очень близки, что может предполагать универсальный механизм их формирования. Кроме того, близкие значения параметров свойственны также и процессам, связанным с поляронным и прыжковым механизмами диэлектрической релаксации, что делает невозможным однозначное установление природы диэлектрических аномалий в SrTiO₃:Mn, основываясь только на данных диэлектрических измерений в радиочастотном диапазоне. Как результат, литературные данные и выводы относительно принципиального вопроса о ме-

ханизме диэлектрической релаксации в кристаллах SrTiO₃:Mn весьма противоречивы [23–30].

На основании прецизионных экспериментов по монокристалльной дифракции на кристаллах SrTiO₃, допированных 2 ат. % Mn, было показано, что атомы марганца смещены на 0.31 Å относительно центральной позиции Ti [31], что является весомым аргументом в пользу прыжковой модели диэлектрической релаксации. При такой интерпретации следует ожидать, что беспорядок смещений в В-позиции структуры перовскита, а также температурно-активированные прыжки атомов Mn по этим позициям, будут влиять на характеристики решеточных колебаний, располагающихся на более высоких терагерцовых (ТГц) и инфракрасных (ИК) частотах. Соответствующие исследования, которые позволили бы получить дополнительную (к результатам прецизионной монокристалльной дифракции) информацию относительно механизма формирования релаксационного возбуждения в кристаллах SrTiO₃:Mn, до настоящего времени не проводились. В связи с этим цель данной работы состояла в установлении природы радиочастотной диэлектрической релаксации в кристаллах SrTiO₃:Mn путем проведения первых сравнительных исследований динамики кристаллической решетки кристаллов SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn на основе измерения и анализа фоновых возбуждений в ТГц-ИК спектрах.

Методы получения и исследования образцов. Выращивание монокристаллов SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn (2 ат. %) проводили методом бестигельной зонной плавки с оптическим нагревом на установке УРН-2-ЗП, описанной в [32]. Материалом для зонной плавки служили предварительно синтезированные керамические цилиндрические стержни составов SrO · TiO₂ и 0.98SrO · TiO₂ · 0.01Mn₂O₃ диаметром 8 мм и длиной 90 мм. Зонную перекристаллизацию стержней проводили в воздушной атмосфере на предварительно выращенные зонной плавкой затравочные монокристаллы SrTiO₃ с линейной скоростью 10–15 мм/ч и скоростью вращения штоков 40–100 об./мин. В качестве исходных реактивов синтеза использовали реактивы SrCO₃ марки “ч.д.а.”, TiO₂ – “ос.ч.” и Mn₂O₃ – “ч.д.а.”. В результате получены монокристаллические цилиндрические булы до 50 мм длиной и до 8 мм в диаметре. Рентгендифракционные исследования монокристаллов и измельченных порошков подтвердили отсутствие примесных фаз и соответствие параметров кристаллической решетки известным литературным данным: 3.9066 Å и 3.9041 Å для

кристаллов SrTiO₃:Mn и SrTiO₃, соответственно (см. детали в [31]).

Для ТГц и ИК экспериментов были приготовлены образцы в виде плоско-параллельных пластинок с толщинами порядка 70–100 мкм. Измерения спектров комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon^*(\nu) = \varepsilon'(\nu) + i\varepsilon''(\nu)$ проводились с применением двух спектрометров. На терагерцовых частотах в интервале $\nu \approx 8\text{--}45\text{ см}^{-1}$ на импульсном ТГц спектрометре Menlo Tera K15 измерялись спектры комплексного (амплитуда и фаза) коэффициента пропускания, на основе которых рассчитывались спектры $\varepsilon'(\nu)$ и $\varepsilon''(\nu)$. В ИК области ($\nu \approx 40\text{--}5000\text{ см}^{-1}$) на Фурье-спектрометре Bruker Vertex 80V измерялись спектры коэффициентов отражения и пропускания, которые затем объединялись с соответствующими ТГц спектрами отражения и пропускания, рассчитанными по стандартным формулам Френеля на основе измеренных ТГц спектров $\varepsilon'(\nu)$ и $\varepsilon''(\nu)$. При комнатной температуре широкополосные ($\approx 5\text{--}5000\text{ см}^{-1}$) ТГц-ИК спектры $\varepsilon'(\nu)$ и $\varepsilon''(\nu)$ были получены путем одновременной обработки методом наименьших квадратов ТГц-ИК спектров отражения и пропускания, совместно с “напрямую” измеренными ТГц спектрами $\varepsilon'(\nu)$ и $\varepsilon''(\nu)$. Низкотемпературные спектры $\varepsilon'(\nu)$ и $\varepsilon''(\nu)$ были получены методом Крамерс–Крониг анализа спектров $R(\nu)$. Температурные ($\approx 5\text{--}297\text{ К}$) эксперименты выполнялись с использованием коммерческого и лабораторного криостатов с майларовыми окнами.

Результаты и обсуждение. Колебательное представление кристаллов со структурой типа перовскита и пространственной группой $Pm\bar{3}m$ представлено следующими типами колебаний (без учета акустических фононов):

$$\Gamma_{\text{vibr}} = 3F_{1u} + F_{2u}. \quad (2)$$

Колебание F_{2u} не связано с изменением дипольного момента и поэтому является неактивным в ИК спектрах (*silent* мода). Однако ниже температуры ($T_a \sim 105\text{ К}$) антиферродисторсионного фазового перехода $Pm\bar{3}m \rightarrow I4mcm$ эта мода расщепляется на две компоненты $B_{2u} + E_u$, из которых последняя является активной в ИК спектре и располагается на частоте $\nu_{E_u} \approx 263\text{ см}^{-1}$ [33]. Удвоение элементарной ячейки, вызванное этим фазовым переходом, приводит к свертыванию зоны Бриллюэна: R – точка в высокосимметричной фазе переходит в Г-точку в низкосимметричной фазе [34–36]. В результате еще один тип колебания R'_{25} “приходит” с границы зоны Бриллюэна и расщепляется на две компоненты A_{1u} и

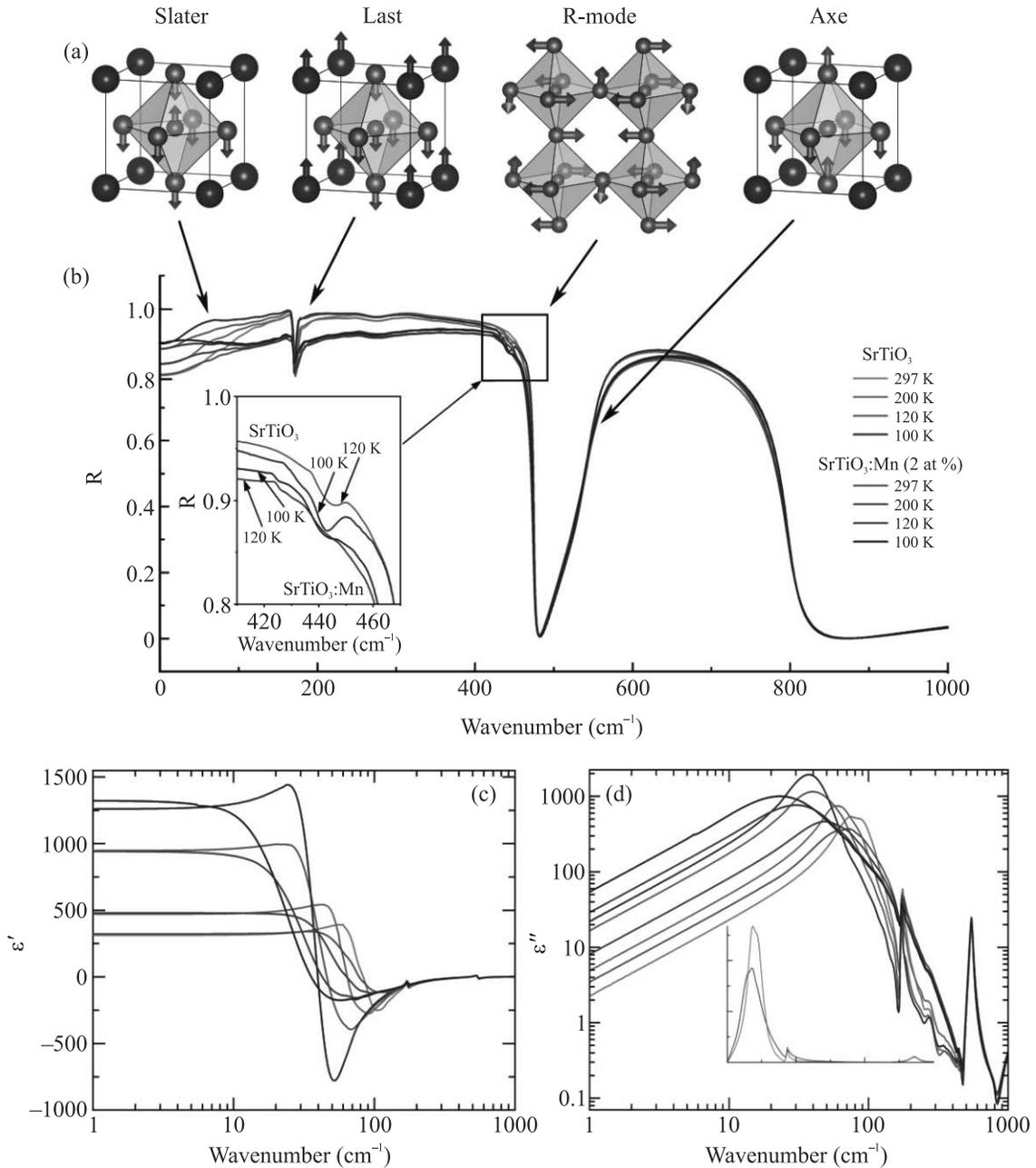


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Нормальные координаты, соответствующие симметрично-разрешенным в ИК спектрах кристаллов SrTiO₃ модам (ГО компонентам мод с симметрией F_{1u}). Появление R-моды возможно только при температурах ниже антиферродисторсионного перехода. Атомы Sr – синие (для R-моды не показаны), Ti – красные, O – зеленые. (б) – ТГц-ИК спектры коэффициента отражения кристаллов SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn (2 ат. %), измеренные при нескольких температурах. Рамками показаны спектральные особенности, соответствующие различным типам колебаний, как указано стрелками. Вставка: спектры коэффициента отражения в интервале 410–470 см⁻¹. Появление аномалии при 442 см⁻¹ соответствует ИК-активной компоненте R-моды, возникающей при антиферродисторсионном переходе. (с), (д) – Спектры действительной (с) и мнимой (д) частей диэлектрической проницаемости кристаллов SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn (2 ат. %), полученные методом Крамерс–Крониг анализа широкодиапазонных спектров отражения $R(\nu)$, как описано в тексте. Вставка на панели (д): спектры $\epsilon''(\nu)$ при температуре 297 K в линейном масштабе по обеим осям

E_u ; последняя активна в ИК спектре и имеет частоту $\nu_{E_u} = 442 \text{ см}^{-1}$ (при $T = 80 \text{ К}$).

Таким образом, в ИК спектрах кубического кристалла возможно появление только трех трехкратно вырожденных полярных мод с симметрией F_{1u} . Каждая из этих мод представлена поперечным (ТО) и продольным (ЛО) типами оптических колебаний. В случае SrTiO₃ наименьшую частоту имеет мода Слетера [37] с частотами $\nu_{\text{ТО}1} = 88 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_{\text{ЛО}1} = 175 \text{ см}^{-1}$ [38], которой соответствуют встречные смещения атомов Ti и O вдоль оси z (рис. 1а). Этот тип колебаний (ТО₁) выступает в качестве мягкой моды, динамика которой практически полностью описывает температурное поведение низкочастотной диэлектрической проницаемости согласно соотношению Лиддена–Сакса–Теллера и выражению (1). Моде Ластва [39] соответствуют встречные смещения атомов Sr и атомов в октаэдре TiO₆ вдоль оси z (рис. 1а). Параметры этой моды: $\nu_{\text{ТО}2} = 175 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_{\text{ЛО}2} = 266 \text{ см}^{-1}$ [38]. Моде Акса [40] характеризуется наибольшими частотами: $\nu_{\text{ТО}4} = 545 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_{\text{ЛО}4} = 795 \text{ см}^{-1}$ [38]; она описывает противофазные смещения экваториальных и апикальных атомов O (рис. 1а). Понижение симметрии при антиферродисторсионном переходе приводит к расщеплению каждой из F_{1u} -мод на две: $A_{2u} + E_u$, активные в ИК-спектрах.

На рисунке 1b приведены полученные ТГц-ИК спектры коэффициента отражения R и действительной ϵ' (рис. 1с) и мнимой ϵ'' (рис. 1d) частей диэлектрической проницаемости для кристаллов SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn, измеренные при температурах 297, 200, 120 и 100 К. Прежде всего отметим, что оба набора спектров характеризуются наличием не менее четырех резонансных возбуждений, известных из литературы [33, 34, 38]: три F_{1u} -моды и одна R-мода, которая проявляется при охлаждении вблизи $T_a \approx 105 \text{ К}$ (в чистом SrTiO₃). Также можно выделить особенность на частоте 263 см^{-1} , связанную с вкладом колебаний F_{2u} ниже температуры структурного перехода.

Сравнительный анализ ИК спектров SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn позволил выделить основные закономерности, связанные с допированием атомами Mn:

1. Частоты и характер температурного поведения всех мод остаются неизменными, при этом высокочастотные ($\nu > 500 \text{ см}^{-1}$) ветви совпадают.

2. В кристалле SrTiO₃:Mn наблюдается существенное размытие линий, соответствующих модам Слетера и Ластва.

3. Параметры мод Акса в обоих кристаллах остаются неизменными.

4. Обнаружено снижение на $\sim 20 \text{ К}$ температуры, при которой возникает R-мода (рис. 1b, вставка).

Обнаруженные спектральные особенности демонстрируют комплексную роль допирования атомами Mn в динамике решетки кристаллов SrTiO₃. Прежде всего отметим отсутствие каких-либо различий в ИК-спектрах обоих кристаллов при $\nu > 500 \text{ см}^{-1}$, в частности, при частотах, соответствующих плазмонам в кристаллах SrTiO₃:Nb [41, 42]. Это позволяет не рассматривать вклад свободных носителей заряда и обусловленное ими плазмон-фононное взаимодействие в формировании диэлектрических свойств исследуемых кристаллов. Особый интерес представляет факт существенного размытия линий, соответствующих модам Слетера и Ластва, при неизменности параметров моды Акса, при сравнении SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn во всем диапазоне температур. Специфика вовлечения колебаний катионов и анионов в динамику каждой из этих мод позволяет утверждать, что наблюдаемое в SrTiO₃:Mn уширение линий связано с возрастанием структурного беспорядка в катионной подсистеме (B-подрешетке) кристалла. Это согласуется с результатами экспериментов по монокристалльной рентгеновской дифракции, выполненных на этом же кристалле, согласно которым атомы Mn неупорядоченно заселяют смещенные позиции внутри октаэдра VO₆ [31].

Отметим, что мода Акса, не претерпевающая никаких изменений при допировании кристалла атомами Mn, является единственным типом полярных колебаний в кубической фазе, в которые не вовлечены катионы. Благодаря своей мультивалентной природе марганец может замещать как стронций, так и титан в структуре SrTiO₃. При замещении в B-подрешетке только четырехвалентное состояние Mn не требует формирования компенсирующих дефектных комплексов вида $\text{Mn}'_{\text{Ti}}-\text{V}_\text{O}''-\text{Mn}'_{\text{Ti}}$ или $\text{Mn}''_{\text{Ti}}-\text{V}_\text{O}''$, связанных с неминуемым образованием кислородных вакансий (V_O'') [23]. Однако возрастание степени нестехиометрии в анион-дефицитных перовскитах приводит к ослаблению ковалентности A-O и B-O связей, что отражается на параметрах всех трех типов полярных колебаний, включая и моду Акса [43, 44]. Таким образом, наши данные свидетельствуют о том, что наиболее вероятной валентностью Mn при замещении Ti является IV, и что при интерпретации природы диэлектрической релаксации процесс переориентации локализованных на дефектных комплексах поляронов является менее предпочтительным в сравнении с моделью температурно-активированных атомных перескоков (см. работу [31] и приведенные в ней ссылки).

Появление R-моды в ИК спектрах SrTiO_3 и $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ является индикатором антиферродисторсионного перехода, происходящего вследствие конденсации критического параметра порядка R'_{25} , связанного с асинфазным вращением октаэдров TiO_6 вокруг одной оси согласно схеме Глейзера $a^0a^0c^-$ (рис. 1а) [45]. В состав полного конденсата параметров порядка входит также не критическое неприводимое представление E_g (вторичный параметр порядка), которое определяет несобственно-сегнетоэластическую природу деформации кристаллической решетки, возникающую при переходе в тетрагональную фазу [46]. Наблюдаемое понижение на ~ 20 К температуры, при которой проявляется эта линия (рис. 1б, вставка), указывает на снижение температуры антиферродисторсионного перехода в кристалле $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$. Этот результат согласуется с известной обратной корреляцией между T_a и толеранс-фактором ($t = (r_A + r_O)/\sqrt{2}(r_B + r_O)$) структуры перовскита, установленной для керамических твердых растворов на основе SrTiO_3 с различными вариациями изо- и гетеровалентных замещений [47]. Например, за счет различий ионных радиусов, замещение Sr^{2+} на Mn^{2+} приводит к уменьшению t и возрастанию T_a , а замещение Ti^{4+} на Mn^{4+} , наоборот, влечет за собой повышение t и снижение T_a [47, 48]. В случае исследуемого кристалла $t = 1.00235$, т.е. наша оценка $T_a \approx 85$ К, полученная из ИК-спектров, близка к идеальному прогнозу для замещения Ti^{4+} на Mn^{4+} (2 ат. %) согласно линейной корреляции $T_a(t)$ [47]. Отметим, что, помимо геометрического фактора, значительное влияние на подавление T_a в SrTiO_3 оказывает также увеличение концентрации $V_{\text{O}}^{\cdot\cdot}$ вакансий, локально снижающих степень σ -перекрывания d и p орбиталей атомов титана и кислорода, соответственно [49]. Образование значительного количества $V_{\text{O}}^{\cdot\cdot}$, например, при замещении Ti^{4+} на Mg^{2+} , приводит к заметному отклонению от линейной зависимости $T_a(t)$ [47]. Таким образом, обнаруженное нами соотношение между T_a и t , практически идеально укладывающееся в известную зависимость (в отличие от керамических твердых растворов $\text{SrTi}_{0.95}\text{Mn}_{0.05}\text{O}_3$ [47], не проявляющих диэлектрическую релаксацию [48]), что косвенным образом подтверждает сделанные предположения относительно наиболее вероятной валентности Mn (IV) и отсутствия значительного количества $V_{\text{O}}^{\cdot\cdot}$ в исследуемом кристалле.

Сильная связь (кулоновское взаимодействие) между полярными модами в перовскитах, приводящая к гигантскому расщеплению продольных и

поперечных компонентов, обуславливает необходимость использования соответствующих моделей, учитывающих ангармоническую природу колебаний кристаллической решетки [50]. Для моделирования колебательных линий в ТГц-ИК спектрах SrTiO_3 была использована четырехпараметрическая факторизованная модель (рис. 2):

$$\varepsilon^*(\nu) = \varepsilon_\infty \prod_{j=1}^N \frac{\nu_{j\text{LO}}^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_{j\text{LO}}}{\nu_{j\text{TO}}^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_{j\text{TO}}}, \quad (3)$$

где $\nu_{j\text{LO}}, \nu_{j\text{TO}}$ и $\gamma_{j\text{LO}}, \gamma_{j\text{TO}}$ – частоты и затухания продольных и поперечных оптических мод, соответственно. Вклад j -го осциллятора в диэлектрический отклик определяется как:

$$\Delta\varepsilon_j = \varepsilon_\infty \frac{\nu_{j\text{LO}}^2 - \nu_{j\text{TO}}^2}{\nu_{j\text{TO}}^2} \prod_{i \neq j}^N \frac{\nu_{i\text{LO}}^2 - \nu_{j\text{TO}}^2}{\nu_{i\text{TO}}^2 - \nu_{j\text{TO}}^2}. \quad (4)$$

Видно, что использование факторизованной модели позволяет адекватно описывать ТГц-ИК-спектры кристаллов (при $T = 297$ К) с параметрами фоннных частот, близкими к известным из литературы [33, 38]. Как в случае SrTiO_3 , так и в случае $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$, доминирующий вклад в низкочастотную диэлектрическую проницаемость вносит мягкая мода (TO_1) с диэлектрическим вкладом $\Delta\varepsilon$, превышающим 1000 при $T = 100$ К (см. рис. 3а). Принципиальным моментом при обработке полученных спектров явилось то, что в случае кристаллов $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ оказалось необходимым учесть дополнительное низкоэнергетическое возбуждения с частотой ниже частоты сегнетоэлектрической мягкой моды. Существование подобного низкочастотного процесса (дисперсии типа “центральной” моды) является характерной особенностью ТГц-ИК-спектров систем с различными проявлениями структурного беспорядка, в частности, в кристаллах, в которых беспорядок смещений атомов является причиной возникновения диэлектрической релаксации в радиочастотном диапазоне [7, 51–53]. Таким образом, появление в спектре кристалла $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ такого типа особенности является дополнительным аргументом в пользу прыжковой модели диэлектрической релаксации.

В связи с тем, что доминирующий вклад в величину статической диэлектрической проницаемости ε кристаллов SrTiO_3 вносит мягкая сегнетоэлектрическая мода Слетера, параметры которой критически связаны со структурной неустойчивостью, рассмотрим более детально вопрос о влиянии атомов Mn на ее температурное поведение. На рисунке 3 приведены температурные зависимости параметров мяг-

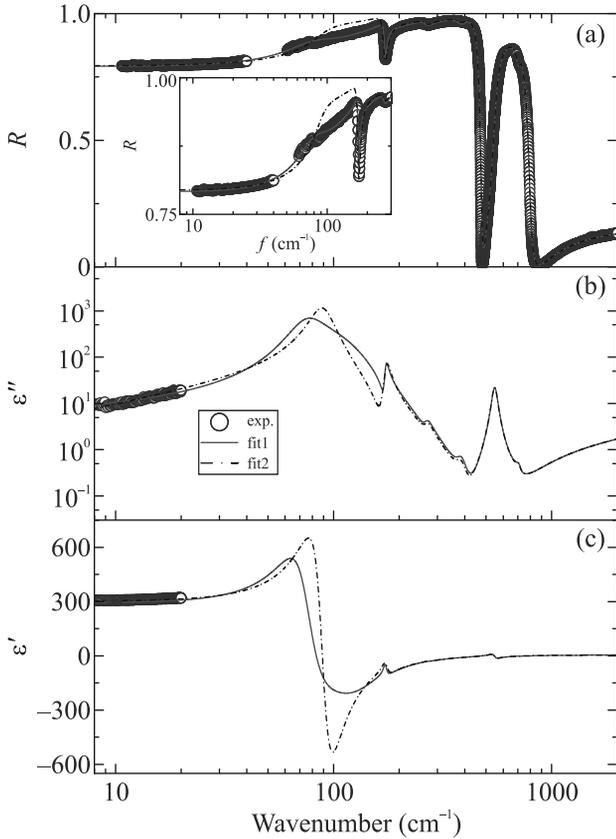


Рис. 2. (Цветной онлайн) ТГц-ИК спектры коэффициента отражения (a), мнимой (b) и действительной (c) частей диэлектрической проницаемости кристалла SrTiO₃:Mn при 297 К. ТГц данные на частотах ниже 20 см⁻¹ (точки на панелях (b), (c)) получены путем прямых измерений на ТГц спектрометре с временным разрешением. Линии соответствуют одновременной обработке методом наименьших квадратов ТГц спектров $\epsilon'(\nu)$ и $\epsilon''(\nu)$ и ИК спектров коэффициента отражения $R(\nu)$, как описано в тексте: розовая, fit1 на рисунке, (штрихпунктирная, fit2 на рисунке) линия отвечает обработке спектров с использованием четырехпараметрической фактаризованной модели с учетом (без учета) низкочастотного возбуждения, расположенного ниже мягкой сегнетоэлектрической моды; соответствующие результаты показаны в деталях на вставке на панели (a)

кой моды (*soft mode*, SM): диэлектрического вклада $\Delta\epsilon_{SM}$, частоты ν_{SM} и затухания γ_{SM} , полученные из обработки ТГц спектров кристаллов SrTiO₃ и SrTiO₃:Mn в температурных диапазонах 55–297 К и 100–297 К, соответственно, с применением стандартной модели Лоренца (при более низких температурах величина коэффициента пропускания приготовленных образцов была слишком мала для надежного измерения). Температурное поведение $(\Delta\epsilon_{SM})^{-1}$

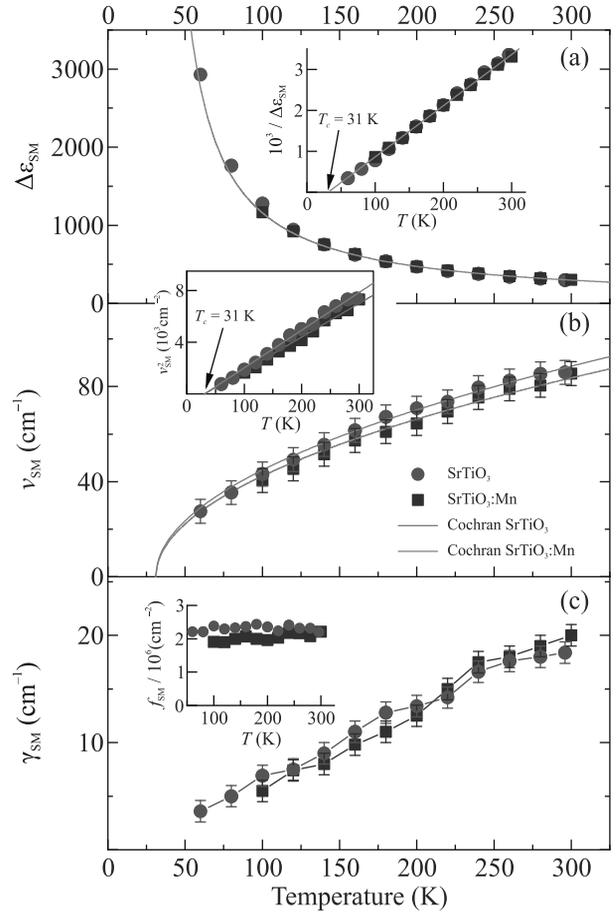


Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурные зависимости параметров сегнетоэлектрической мягкой моды в монокристаллах SrTiO₃ и SrTi_{1-x}Mn_xO₃ ($x = 2$ ат. %): диэлектрического вклада (a), обратной величины диэлектрического вклада (панель (a), вставка), частоты (b), квадрата частоты (панель (b), вставка), затухания (c), силы осциллятора (панель (c), вставка). Линии на панели (a) и на вставке на панели (a) соответствуют выражению Кюри-Вейсса ((5) в тексте) с температурой Кюри-Вейсса $T_C = 31$ К. Линии на панели (b) и на вставке на панели (b) соответствуют выражению Кохрана ((1) в тексте) с температурой Кюри-Вейсса $T_C = 31$ К

(рис. 3а, вставка) и $(\nu_{SM})^2$ (рис. 3б, вставка) описываются законами Кюри-Вейсса:

$$\Delta\epsilon_{SM}(T) = \frac{C}{T - T_C} \quad (5)$$

(здесь C – константа Кюри) и Кохрана (1), соответственно. Рассчитанные из ТГц спектров значения температуры Кюри-Вейсса $T_C = 31$ К и константы Кюри $C = 8 \cdot 10^4$ К хорошо согласуются с известными литературными данными [16] и совпадают для двух исследуемых кристаллов. Заметим, что отклонения

от линейных зависимостей в поведении $(\Delta\varepsilon_{SM})^{-1}(T)$ и $(\nu_{SM})^2(T)$, связанные с “включением” квантовых эффектов и описываемых феноменологическими выражениями Барретта [11], должны наблюдаться ниже $T \sim 80$ К как в SrTiO_3 [16], так и в $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ [31].

Отсутствие существенных различий в температурном поведении и параметрах мягкой моды кристаллов SrTiO_3 и $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ противоречит результатам работы Ткача с соавторами [48], полученными для керамического образца $\text{SrTi}_{0.95}\text{Mn}_{0.05}\text{O}_3$. В этой работе в интервале температур 10–297 К было обнаружено существенное возрастание частоты ν_{SM} в $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ по сравнению с SrTiO_3 , на $\sim 8\text{ см}^{-1}$ при $T = 297$ К и на $\sim 17\text{ см}^{-1}$ при $T = 10$ К. Ужесточение сегнетоэлектрической моды связывалось с разрушением высокополяризуемых каналов $\text{Ti}-\text{O}-\text{Ti}$ при вхождении Mn^{4+} в В-позицию структуры перовскита [48]. Однако эта интерпретация не учитывает возможность нецентрального расположения Mn^{4+} внутри кислородного октаэдра, как было установлено на основании экспериментов по прецизионной рентгеновской монокристалльной дифракции [31]. Более того, наблюдаемое нами отсутствие существенных различий параметров мягкой моды ν_{SM} , γ_{SM} и ν_{SM} кристаллов $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ и SrTiO_3 (рис. 3) в значительной степени повторяет поведение мягкой сегнетоэлектрической моды в керамике $\text{Sr}_{0.975}\text{Mn}_{0.025}\text{TiO}_3$ с нецентральными позициями Mn в А-подрешетке при $T > T_a$ [48], а также в кристаллах $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$, претерпевающих спонтанный сегнетоэлектрический фазовый переход при $x > 0.008$ [54, 55]. При этом, согласно данным XAFS, смещение атомов Nb составляет порядка 0.14 \AA вдоль направления (111) [56], что существенно меньше в сравнении со смещениями примесей Mn^{2+} (0.77 \AA [23–26]) и Li^+ (1.26 \AA [57]) в системах на основе SrTiO_3 и KTaO_3 , характеризующихся низкочастотной диэлектрической релаксацией прыжкового типа. Так что по величине смещения примесных атомов исследуемые кристаллы $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ занимают промежуточное положение между системами $\text{Sr}_{0.975}\text{Mn}_{0.025}\text{TiO}_3$ и $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$.

Принципиальный характер приобретает температурное поведение динамики решетки при $T < T_a$, в котором наблюдается ужесточение частоты мягкой моды в $\text{Sr}_{0.975}\text{Mn}_{0.025}\text{TiO}_3$ ($T_a \sim 150$ К) [48] и в других квантовых параэлектриках с примесями, занимающими нецентральные позиции, например, в $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$ [58]. Охлаждение исследуемых кристаллов до ~ 100 К ведет к совпадению температурных зависимостей ν_{SM} , но температурное поведение мягкой моды в кристалле $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ ниже

T_a остается неизвестным. Отметим, что взаимодействие релаксационных возбуждений (“центральных” мод) с мягкой сегнетоэлектрической модой рассматривается в качестве одного из основных механизмов, используемых при интерпретации диэлектрических свойств допированных кристаллов квантовых параэлектриков [6, 7, 59–61]. В случае SrTiO_3 понижение симметрии в результате антиферродисторсионного перехода приводит к расщеплению мягкой сегнетоэлектрической моды и к разделению смещенных позиций, заселенных примесными атомами, как было показано нами на примере кристалла $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ [29]. Последнее приводит к перераспределению высот потенциальных барьеров (за счет симметричной неэквивалентности смещенных позиций) для прыжков примесных атомов и, как следствие, к усложнению диэлектрического спектра (появлению нескольких релаксационных процессов) [29, 31]. Таким образом, вопросы низкотемпературного поведения мягкой моды и ее возможное взаимодействие с релаксационными процессами (“центральной” модой) в кристаллах $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ являются актуальными и требуют дальнейшего исследования.

Заключение. Путем измерения ТГц и ИК спектров диэлектрического отклика выполнено первое детальное сравнительное исследование динамики кристаллической решетки монокристаллов SrTiO_3 и $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$. Обнаружено, что замещение Ti на Mn в В-позиции структуры перовскита приводит к значительному размытию линий поглощения, соответствующих фононным модам Слетера и Ласти, в то время как параметры моды Акса остаются неизменными. Анализ нормальных координат этих мод позволил заключить, что наблюдаемое в $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ уширение линий связано с возрастанием структурного беспорядка в катионной подсистеме (В-подрешетке) кристалла, что согласуется с результатами монокристалльной рентгеновской дифракции [31]. Установлено, что допирование кристалла SrTiO_3 атомами Mn приводит к понижению температуры антиферродисторсионного фазового перехода на ~ 20 К, однако, характер температурного поведения параметров мягкой сегнетоэлектрической моды Слетера сохраняется практически неизменным в исследуемом интервале температур $\approx 60 \text{ К} \leq T \leq 297 \text{ К}$. Полученные результаты свидетельствуют о том, что наиболее вероятной валентностью Mn при замещении Ti является IV, что не требует появления компенсирующих вакансий и дефектных комплексов. Использование четырехпараметрической факторизованной модели для описания дисперсии диэлектрической проницаемо-

сти (процессов поглощения) в ТГц области частот в $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ однозначно указывает на необходимость учета вклада дополнительного возбуждения с частотой ниже частоты сегнетоэлектрической мягкой моды. Существование дополнительного низкоэнергетического поглощения является характерной особенностью систем с различными проявлениями беспорядка, в частности, кристаллов, в которых беспорядок смещений атомов является причиной возникновения диэлектрической релаксации в радиочастотном диапазоне [7, 51–53]. Таким образом, на основании проведенного исследования динамики решетки кристаллов SrTiO_3 и $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$, а также с учетом результатов прецизионного рентгеноструктурного анализа [31] установлено, что наиболее вероятный механизм диэлектрической релаксации в кристаллах $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ связан с температурно-активированными перескоками атомов марганца между смещенными (нецентральными) кристаллографическими позициями. Отметим, что сложный характер диэлектрической релаксации (наличие нескольких релаксационных процессов) и их вероятная связь с мягкой сегнетоэлектрической модой требуют дальнейших спектроскопических исследований кристаллов SrTiO_3 и $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ при температурах ниже температуры антиферродисторсионного фазового перехода.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда в рамках проекта 21-12-00358. Авторы выражают благодарность С. А. Иванову, А. И. Сташу и Я. Петцелту (J. Petzelt) за полезные обсуждения результатов работы.

1. A. S. Barker, Jr. and M. Tinkham, Phys. Rev. **125**, 1527 (1962).
2. R. A. Cowley, Phys. Rev. Lett. **9**, 159 (1962).
3. В. Л. Гинзбург, УФН **38**, 430 (1949).
4. П. Андерсон, *Физика диэлектриков*, Изд-во АН СССР, М. (1960), с. 290 [J. C. Anderson, *Dielectrics*, London, Chapman and Hall (1966)].
5. W. Cochran, Adv. Phys. **9**, 387 (1960).
6. J. F. Scott, Rev. Mod. Phys. **46**(1), 83 (1974).
7. S. Kamba, APL Mater. **9**, 020704 (2021).
8. S. M. Shapiro, J. D. Axe, G. Shirane, and T. Riste, Phys. Rev. B **6**, 4332 (1972).
9. Ю. И. Юзюк, Физика твердого тела **54**(5), 963 (2012).
10. J. Petzelt and D. Nuzhnyy, *Soft polar phonon mode in SrTiO₃ single crystals, ceramics and thin films*, in *Strontium Titanate: Synthesis, Properties and Uses*, ed. by A. Tkach and P. M. Vilarinho, Nova Science Publishers: N.Y., NY, USA (2019), p. 1.
11. J. H. Barrett, Phys. Rev. **86**(1), 118 (1952).
12. G. Rupprecht and R. O. Bell, Phys. Rev. **125**, 1915 (1962).
13. O. G. Vendik, E. K. Hollmann, A. B. Kozyrev, and A. M. Prudan, J. Supercond. **12**, 325 (1999).
14. A. K. Tagantsev, V. O. Sherman, K. F. Astafiev, J. Venkatesh, and N. Setter, J. Electroceram **11**, 5 (2003).
15. О. Е. Квятковский, Физика твердого тела **43**(8), 1345 (2001).
16. K. A. Muller and H. Burkard, Phys. Rev. **19**, 3593 (1979).
17. K. A. Muller, W. Berlinger, and E. Tosatti, Zeitschrift fur Physik B Condensed Matter **84**, 277 (1991).
18. S. E. Rowley, L. J. Spalek, R. P. Smith, M. P. M. Dean, M. Itoh, J. F. Scott, G. G. Lonzarich, and S. S. Saxena, Nature Phys. **10**(5), 367 (2014).
19. C. W. Rischau, X. Lin, C. P. Grams, D. Finck, S. Harms, J. Engelmayr, T. Lorenz, Y. Gallais, B. Fauque, J. Hemberger, and K. Behnia, Nature Phys. **13**, 643 (2017).
20. J. M. Edge, Y. Kedem, U. Aschauer, N. A. Spaldin, and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **115**, 247002 (2015).
21. A. Stucky, G. Scheerer, Z. Ren, D. Jaccard, J. M. Pouchard, C. Barreteaue, E. Giannini, and D. van der Marel, Sci. Rep. **6**, 37582 (2016).
22. A. Narayan, A. Cano, A. V. Balatsky, and N. A. Spaldin, Nature Mater. **18**(3), 223 (2019).
23. A. Tkach, P. M. Vilarinho, and A. L. Kholkin, Acta Mater. **54**, 5385 (2006).
24. R. A. Maier, E. Cockayne, M. Donohue, G. Cibir, and I. Levin, Chem. Mater. **32**, 4651 (2020).
25. V. V. Laguta, I. V. Kondakova, I. P. Bykov, M. D. Glinchuk, A. Tkach, P. M. Vilarinho, and L. Jastrabik, Phys. Rev. B **76**, 054104 (2007).
26. I. Levin, V. Krayzman, J. C. Woicik, A. Tkach, and P. M. Vilarinho, Appl. Phys. Lett. **96**, 052904 (2010).
27. A. I. Lebedev, I. A. Sluchinskaya, A. Erko, and V. F. Kozlovskii, JETP Lett. **89**(9), 457 (2009).
28. A. Tkach, P. M. Vilarinho, A. L. Kholkin, A. Pashkin, S. Veljko, and J. Petzelt, Phys. Rev. B **73**, 104113 (2006).
29. M. Savinov, V. A. Trepakov, P. P. Syrnikov, V. Zelezny, J. Pokorny, A. Dejneka, L. Jastrabik, and P. Galinetto, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 095221 (2008).
30. V. V. Lemanov, E. P. Smirnova, A. V. Sotnikov, and M. Weihnacht, Phys. Sol. State. **46**, 1442 (2004).
31. M. V. Talanov, A. I. Stash, S. A. Ivanov, E. S. Zhukova, B. P. Gorshunov, B. M. Nekrasov, V. S. Stolyarov, V. I. Kozlov, M. Savinov, and A. A. Bush, J. Phys. Chem. Lett. **13**(50), 11720 (2022).
32. A. M. Balbashov and S. K. Egorov, J. Cryst. Growth. **52**, 498 (1981).
33. J. Petzelt, T. Ostapchuk, I. Gregora et al. (Collaboration), Phys. Rev. B **64**(18), 184111 (2001).

34. J. C. Galzerani and R. S. Katiyar, *Solid State Commun.* **41**(7), 515 (1982).
35. P. A. Fleury, J. F. Scott, and J. M. Worlock, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 16 (1968).
36. G. Shirane and Y. Yamada, *Phys. Rev.* **177**(2), 858 (1969).
37. J. C. Slater, *Phys. Rev.* **78**, 748 (1950).
38. H. Vogt and G. Rossbroich, *Phys. Rev. B* **24**, 3086 (1981).
39. J. T. Last, *Phys. Rev.* **105**, 1740 (1957).
40. J. D. Axe, *Phys. Rev.* **157**, 429 (1957).
41. C. Z. Bi, J. Y. Ma, J. Yan, X. Fang, B. R. Zhao, D. Z. Yao, and X. G. Qiu, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 2553 (2006).
42. F. Gervais, J.-L. Servoin, A. Baratoff, J. G. Bednorz, and G. Binnig, *Phys. Rev. B* **47**, 8187 (1993).
43. D. A. Crandles, B. Nicholas, C. Dreher, C. C. Homes, A. W. McConnell, B. P. Clayman, W. H. Gong, and J. E. Greedan, *Phys. Rev. B* **59**, 12842 (1999).
44. H. Trabelsi, M. Bejar, E. Dhahri, M. A. Valente, M. P. F. Graca, M. Djermouni, and A. Zaou, *J. Magn. Magn. Mater.* **478**, 175 (2019).
45. A. M. Glazer, *Acta Cryst. B* **28**, 3384 (1972).
46. M. V. Talanov and E. G. Trotsenko, *Ferroelectrics* **612**, 36 (2023).
47. A. Tkach, P. M. Vilarinho, A. L. Kholkin, I. M. Reaney, J. Pokorny, and J. Petzelt, *Chem. Mater.* **19**, 6471 (2007).
48. A. Tkach, P. M. Vilarinho, D. Nuzhnyy, and J. Petzelt, *Acta Mater.* **58**, 577 (2010).
49. D. Bauerle and W. Rehwald, *Solid State Commun.* **27**, 1343 (1978).
50. W. Zhong, R. D. King-Smith, and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3618 (1994).
51. J. Petzelt, G. V. Kozlov, and A. A. Volkov, *Ferroelectrics* **73**, 101 (1987).
52. S. Kamba, E. Buixaderas, T. Ostapchuk, and J. Petzelt, *Ferroelectrics* **268**, 163 (2002).
53. E. Buixaderas, S. Kamba, and J. Petzelt, *Ferroelectrics* **308**, 131 (2004).
54. R. L. Prater, L. L. Chase, and L. A. Boatner, *Phys. Rev. B* **23**(1), 221 (1981).
55. A. Pashkin, V. Zelezny, and J. Petzelt, *J. Phys. Condens. Matter* **17**(25), L265 (2005).
56. O. Hanske-Petitpierre, Y. Yacoby, J. Mustre de Leon, E. A. Stern, and J. J. Rehr, *Phys. Rev. B* **44**, 6700 (1991).
57. J. J. van der Klink and F. Borsa, *Phys. Rev. B* **30**, 52 (1984).
58. H. Vogt, *J. Phys.: Condens. Matter* **7**, 5913 (1995).
59. A. S. Barker Jr, *Phys. Rev. B* **12**(10), 4071 (1975).
60. S. A. Prosandeev, V. A. Trepakov, M. E. Savinov, and S. E. Kapphan, *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, 719 (2001).
61. W. Kleemann, J. Dec, Y. G. Wang, P. Lehnen, and S. A. Prosandeev, *J. Phys. Chem. Solids* **61**, 167 (2000).

Anatomy of the band structure of the newest apparent near-ambient superconductor $\text{LuH}_{3-x}\text{N}_x$

N. S. Pavlov^{+*1)}, I. R. Shein[×], K. S. Pervakov^{*}, V. M. Pudalov^{*}, I. A. Nekrasov^{+*}

⁺*Institute of Electrophysics Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, 620016 Ekaterinburg, Russia*

^{*}*Lebedev Physical Institute, 119991 Moscow, Russia*

[×]*Institute of Solid State Chemistry, 620108 Ekaterinburg, Russia*

Submitted 12 October 2023

Resubmitted 12 October 2023

Accepted 16 October 2023

DOI: 10.31857/S1234567823210127, EDN: ptkkdb

Introduction. The discovery of high temperature superconductivity under high pressure around 100–250 GPa with T_c about 203 K in a hydrogen-containing H_3S system [1] gave rise to a flow of experimental and theoretical works (see reviews [2–7]). The subsequent discovery of near-room temperature superconductivity in hydrides brings us back to the classical electron-phonon superconducting pairing, very likely consistent with the Bardeen–Cooper–Schrieffer (BCS) theory. Remarkably, there appeared many different classes of hydrides under pressure and band structure calculations (density functional theory – DFT) have shown the ability to predict crystal structures and T_c values for many of those hydrides (for review see [7]).

Here we address the issue of superconductivity in the recently discovered nitrogen-doped lutetium hydride LuH_xN_y where $T_c = 294$ K was claimed to occur at 10 kbar [8]. This result has sparked intensive theoretical and experimental research. In this paper we performed DFT+U band structure calculations for both parent LuH_3 and nitrogen doped $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$. In particular, our analysis reveals the contribution of nitrogen bands to the density of states at the Fermi level which might facilitate formation of superconducting state. We also provide simple BCS-analysis of T_c for materials under consideration.

Computational details. The calculations were performed within the DFT+U approximation in the VASP software package [9]. The generalized gradient approximation (GGA) in the form of the Perdew–Burke–Ernzerhof (PBE) exchange-correlation functional [10] was employed. The strong onsite Coulomb repulsion of Lu-4*f* electrons was described with the DFT+U scheme with the Dudarev approach [11] ($U = 5.0$ eV).

We consider LuH_3 and nitrogen doped $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$ (spatial symmetry group $Fm\bar{3}m$) [8] at ambient pressure. The H atoms are located in positions with tetrahedral (0.25, 0.25, 0.25) and octahedral (0.5, 0, 0) surroundings of Lu atoms. The Lu atoms are located at the point of origin, (0, 0, 0). To get $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$ only one of the four hydrogen atoms is replaced by the nitrogen atom, since, such substitution, as shown in [8], leads to a metal. The ion relaxation was done for $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$. Wannier functions were obtained using the Wannier90 [12] package with projection onto H-1s in octahedral environment and N-2*p* orbitals.

Results. The comparison of GGA+U total densities of states (DOS) and band dispersions between LuH_3 and $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$ is shown on Fig. 1.

Nitrogen doping leads to formation of a wide peak in the total DOS just below the Fermi level, in contrast to the case of stoichiometric LuH_3 . The most important is that the total DOS at the Fermi level increases almost by a factor of two in $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$, from 1.5 to 2.6 states/eV/u.c. (left panel of Fig. 1). Substitution of hydrogen atom by nitrogen one gives four additional holes per unit cell which leads to ~ 1.8 eV lowering of the Fermi level in $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$ as compared to LuH_3 . Although the bands can not be superposed by their simple shift, some features are quite similar for both systems.

In the case of $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$, several bands cross the Fermi level at each high-symmetry direction, while for LuH_3 only couple of bands near Γ -point cross the Fermi level. For $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$ at the Fermi level there are pronounced flat band regions in the vicinity of R and X points, which are missing for LuH_3 .

In order to define the minimal orbital basis set for $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$, needed to reproduce electronic bands near the Fermi level we performed the projection onto Wannier functions. The orbital character of the bands built

¹⁾e-mail: pavlovns@lebedev.ru

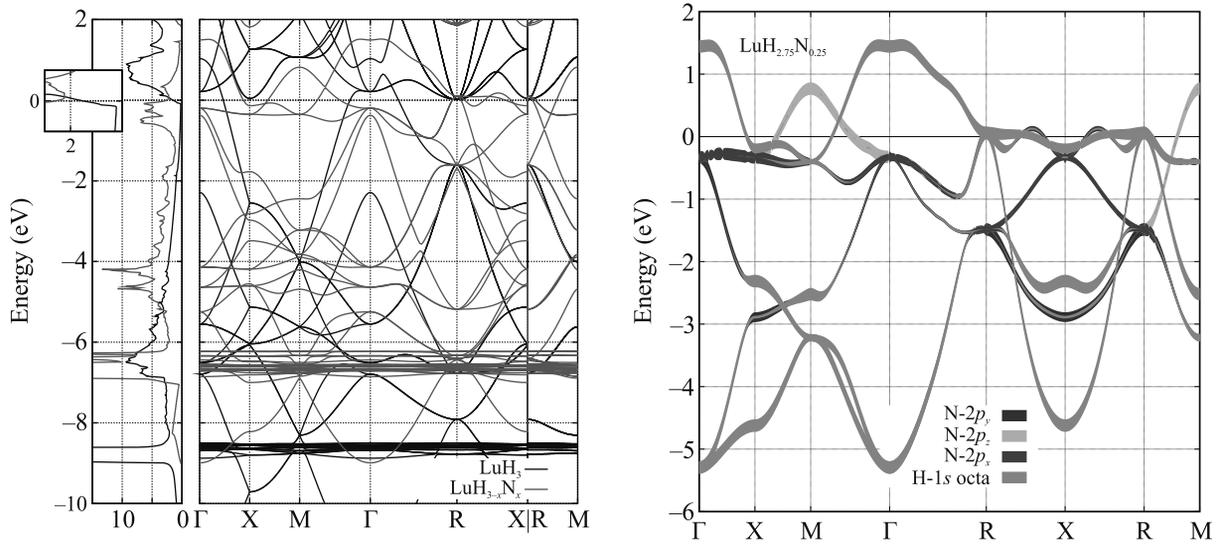


Fig. 1. (Color online) Left panel: GGA + U total DOS (right side) and band dispersions of LuH_3 (black lines), $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$ (red lines on the right side). The inset (left panel) shows DOS near the Fermi level $[-0.5; 0.5]$ eV. Right panel: The bands projected on Wannier function with linewidth showing contributions of H-1s octahedral and N-2p states

on the projected Wannier functions are presented in Fig. 1.

The most important parameter of superconducting materials is its critical superconducting temperature T_c . To get its simplest rough theoretical estimate, we use the well known BSC equation $T_c = 1.14 \omega_D \exp(-1/\lambda)$. We employ $T_c^{\text{LuH}_3} = 62$ K value [13] obtained with anisotropic Migdal–Eliashberg formalism with $\omega_D = 19.3$ meV = 220 K. With the values we can exclude the pairing constant g from BCS equation and then estimate T_c^{LuHN} value for nitrogen doped material, assuming that ω_D and g do not change significantly. The increase of DOS at the Fermi level gives $T_c \sim 111$ K for $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$.

Conclusion. Our findings suggest that nitrogen doping of LuH_3 can significantly alter the electronic properties of the material (bringing light elements N-2p and H-1s states at the Fermi level), facilitating the occurrence of superconductivity. In particular, nitrogen doping doubles the value of DOS at the Fermi level. Simple BCS analysis suggests that for $\text{LuH}_{2.75}\text{N}_{0.25}$ the critical temperature might exceed 100 K, and one can even increase it with further hole doping by nitrogen up to 180 K.

The work of N. S. P., K. S. P., V. M. P, and I. A. N. was partially supported by a grant from the Russian Science Foundation (# 21-12-00394). I. R. S. work was partially supported by the State Assignment # AAAA-A19-119031890025-9.

We are grateful to M.V. Sadovskii and E.Z. Kuchinskii for useful discussions.

This is an excerpt of the article “Anatomy of the band structure of the newest apparent near-ambient superconductor $\text{LuH}_{3-x}\text{N}_x$ ”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023603172

1. A. P. Drozdov, M. I. Erements, I. A. Troyan, V. Ksenofontov, and S. I. Shylin, *Nature* **525**, 73 (2015).
2. M. I. Erements and A. P. Drozdov, *Phys.-Uspekhi* **59**, 1154 (2016).
3. L. P. Gor’kov and V. Z. Kresin, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 011001 (2018).
4. C. J. Pickard, I. Errea, and M. I. Erements, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **11**, 57 (2020).
5. J. A. Flores-Livas, L. Boeri, A. Sanna, G. Profeta, R. Arita, and M. Erements, *Phys. Rep.* **856**, 1 (2020).
6. I. Nekrasov and S. Ovchinnikov, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* **35**, 959 (2022).
7. I. A. Troyan, D. V. Semenok, A. G. Ivanova, A. G. Kvashnin, D. Zhou, A. V. Sadakov, O. A. Sobolevsky, V. M. Pudalov, I. S. Lyubutin, and A. R. Oganov, *Phys.-Uspekhi* **65**, 748 (2022).
8. N. Dasenbrock-Gammon, E. Snider, R. McBride et al. (Collaboration), *Nature* **615**, 244 (2023).
9. G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
10. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
11. S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys, and A. P. Sutton, *Phys. Rev. B* **57**, 1505 (1998).
12. G. Piovanuzzi, V. Vitale, R. Arita et al. (Collaboration), *J. Phys. Condens. Matter* **32**, 165902 (2020).
13. R. Lucrezi, P. P. Ferreira, M. Aichhorn, and Ch. Heil, arXiv:2304.06685 [cond-mat].

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

П И С Ь М А
В
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

том 118

Выпуск 10

25 ноября 2023

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора

Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

Web-страница <http://www.jetpletters.ac.ru>

Интернет-версия английского издания
<http://www.springerlink.com/content/1090-6487>

© Российская академия наук, 2023

© Редакция журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2023

Review on special geometry and mirror symmetry for Calabi–Yau manifolds (Mini-review)

*A. Belavin^{+*1)}, B. Eremin^{*×◦1)}, S. Parkhomenko^{+×1)}*

⁺*Landau Institute for Theoretical Physics, 142432 Chernogolovka, Russia*

^{*}*Kharkevich Institute for Information Transmission Problems, 127051 Moscow, Russia*

[×]*Moscow Institute of Physics and Technology, 115184 Dolgoprudny, Russia*

[◦]*Skolkovo Institute of Science and Technology, 121205 Moscow, Russia*

Submitted 11 October 2023

Resubmitted 11 October 2023

Accepted 16 October 2023

DOI: 10.31857/S1234567823220019, EDN: pihhac

Ten-dimensional Superstring theory unifies the Standard Model of the strong, electromagnetic, and weak interactions with quantum gravity. Starting with 10-dimensional superstring theory, we can get a 4-dimensional theory with spacetime supersymmetry following the Kaluza–Klein idea by compactifying six of the ten dimensions.

For phenomenological reasons we need to do this while maintaining $N = 1$ Supersymmetry of 4-dimensional spacetime. To achieve this, as Candelas, Horowitz, Strominger and Witten have shown, we must compactify six of the ten dimensions of to the so called Calabi–Yau (CY) manifolds.

Another equivalent approach developed by D. Gepner is the compactification of 6 dimensions onto some $N = 2$ Superconformal Field theory with the central charge $c = 9$. Each of these two equivalent approaches has its own merits. Say, using exactly solvability of the Minimal models of $N = 2$ Superconformal Field Theory, it is possible to obtain the explicit solution of the considered models.

In a series of papers [1, 2], we proposed a new method for calculating special geometry on the moduli space of the complex structures of CY manifolds, defined as a hypersurfaces in a weighted projective space. This approach is based on the connection between the cohomology of CY manifolds and their periods, specified by oscillatory integrals, with supersymmetric Landau–Ginzburg models. Knowing the periods allows us to calculate the main components of the special geometry of the moduli space. Using this calculation, an explicit ex-

pression was found for the Kähler potential of the metric of special geometry for an arbitrary surface of Fermat type.

Previously, Jockers et al. proposed a conjecture (JKLMR conjecture), which establishes a connection between Kähler potentials in the moduli space of Kähler structures of CY manifolds and the exact partition function of $N = (2, 2)$ supersymmetric gauge linear sigma models (GLSM) on a two-dimensional sphere. We tested the JKLMR conjecture for several simple examples. To do this, in [3, 4] we used our results for the explicit expression for the Kähler potential together with mirror symmetry.

We also tested the mirror version of the JKLMR conjecture using the example of the CY manifold X , which does not belong to the Fermat class [5]. Moreover, for the general class of Berglund–Hübsch families, a connection was found between GLSM for Y and the CY family X [6].

In the work [7], devoted to the study of CY manifolds of the Berglund–Hübsch type, we discovered the phenomenon of coincidence of the Kähler potential on the moduli space of complex structures of two different CY families. Two cases of such coincidences were considered. Each pair has two families of Calabi–Yau manifolds with matching Hodge numbers. For both families in each pair, using our method proposed in [1], the Kähler potentials were found on the moduli space of complex structures. After this, the fact that the calculated potentials coincide in each pair was checked. To do this for both families in each pair a so-called fan that defines this CY family was constructed.

In the works [8, 9] we studied the Mirror symmetry for various examples of CY manifolds. We checked the

¹⁾e-mail: belavin@itp.ac.ru; Eremin.ba@phystech.edu; spark@itp.ac.ru

equivalence of the results of constructing a mirror partners using the Berglund–Hübsch–Krawitz constructions and Batyrev constructions.

The phenomenon of multiple Calabi–Yau mirrors, arising in the BHK mirror construction, was found and investigated in [10]. It has been shown that for any pair of CY orbifolds that are BHK mirrors of a pair of loop-chain CY 3-folds, appeared the same weighted projective space, the periods of the holomorphic nonvanishing form are the same.

Based on the results of the work [10] we considered [11] the problem of fulfilling the JKLMR hypothesis mentioned above. The problem was studied for a specific class of CY manifolds that do not belong to the Fermat type class. Namely, the JKLMR conjecture was verified to be true when a CY $X(1)$ of this type has a mirror partner $Y(1)$ in a weighted projective space that also admits a CY of Fermat type $Y(2)$.

In the framework of Gepner a construction of special models of $N = 2$ superconformal field theory was proposed, namely the construction of the tensor product of two-dimensional $N = 2$ superconformal minimal field theories [12, 13]. It is shown that the construction which ensures the mutual locality also ensures the modular invariance. In addition, the exact connection was demonstrated between the CY orbifolds defined in the weighted projective space and the orbifolds of the product of $N = 2$ minimal superconformal models.

The review concludes with the work [14] on the cases where CY orbifolds of different Berglund–Hübsch types arise as hypersurfaces in the same weighted projective space. There established the explicit connection between such CY threefolds. Also, a simple proof of the birationality of their mirror partners appearing in two different weighted projective spaces is also given. The latter fact explains the coincidence of the periods of these mirrors, proven in our previous work.

This is an excerpt of the article “Review on special geometry and mirror symmetry for Calabi–Yau manifolds”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023603147

1. J. Phys. A **51**(5), 055403 (2018); doi:10.1088/1751-8121/aa9e7a; arXiv:1706.05342 [hep-th].
2. A. Belavin, *Special geometry on Calabi–Yau moduli spaces and Q -invariant Milnor rings, Gribov-90 Memorial Volume: Field Theory, Symmetry, and Related Topics. Proceedings of the Memorial Workshop Devoted to the 90th Birthday of V. N. Gribov*, World Scientific (2021), p. 407; Scopus: 2-s2.0-85115712331; ADS: -, RINTs: 47076907; arXiv:1808.05470 [hep-th].
3. K. Aleshkin, A. Belavin, and A. Litvinov, J. Stat. Mech. **1903**, 034003 (2019); doi:10.1088/1742-5468/ab081a; arXiv:1812.00478 [hep-th].
4. K. Aleshkin, A. Belavin, and A. Litvinov, JETP Lett. **108**(10), 710 (2018); doi.org/10.1134/S0021364018220022.
5. A. Belavin and B. Eremin, Theor. Math. Phys. **201**(2), 1606 (2019); doi:10.1134/S0040577919110060; arXiv:1907.11102 [hep-th].
6. K. Aleshkin and A. Belavin, Pisma ZhETF **110**(11), 727 (2019); arXiv:1911.11678 [hep-th].
7. M. Belakovskiy and A. Belavin, Theor. Math. Phys. **205**(2), 1439 (2020); doi:10.1134/S0040577920110045; [arXiv:2005.06008 [hep-th]].
8. A. Belavin and B. Eremin, JETP Lett. **112**(6), 370 (2020); doi:10.1134/S002136402018006X.
9. A. Belavin and B. Eremin, Nucl. Phys. B **961**, 115271 (2020); doi:10.1016/j.nuclphysb.2020.115271; arXiv:2010.07687 [hep-th].
10. A. Belavin, V. Belavin, and G. Koshevoy, Lett. Math. Phys. **111**(4), 93 (2021); doi:10.1007/s11005-021-01439-5; arXiv:2012.03320 [hep-th].
11. A. A. Belavin and B. A. Eremin, Theor. Math. Phys. **213**(1), 1441 (2022); Scopus: 2-s2.0-85140466363; ADS: 2022TMP...213.1441B; InSPIRE: 2165082; MathSciNet: 4538864; EDN: RMAMNJ.
12. A. A. Belavin and S. E. Parkhomenko, Theoret. Math. Phys. **209**(1), 1367 (2021); WoS: 000708924700004; Scopus: 2-s2.0-85117611165; ADS: 2021TMP...209.1367B; MathSciNet: 4324113.
13. A. Belavin, V. Belavin, and S. Parkhomenko, Nucl. Phys. B **982**, 115891 (2022); doi:10.1016/j.nuclphysb.2022.115891; arXiv:2206.03472 [hep-th].
14. A. Belavin and D. Gepner, Nucl. Phys. B **994**, 116313 (2023); doi:10.1016/j.nuclphysb.2023.116313; arXiv:2306.06667 [hep-th].

Природа спиновой декогеренции поляризованного пучка легких ядер в накопительном кольце для поиска ЭДМ

А. А. Мельников^{+*1)}, Ю. В. Сеничев^{+×}, А. Е. Аксентьев^{+*°}, С. Д. Колокольчиков^{+×}

⁺Институт ядерных исследований РАН, 117312 Москва, Россия

^{*}Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау, 142432 Черногоровка, Россия

[×]Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

[°]Национальный исследовательский ядерный университет МИФИ, 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 октября 2023 г.

После переработки 12 октября 2023 г.

Принята к публикации 13 октября 2023 г.

Когерентное спин-орбитальное движение спинов есть необходимое условие для экспериментов по поиску электрического дипольного момента заряженных частиц в накопительном кольце. Первый шаг для увеличения времени когерентности спинов представляет собой включение резонатора с высокочастотным полем. На следующем шаге необходимо выравнивание равновесных уровней энергии, связанных с бетатронным удлинением орбит и нелинейным коэффициентом сжатия орбит. Спиновые резонансы также являются дополнительным источником декогеренции, особенно для протонного пучка.

DOI: 10.31857/S1234567823220020, EDN: phoegy

Введение. Одной из основных проблем современной физики является барионная асимметрия Вселенной, которая означает преобладание материи над антиматерией. Космические детекторы PAMELA и AMS, направленные на поиск антивещества, еще не обнаружили его значительного количества во Вселенной [1]. Вскоре после открытия антиматерии А. Сахаров установил необходимые условия для бариогенеза (первоначального образования барионов) в 1967 г. [2]. Согласно этой идее, одной из причин барионной асимметрии является нарушение СР-инвариантности. Для объяснения механизма СР-нарушения было предложено множество теорий, выходящих за рамки Стандартной Модели (СМ), и все они из так называемой “Новой физики”. Они способны устранить трудности, с которыми можно столкнуться в СМ, но их экспериментальное подтверждение еще не найдено. Одним из возможных аргументов нарушения СР-инвариантности является существование ненулевых электрических дипольных моментов (ЭДМ) элементарных частиц.

Идея поиска ЭДМ протона и дейтрона с помощью поляризованных пучков в накопителе была первоначально предложена в Брукхейвенской национальной лаборатории (BNL), США [3, 4]. В настоящее время институт ядерной физики Юлихского исследо-

вательского центра (FZJ, Германия) разрабатывает концепцию накопителя ProtoType Ring (PTR) специально для поиска ЭДМ дейтронов и протонов [5]. Опыт работы в Юлихе на ускорителе COSY в экспериментах по поиску ЭДМ показал, что эта задача включает в себя следующие фундаментальные проблемы, которые необходимо решить: максимальное время спиновой когерентности (SCT) частиц в сгустке должно быть более 1000 с, особое внимание должно быть уделено точности измерения частоты прецессии спина, и вклад систематических ошибок в общую частоту прецессии спина должен быть меньше, чем вклад сигнала от ЭДМ.

В данной статье обсуждается природа спиновой декогеренции поляризованного пучка протонов и дейтронов в накопительном кольце для поиска ЭДМ.

Основные причины декогеренции поляризованного пучка. Явление спиновой декогеренции связано с неодинаковой частотой прецессии спина у разных частиц в сгустке. В экспериментах с поляризованными пучками по поиску электрического дипольного момента решающую роль играет сохранение когерентности спиновых колебаний частиц в сгустке в течение времени, достаточного для сбора данных.

Первые исследования по декогеренции были проведены на ускорителе COSY в г. Юлих с пучком дейтронов [6]. Ансамбль спинов частиц прецессировал в

¹⁾e-mail: alexei.a.melnikov@gmail.com

горизонтальной плоскости вокруг вертикальной оси. Поляризация определялась с помощью поляриметра. Изменение амплитуды сигнала полной поляризации использовалось для определения времени спиновой когерентности.

Сегодня известны три основных механизма спиновой декогеренции. Первый из них – зависимость частоты прецессии спина от энергии частицы. По аналогии с бетатронным движением зависимость частоты прецессии спина от энергии частицы будем называть спиновой хроматичностью. Вторая причина, вызывающая спиновую декогеренцию, – это изменение длины траектории частицы в трехмерном пространстве, что вызывает изменение частоты прецессии спина частицы. Мы называем это явление удлинением орбиты. Третья причина связана с влиянием спиновых резонансов на разброс спиновой частоты частиц в пучке. Первые две причины связаны друг с другом, поскольку обе определяются зависимостью частоты прецессии спина от параметров частицы. Тем не менее формально их природа различна, и их следует рассматривать отдельно.

Для изучения поведения ансамбля спинов частиц в пучке мы предполагаем справедливость теоремы Эренфеста, утверждающей, что средние значения квантовомеханического оператора, а также действующие силы подчиняются законам классической механики.

Ю. Узиков (ОИЯИ) специально обосновал этот переход для спина, согласно которому в представлениях классической физики “спин” означает среднее значение квантовомеханического оператора спина.

Основной принцип измерения ЭДМ в кольце следует из уравнения “Томаса–Баргмана, Мишеля, Телегди”. В соответствии с теоремой Эренфеста оно описывает классическое поведение спина частицы \mathbf{S} в сгустке с учетом предполагаемого ЭДМ:

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = \mathbf{S} \times (\Omega_{MDM} + \Omega_{EDM}), \quad (1a)$$

$$\Omega_{MDM} = \frac{q}{m\gamma} \left[(\gamma G + 1) \mathbf{B}_\perp + (1 + G) \mathbf{B}_\parallel - \gamma \left(G + \frac{1}{\gamma + 1} \right) \frac{\boldsymbol{\beta} \times \mathbf{E}}{c} \right], \quad (1b)$$

$$\Omega_{EDM} = \frac{q\eta}{2m} \left[\boldsymbol{\beta} \times \mathbf{B} + \frac{\mathbf{E}}{c} - \frac{\gamma}{\gamma + 1} \frac{\boldsymbol{\beta}}{c} (\boldsymbol{\beta} \cdot \mathbf{E}) \right]. \quad (1c)$$

Здесь Ω_{MDM} есть частота спин-прецессии за счет магнитного дипольного момента (далее – МДМ прецессия), Ω_{EDM} есть частота спин-прецессии за счет электрического дипольного момента (далее – ЭДМ прецессия). m, q – масса и заряд частицы; $\boldsymbol{\beta} = \mathbf{v}/c$,

$\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ – релятивистский бета и Лоренц фактор. $\mathbf{B} = \mathbf{B}_\perp + \mathbf{B}_\parallel$, $\mathbf{B}_\parallel = (\mathbf{v} \cdot \mathbf{B})\mathbf{v}/v^2$. Аномальный магнитный момент $G = \frac{g-2}{2}$, g – гиромагнитное отношение. Безразмерный η фактор связан с величиной ЭДМ d и спина s частицы: $d = \frac{\eta q}{2mc}s$. При изучении эффектов спиновой декогеренции мы предполагаем $B_\parallel = 0$, так как не рассматриваем элементы с продольным магнитным полем. Продольное электрическое поле E_\parallel также не учитывается.

Протонные и дейтронные накопительные кольца для поиска ЭДМ. В данной работе мы рассматриваем спиновую декогеренцию в экспериментах по поиску ЭДМ протона и дейтрона. С точки зрения магнитооптической структуры ускорители протонов и дейтронов имеют принципиальные различия. В частности, ускорители для изучения ЭДМ протона имеют чисто электростатическую структуру, а ускорители для дейтронов представляют собой смешанную структуру с электростатическими и магнитостатическими элементами. В каждой структуре явление декогеренции имеет свои особенности. Но сначала мы рассмотрим общий подход к изучению времени спиновой когерентности.

В смешанной структуре используются элементы с магнитным и электрическим полями, которые связаны между собой соотношением, следующим из силы Лоренца, удерживающей частицу на орбите радиуса R : $q(c\boldsymbol{\beta} \times \mathbf{B} + \mathbf{E}) = \frac{m\gamma v^2}{R} \mathbf{e}_x$. Здесь \mathbf{e}_x – единичный радиальный вектор. Угловая частота вращения частицы на орбите ускорителя определяет скорость вращения импульса $\Omega_{E,B}^p = \frac{q}{m} \frac{\gamma}{\gamma^2 - 1} \frac{\boldsymbol{\beta} \times \mathbf{E}}{c} + \frac{q\mathbf{B}_\perp}{m\gamma}$.

Вычитая частоту $\Omega_{E,B}^p$ из частоты Ω_{MDM} (1b) получаем частоту прецессии спина относительно импульса Ω_{MDM}^p :

$$\Omega_{MDM}^p = \omega_E^p + \omega_B^p, \quad (2)$$

где

$$\omega_E^p = \frac{q}{m} \left(G - \frac{1}{\gamma^2 - 1} \right) \frac{\mathbf{E} \times \boldsymbol{\beta}}{c}; \quad \omega_B^p = \frac{q}{m} G \mathbf{B}_\perp. \quad (3)$$

Для исследования электрического дипольного момента протона предлагается использовать полностью электростатическое накопительное кольцо. Преимущество чисто электростатических структур (магнитное поле $B = 0$) особенно проявляется на “магической” энергии, когда вектор спина, изначально ориентированный в продольном направлении, вращается в горизонтальной плоскости с частотой ω_E^p .

При “магической” энергии

$$G - \frac{1}{\gamma_{\text{mag}}^2 - 1} = 0, \quad (4)$$

таким образом, для референсной частицы $\omega_{E,B}^p = 0$ (3), и ориентация спина относительно импульса определяется только сигналом ЭДМ $\frac{d\mathbf{S}}{dt} = \mathbf{S} \times \boldsymbol{\Omega}_{EDM}$. Это отличительное свойство структуры было предложено использовать для исследования ЭДМ, и такую структуру назвали структурой “замороженного спина” [3].

Далее примем следующую индексацию проекций спин-вектора $\mathbf{S} = (S_x, S_y, S_z)$ и пространственных переменных: z ориентировано по импульсу, x и y – горизонтальное и вертикальное направления соответственно.

Теперь введем определение спин-тьюна. Спин-тьюн в электростатическом кольце ν_s^E определяется как нормированная частота прецессии спина на орбитальную частоту частицы $\nu_s^E = \omega_E^p / \Omega_E^p$ и представляется в виде:

$$\nu_s^E = \left(G - \frac{1}{\gamma^2 - 1} \right) \gamma \beta^2. \quad (5)$$

В случае дейтронов с $G = -0.142$ единственно возможной структурой для поиска ЭДМ является накопительное кольцо с электрическим и магнитным полями [4]. Его можно реализовать, применив радиальное электрическое поле \mathbf{E}_x , чтобы сбалансировать вклад вертикального магнитного поля \mathbf{B}_y в Ω_{MDM}^p , как показано в уравнении (2):

$$E_x = \frac{GB_y c \beta \gamma^2}{1 - G \beta^2 \gamma^2}. \quad (6)$$

Частота прецессии вектора импульса в магнитном B -поле есть $\Omega_B^p = \frac{eB}{m\gamma}$. Аналогично мы находим спин-тьюн $\nu_s^B = \omega_B^p / \Omega_B^p$, в магнитном поле относительно импульса:

$$\nu_s^B = \gamma G. \quad (7)$$

Таким образом, и для протонов, и для дейтронов существует общее представление о том, как построить накопительное кольцо, и реализуется оно с помощью разных типов дефлекторов: E или $E + B$.

Спиновая хроматичность в протонных и дейтронных накопителях для поиска ЭДМ. Основная проблема при измерении ЭДМ состоит в том, чтобы обеспечить когерентное колебание спинов всех частиц для наблюдения роста поляризации, вызванного ЭДМ. Здесь мы рассматриваем спиновое движение ансамбля частиц в плоскости ускорителя для полностью электростатического или комбинированного $E + B$ кольца.

В полностью электростатическом протонном кольце [7] для частицы с энергией, отличной от “магической”, $p \neq p_{\text{mag}}$ нарушается условие (4):

$G - \frac{1}{\gamma^2 - 1} \neq 0$. Раскладывая $G - \frac{1}{\gamma^2 - 1}$ в ряд Тейлора вблизи $p = p_{\text{mag}}$, получим:

$$\left(G - \frac{1}{\gamma^2 - 1} \right)_{p=p_{\text{mag}}+\Delta p} = 0 + 2G \frac{\Delta p}{p_{\text{mag}}} - 3G \left(\frac{\Delta p}{p_{\text{mag}}} \right)^2 + o \left(\frac{\Delta p}{p_{\text{mag}}} \right)^2. \quad (8)$$

Для дейтронного пучка условие “замороженного спина” означает, что полная частота спин-прецессии в магнитном и электрическом поле равна нулю $\omega_E^p + \omega_B^p = 0$. Раскладывая $\omega_E^p + \omega_B^p$ в ряд Тейлора вблизи p_0 , при котором условие (6) выполнено, получим:

$$\begin{aligned} (\omega_E^p + \omega_B^p)_{p_0+\Delta p} &= \frac{e}{mc} (\mathbf{E} \times \boldsymbol{\beta}) \times \\ &\times \left[0 + \frac{2}{\gamma^2 - 1} \frac{\Delta p}{p_0} - \frac{1 + 3\gamma^2}{\gamma^2(\gamma^2 - 1)} \left(\frac{\Delta p}{p_0} \right)^2 + o \left(\frac{\Delta p}{p_0} \right)^2 \right]. \end{aligned} \quad (9)$$

Разница между условиями (8) и (9) для протонного и дейтронного колец состоит лишь в том, что в протонном накопителе используется выражение для магической энергии (4), а для дейтронного кольца – условие сохранения направления спина в $E+B$ дефлекторе (6) используется совместно с условием устойчивого движения по орбите под действием силы Лоренца: $e(c\boldsymbol{\beta} \times \mathbf{B} + \mathbf{E}) = \frac{m\gamma v^2}{R} \mathbf{e}_x$.

Учитывая, что вертикальная компонента электрического поля мала, и $\beta_{x,y} \ll \beta_z$, можно упростить уравнение (1), чтобы понять поведение спина качественно:

$$\begin{aligned} \frac{dS_x}{c\beta_z dt} &= -\frac{e}{m\gamma c^2} \frac{2}{\gamma^2 - 1} \frac{\Delta p}{p_0} \cdot E_x S_z, \\ \frac{dS_z}{c\beta_z dt} &= +\frac{e}{m\gamma c^2} \frac{2}{\gamma^2 - 1} \frac{\Delta p}{p_0} \cdot E_x S_x. \end{aligned} \quad (10)$$

В терминах нормализованной координаты $d\phi = 2\pi \times \times dn = 2\pi \frac{c\beta_z}{L_{\text{cir}}} dt$, где L_{cir} есть длина орбиты, получим:

$$\frac{d^2 S_z}{d\phi^2} + \left(\frac{e \bar{E}_x L_{\text{cir}}}{2\pi m c^2 \gamma} \frac{2}{\gamma^2 - 1} \frac{\Delta p}{p_0} \right)^2 \cdot S_z = 0. \quad (11)$$

При этом спин осциллирует в горизонтальной плоскости с тьюном $\nu_{sz} = \frac{e \bar{E}_x L_{\text{cir}}}{\pi m c^2 \gamma} \frac{1}{\gamma^2 - 1} \frac{\Delta p}{p_0}$, и $S_z = S_z^{\text{max}} \cos(2\pi \nu_{sz} \phi)$, где \bar{E}_x есть средняя компонента отклоняющего электрического поля, связанная с магнитной компонентой в $E + B$ дефлекторе соотношением (6).

Таким образом, благодаря спиновой хроматичности и разбросу импульса $\frac{\Delta p}{p_0}$ мы обнаруживаем, что спин каждой частицы колеблется со своей частотой, что, очевидно, приводит к спиновой декогеренции и

полной деполяризации пучка в определенный период, называемый временем спиновой когерентности.

Например, примем максимальный относительный разброс по импульсам, равный 10^{-4} , при этом разброс частот спин-прецессии $\Delta\nu_{sz} = 1.588 \cdot 10^{-4}$, или SCT = 6300 оборотов, что соответствует 1 мс.

Использование высокочастотного резонатора для увеличения SCT. Сначала рассмотрим спин-прецессию (9) в линейном приближении относительно импульса:

$$(\omega_E^p + \omega_B^p)_{p_0+\Delta p} = \frac{e}{mc} (\mathbf{E} \times \boldsymbol{\beta}) \frac{2}{\gamma^2 - 1} \frac{\Delta p}{p_0}. \quad (12)$$

Идея использования высокочастотного (ВЧ) резонатора для уменьшения разброса частот спин-прецессии частиц, имеющих энергию, отличную от магической, была предложена некоторое время назад другими авторами, например [8].

Очевидно, частица, колеблющаяся около уровня магической энергии с синхротронной частотой ν_{syn} также изменяет поведение спина. Это следует из уравнения (11) с $\frac{\Delta p}{p} = \left(\frac{\Delta p}{p}\right)_{\text{max}} \cos(\nu_{\text{syn}}\phi)$, описывающего колебания спина в присутствии ВЧ полей:

$$\frac{d^2 S_z}{d\phi^2} + \left(\frac{e\bar{E}_x L_{\text{cir}}}{\pi m c^2 \gamma} \frac{1}{\gamma^2 - 1} \left(\frac{\Delta p}{p}\right)_{\text{max}} \times \cos(\nu_{\text{syn}}\phi) \right)^2 \cdot S_z = 0. \quad (13)$$

Это уравнение описывает колебания маятника в быстро осциллирующем поле. Теперь, вместо осцилляций с частотой ν_{sz} , спин колеблется в пределах узкого угла Φ_{max} с ВЧ частотой $\Phi \sim \Phi_{\text{max}} \sin(\nu_{\text{syn}}\phi)$. Величина $\Phi_{\text{max}} \sim (\nu_{sz}/\Omega_{\text{syn}})^2$ зависит от отношения частот. При отношении $\nu_{sz}/\Omega_{\text{syn}} \sim 1 : 150$ спиновая абберация составляет $\Phi_{\text{max}} \sim 10^{-4}$, что пренебрежимо мало.

Разложение второго порядка спин-тьюна относительно $\Delta p/p$. Из выражения (9) можно найти частоту колебаний спина во втором приближении относительно импульса:

$$\frac{d^2 S_x}{d\phi^2} + \frac{e\bar{E}_x L_{\text{cir}}}{2\pi m c^2 \gamma} \left[\frac{2}{\gamma^2 - 1} \left(\frac{\Delta p}{p}\right) - \frac{1 + 3\gamma^2}{\gamma^2} \frac{1}{\gamma^2 - 1} \left(\frac{\Delta p}{p}\right)^2 \right]^2 \cdot S_x = 0, \quad (14)$$

и при наличии ВЧ поля спин-тьюн имеет ненулевое среднее значение:

$$\bar{\nu}_{sz} = \frac{e\bar{E}_x L_{\text{cir}}}{2\pi m c^2 \gamma} \frac{1 + 3\gamma^2}{\gamma^2} \frac{1}{2} \frac{1}{\gamma^2 - 1} \left(\frac{\Delta p}{p}\right)_{\text{max}}^2. \quad (15)$$

Итак, во втором приближении спин действительно совершает быстрые колебания с синхротронной частотой относительно среднего положения, которое, в свою очередь, колеблется с очень низкой частотой $\bar{\nu}_{sz} \sim (\Delta p/p)^2$, определяемой средним значением (15).

Но даже для относительно малого разброса по импульсам $(\Delta p/p) \sim 10^{-4}$, простые оценки показывают, что время спиновой когерентности $\text{SCT} \sim 200$ с. Этот результат был проверен с помощью программы COSY Infinity [9], и хорошо согласуется с нашей аналитической оценкой. Анализируя выражения (5) и (7), можно заключить, что члены нелинейной спиновой хроматичности существуют только в электростатических дефлекторах. Это означает, что время спиновой когерентности в основном определяется электрическими дефлекторами. И в протонном, и в дейтронном кольцах источником спиновой хроматичности является только электростатическое поле E , а магнитное поле B не влияет на спиновую хроматичность.

Удлинение орбиты как источник спиновой декогерентности. Первые работы, посвященные влиянию длины орбиты на частоту спин-прецессии, были посвящены изучению этого эффекта с целью достижения точной настройки энергии частиц в электрон-позитронных коллайдерах [10]. В работе [11] анализировалось влияние бетатронной хроматичности на декогеренцию спина.

Теперь мы обсудим второй источник спиновой декогеренции в ускорителях, связанный с влиянием различной длины орбиты частиц на так называемую эффективную энергию, которая, в свою очередь, определяет спиновую частоту [12–14].

Основной “принцип синхронного ускорения” Векслера и Макмиллана сформулирован в виде системы уравнений:

$$\begin{cases} \frac{d\phi}{dt} = -\omega_{rf}\eta\delta, \\ \frac{d\delta}{dt} = \frac{eV_{rf}\omega_{rf}}{2\pi h\beta^2 E} \sin\phi. \end{cases} \quad (16)$$

Здесь $\delta = \Delta p/p$ есть относительное отклонение по импульсу от равновесного синхронного значения, $\Delta p = p - p_s$, ϕ есть отклонение по фазе от синхронного значения (нет ускорения в накопительном режиме), η есть слип-фактор, E – полная энергия, β есть нормализованная скорость, eV_{rf} – набор энергии за один оборот с напряжением на зазоре V_{rf} , $\omega_{rf} = 2\pi h f_{\text{rev}}$ есть угловая частота ВЧ поля, h – номер гармоники поля, $f_{\text{rev}} = 1/T_{\text{rev}}$ – частота обращения.

Первое уравнение системы (16) вытекает непосредственно из “принципа синхронного ускорения”: частица с меньшим временем обращения прилетает раньше и попадает в более раннюю фазу ВЧ поля:

$$\frac{\Delta\phi}{\phi} = -\frac{\Delta T_{\text{rev}}}{T_{\text{rev}}}. \quad (17)$$

В первом приближении изменение длины орбиты C относительно импульса определяется как $\Delta C/C = \alpha_0 \cdot \delta$, и можно записать:

$$\frac{\Delta T_{\text{rev}}}{T_{\text{rev}}} = \frac{\Delta(C/v)}{C/v} = \frac{\Delta C}{C} - \frac{\Delta v}{v} = \left(\alpha_0 - \frac{1}{\gamma^2}\right). \quad (18)$$

Слип-фактор $\eta = \alpha_0 - 1/\gamma^2$ вводится как соотношение между отклонениями по времени обращения и импульсу:

$$\frac{\Delta T_{\text{rev}}}{T_{\text{rev}}} = \eta \cdot \delta. \quad (19)$$

Очевидно, что в случае сбачиванного пучка среднее за одно синхротронное колебание изменение времени обращения равно нулю. В первом приближении это следует из решения системы (16). Однако с использованием разложения более высокого порядка коэффициента сжатия орбит $\alpha = \alpha_0 + \alpha_1 \cdot \delta$ и отклонения по скорости $(v_s + \Delta v)^{-1} = v_s^{-1} \left[1 - \Delta v/v_s + (\Delta v/v_s)^2 - \dots\right]$ можно записать следующее выражение для отклонения по времени обращения:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta T_{\text{rev}}}{T_{\text{rev}}} &= \frac{\Delta C}{C} - \frac{\Delta v}{v_s} - \frac{\Delta C}{C} \frac{\Delta v}{v_s} + \left(\frac{\Delta v}{v_s}\right)^2 = \\ &= \left(\alpha_0 - \frac{1}{\gamma^2}\right) \cdot \delta + \left(\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta^2}{\gamma^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma^2} + \frac{1}{\gamma^4}\right) \cdot \delta^2. \end{aligned} \quad (20)$$

Кроме того, мы должны учесть слагаемое, отвечающее за бетатронное удлинение орбиты $(\Delta L/L)_\beta$:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta T_{\text{rev}}}{T_{\text{rev}}} &= \left(\alpha_0 - \frac{1}{\gamma^2}\right) \cdot \delta + \\ &+ \left(\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta^2}{\gamma^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma^2} + \frac{1}{\gamma^4}\right) \delta^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta. \end{aligned} \quad (21)$$

Следовательно, уравнения для продольного движения могут быть записаны в форме:

$$\begin{cases} \frac{d\phi}{dt} = -\omega_{rf} \left[\left(\alpha_0 - \frac{1}{\gamma^2}\right) \cdot \delta + \right. \\ \left. + \left(\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta^2}{\gamma^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma^2} + \frac{1}{\gamma^4}\right) \cdot \delta^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta \right], \\ \frac{d\delta}{dt} = \frac{eV_{rf}\omega_{rf}}{2\pi h\beta^2 E} \sin\phi. \end{cases} \quad (22)$$

Предположим, что $\phi \ll 1$, что соответствует $\cos\phi \sim 1$, и на основании системы (22) запишем уравнение для отклонения по импульсу δ :

$$\begin{aligned} \frac{d^2\delta}{dt^2} + \frac{eV_{rf}\omega_{rf}}{2\pi h\beta^2 E} \left(\alpha_0 - \frac{1}{\gamma^2}\right) \cdot \delta = -\frac{eV_{rf}\omega_{rf}}{2\pi h\beta^2 E} \times \\ \times \left[\left(\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta^2}{\gamma^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma^2} + \frac{1}{\gamma^4}\right) \cdot \delta^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta \right]. \end{aligned} \quad (23)$$

Из (21) следует, что среднее значение $\overline{\Delta T_{\text{rev}}/T_{\text{rev}}} \neq 0$, и определяется $\alpha_0, \alpha_1, \gamma$ и $\left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta$:

$$\frac{\overline{\Delta T_{\text{rev}}}}{T_{\text{rev}}} = \left(\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta^2}{\gamma^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma^2} + \frac{1}{\gamma^4}\right) \cdot \overline{\delta^2} + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta. \quad (24)$$

Как следует из уравнения (23), удлинение орбиты приводит к повышению равновесного уровня импульса, чтобы соответствовать основному “принципу синхронного ускорения”. Решая (23) с помощью асимптотических методов [15], мы можем определить влияние бетатронных колебаний, квадратичного члена фактора сжатия орбит α_1 и слип-фактора η на сдвиг равновесного уровня энергии $\Delta\delta_{eq}$:

$$\begin{aligned} \Delta\delta_{eq} = \frac{\gamma_s^2}{\gamma_s^2\alpha_0 - 1} \left[\frac{\delta_m^2}{2} \left(\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta_s^2}{\gamma_s^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma_s^2} + \frac{1}{\gamma_s^4}\right) + \right. \\ \left. + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta \right]. \end{aligned} \quad (25)$$

Из выражения (25) следует, что равновесная энергия различна для каждой частицы в сгустке. Этот уровень энергии, относительно которого колеблется частица, мы называем эффективной энергией.

В качестве примера представлены результаты расчета COSY Infinity [9] в электростатическом кольце (см. рис. 1), где равновесный уровень энергии по-

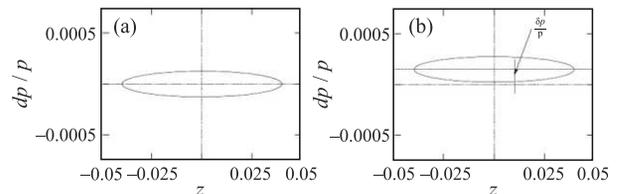


Рис. 1. (Цветной онлайн) Фазовая траектория в продольной плоскости для начальных координат $x = 0$, $y = 0$ (a) и $x = 3$ мм, $y = 0$ (b); начальное отклонение $dp/p = 1.2 \cdot 10^{-4}$

выпадает за счет бетатронного движения. В то же время из-за ненулевого коэффициента сжатия орбит второго порядка $\alpha_1 \neq 0$ фазовые траектории теряют симметрию в продольной плоскости по направлению импульса, что приводит к смещению равновесного значения импульса.

Бетатронное движение. Ниже мы определим параметры α_0, α_1 и $\left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta$, основываясь на простых геометрических соображениях. Считаем, что удлинение орбиты может происходить из-за относительного отклонения по импульсу δ и бетатронных осцилляций $\left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta$. Сначала рассмотрим случай удлинения орбиты из-за бетатронных осцилляций. Предположим, что частица характеризуется параметрами (x_β, x'_β) в конкретный момент времени. Из-за большего радиуса $\rho + x_\beta$ орбита удлиняется на фактор $(\rho + x_\beta)/\rho$ и, благодаря x'_β , удлиняется на фактор $1/\cos(x'_\beta)$. Вместе с вертикальным движением фактор удлинения есть $1/\cos\theta$, где $\theta = \sqrt{x'^2_\beta + y'^2_\beta}$. Следовательно, удлинение орбиты из-за бетатронных осцилляций есть:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta &= \frac{1}{L} \oint \left(\frac{\rho + x_\beta}{\rho \cos\theta} - 1\right) ds = \\ &= \frac{1}{L} \oint \left(\frac{x_\beta}{\rho} + \frac{x'^2_\beta + y'^2_\beta}{2}\right) ds. \end{aligned} \quad (26)$$

Так как $\langle \frac{x_\beta}{\rho} \rangle = 0$, $\langle x'^2_\beta \rangle = \frac{1}{2} \langle \frac{\epsilon_x}{\beta_x} \rangle$, $\langle y'^2_\beta \rangle = \frac{1}{2} \langle \frac{\epsilon_y}{\beta_y} \rangle$, и $\langle 1/\beta_{x,y} \rangle = \nu_{x,y}/\bar{R}$, удлинение орбиты благодаря бетатронному движению есть:

$$\left(\frac{\Delta L}{L}\right)_\beta = \frac{\pi}{2L} [\epsilon_x \nu_x + \epsilon_y \nu_y]. \quad (27)$$

Отклонение по импульсу. Вернемся к вопросу удлинения орбиты из-за отклонения по импульсу. Сперва определим линейную и угловую дисперсию:

$$\begin{aligned} D(s, \delta) &= D_0(s) + D_1(s) \cdot \delta; \\ D'(s, \delta) &= D'_0(s) + D'_1(s) \cdot \delta. \end{aligned} \quad (28)$$

В произвольной точке вдоль $ds = \rho d\theta$:

$$\begin{aligned} dl_1 &= (\rho + D_0 \cdot \delta + D_1 \cdot \delta^2) d\theta = \\ &= \left(1 + \frac{D_0}{\rho} \cdot \delta + \frac{D_1}{\rho} \cdot \delta^2\right) ds, \end{aligned} \quad (29)$$

$$\begin{aligned} dl_2 &= dl_1 \sqrt{1 + (D'_0 \delta)^2} = \left(1 + \frac{D_0}{\rho} \cdot \delta + \frac{D_1}{\rho} \cdot \delta^2\right) \times \\ &\times \left(1 + \frac{1}{2} (D'_0 \delta)^2\right) ds. \end{aligned} \quad (30)$$

В результате мы имеем:

$$l_2 = \oint \left[1 + \frac{D_0}{\rho} \cdot \delta + \left(\frac{D_1}{\rho} + \frac{1}{2} D'^2_0\right) \cdot \delta^2\right] ds. \quad (31)$$

Следовательно, удлинение орбиты благодаря отклонению по импульсу есть:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta C}{C} &= \frac{l_2 - C}{C} = \alpha_0 \delta + \alpha_1 \delta^2 + \dots; \\ \alpha_0 &= \left\langle \frac{D_0}{\rho} \right\rangle; \quad \alpha_1 = \left\langle \frac{D_1}{\rho} \right\rangle + \frac{1}{2} \langle D'^2_0 \rangle. \end{aligned} \quad (32)$$

В итоге мы получим выражение для отклонения равновесных уровней энергии из-за бетатронного движения и ненулевого нелинейного коэффициента сжатия орбит:

$$\begin{aligned} \Delta \delta_{eq} &= \frac{\gamma_s^2}{\gamma_s^2 \alpha_0 - 1} \left[\frac{\delta_m^2}{2} \left(\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta_s^2}{\gamma_s^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma_s^2} + \frac{1}{\gamma_s^4} \right) + \right. \\ &\quad \left. + \frac{\pi}{2L} (\epsilon_x \nu_x + \epsilon_y \nu_y) \right]. \end{aligned} \quad (33)$$

Рассмотрим на примере магнитного кольца, как удлинение орбиты влияет на декогеренцию спина в ускорителе. Как мы знаем, спин-тьюн $\nu_s = \gamma G$ в магнитном накопителе. Если отклонение равновесного уровня энергии $\Delta \gamma_{eq}$ зависит от параметров частиц, разброс частот спин-прецессии за N_t оборотов составляет:

$$2\pi \langle \Delta \nu_s \rangle = 2\pi G \langle \Delta \gamma_{eq} \rangle N_t. \quad (34)$$

Разброс частот спин-прецессии уменьшает время спиновой когерентности. Например, рассмотрим случай, когда время спиновой когерентности ограничено 1000 с ($\sim 10^9$ оборотов), и $\langle \Delta \gamma_{eq} / \gamma \rangle < 1$ рад/ $2\pi \gamma G N_t = 7 \cdot 10^{-11}$. Тогда, используя выражение (33), мы можем найти ограничение по разбросу по импульсам:

$$\langle \delta_m^2 \rangle < \left\langle \frac{\Delta \gamma_{eq}}{\gamma} \right\rangle \cdot \frac{2}{\beta^2} \cdot \frac{\gamma_s^2 \cdot (\gamma_s^2 \alpha_0 - 1)}{\gamma_s^4 \alpha_1 + \frac{3}{2} \beta_s^2 \gamma_s^2 - \gamma_s^2 \alpha_0 + 1}. \quad (35)$$

Например, для ускорителя COSY $\alpha_0 = 0.2$, $\gamma_s = 1.248$, $\alpha_1 = 2$. Пренебрежем вкладом бетатронного движения ($\epsilon_{x,y} \sim 0$), тогда среднеквадратичный разброс по импульсам не должен превышать величину $\langle \delta_m \rangle < 10^{-5}$. Уменьшая коэффициент сжатия орбит второго порядка до $\alpha_1 = 0.01$, получим $\langle \delta_m \rangle < 2 \cdot 10^{-5}$. Для полного исключения влияния разброса по импульсам на удлинение орбит выражение для $\Delta \delta_{eq}$ в уравнении (25) должно равняться нулю:

$$\alpha_1 + \frac{3}{2} \frac{\beta_s^2}{\gamma_s^2} - \frac{\alpha_0}{\gamma_s^2} + \frac{1}{\gamma_s^4} = 0. \quad (36)$$

Теперь оценим ограничение на величину эмиттанса:

$$\epsilon_{x,y}^{rms} < \left\langle \frac{\Delta \gamma_{eq}}{\gamma} \right\rangle \cdot \frac{1}{\beta_s^2} \cdot \frac{\gamma_s^2 \alpha_0 - 1}{\gamma_s^2} \cdot \frac{2L}{\pi \nu_{x,y}}. \quad (37)$$

Для ускорителя COSY предположим, что $\langle \delta_m \rangle \ll 10^{-5}$, тогда эмиттансы должны быть $\epsilon_{x,y}^{rms} < 1.4 \text{ мм} \cdot \text{мрад}$. Следовательно, мы можем заключить, что вклад в спиновую декогеренцию одинаков для $\epsilon_{x,y}^{rms} \approx 1 \text{ мм} \cdot \text{мрад}$ и $\delta_{rms} \approx 10^{-5}$.

Влияние спиновых резонансов на разброс частот спиновых колебаний. В упомянутых выше результатах по оптимизации SCT было показано, что в отсутствие спиновых резонансов спиновая декогеренция может быть полностью объяснена сдвигом равновесного уровня энергии. Для частиц, совершающих движение в вертикальной плоскости, на разброс частот спиновых колебаний дополнительно влияют спиновые резонансы [16]. Последние приводят к дополнительным зависящим от положения в фазовом пространстве/когерентным спин-кикам и, наконец, также влияют на SCT. Оба эти эффекта необходимо учитывать для оптимизации SCT пучка.

Внутренние резонансы представлены даже в машине без ошибок выставки элементов, характеризующейся периодичностью P для $\gamma G = KP \pm Q_y$, $K \in \mathbb{Z}$. Они вызваны спиновым возмущением из-за вертикального бетатронного движения. Резонансы несовершенств возникают при целых значениях спин-тьюна из-за возмущения спина на несовершенной замкнутой орбите.

Сравнивая поляризованные протонные машины с дейтронными, можно отметить, что высокое соотношение аномальных магнитных моментов протона и дейтрона $G_p/G_d \sim 13$ означает быструю спиновую декогеренцию протона и высокую чувствительность к спиновым резонансам. Последнее также объясняется уменьшением расстояния между резонансами с шагом по энергии $\Delta\gamma \sim 1/G$.

Один из способов предсказать влияние спиновых резонансов на SCT — сначала рассчитать их силу.

Силы внутренних резонансов, ϵ , можно рассчитать, используя определение: $\epsilon = 1/N_{\text{flip}}$, где N_{flip} — количество оборотов, за которое спин совершает полный поворот от начального вертикального направления. Энергия частицы должна быть фиксированной и равной резонансному значению. В этой ситуации инвариантная ось вращения \mathbf{n} лежит в плоскости кольца.

Силы целочисленных резонансов можно рассчитать как Фурье гармоники спиновых возмущений, вызванных горизонтальными полями на замкнутой орбите:

$$\epsilon_K = \frac{1}{2\pi} (1 + G\gamma) \oint \frac{1}{\chi_m} \frac{\partial B_x}{\partial y} y e^{iK\theta} dz. \quad (38)$$

Результат может быть верифицирован с помощью спин-трекинга.

Для одиночного резонанса Q_i отклонение спин-тьюна $\Delta\nu_s$ при отстройке $\delta = Q_i - \nu_0$ можно оценить для известного значения силы ϵ_i :

$$\Delta\nu_s(\nu_0) = \delta - \text{sign}(\delta) \cdot \sqrt{\delta^2 + \epsilon_i^2}. \quad (39)$$

Используя оценку $\epsilon_i \sim 10^{-3}$ для накопителя в диапазоне ГэВ [16] с частотой обращения $f_{\text{rev}} \sim 1 \text{ МГц}$, мы можем предсказать разброс частот спин-прецессии $\Delta f_s = \Delta\nu_s \cdot f_{\text{rev}}$. Для предполагаемой отстройки от резонанса $|\delta| = 0.1$ получим, что $\Delta\nu_s \sim 5 \cdot 10^{-6}$. Пусть SCT есть $\tau \sim 1/\Delta f_s$, тогда $\tau \sim 0.2 \text{ с}$. Эта оценка соответствует предварительным экспериментальным результатам, полученным в ходе сеансов на ускорителе COSY с протонами энергии $\gamma G = 2.06$. Данная величина SCT не достаточна для проведения экспериментов по поиску ЭДМ, требующих $\tau \sim 1000 \text{ с}$.

Для получения высоких значений SCT необходимо изучить общую картину спиновых резонансов. Из предсказанных результатов для COSY (см. рис. 2) [14] очевидно, что точка, в которой частицы

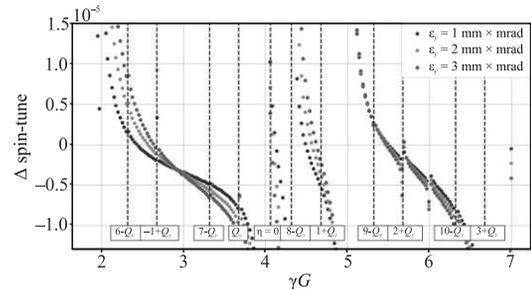


Рис. 2. (Цветной онлайн) Отклонения от референсного значения спин-тьюнов частиц с различными вертикальными бетатронными амплитудами для внутренних и целочисленных резонансов; вертикальная хроматичность $\xi_y = 0$. $\eta = 0$ есть точка нулевого спин-фактора без продольной группировки пучка

с разными бетатронными амплитудами имеют одинаковый спин-тьюн, является наиболее подходящей для эксперимента по поиску ЭДМ. Местоположение этой “точки пересечения” зависит от энергии пучка и для COSY соответствует $\gamma G \sim 3$. Аналогичные резонансные диаграммы можно получить и для других накопителей, чтобы предсказать необходимые параметры машины с точки зрения спиновой когерентности.

Заключение. Спиновая когерентность является ключевым свойством поляризованного пучка в экспериментах по поиску ЭДМ. Высокое SCT можно

получить, сначала группируя пучок с помощью ВЧ-резонатора, а затем выравнивая равновесные уровни энергии, сводя к минимуму разброс длин бета-тронных орбит для частиц в ступке и нелинейный коэффициент сжатия структуры. Эффективная равновесная энергия является скалярной характеристикой спинового движения пучка с распределением в 6D фазовом пространстве. Для достижения высоко-го SCT она должна быть одинаковой для всех частиц в пучке. Это видно из решения нелинейных уравнений продольного движения.

Спиновые резонансы действуют как еще один источник спиновой декогеренции. Их влияние необходимо учитывать особенно для протонного пучка во всем энергетическом диапазоне накопителя.

Исследование выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда # 22-42-04419, <https://rscf.ru/project/22-42-04419/>.

1. M. Aguilar, G. Alberti, B. Alpat et al. (AMS collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **110**, 141102 (2013).
2. A. Sakharov, *Pis'ma v ZhETF* **5**, 24 (1967) [A. Sakharov, *JETP Lett.* **5**, 24 (1967)].
3. F. J. M. Farley, K. Jungmann, J. P. Miller, W. M. Morse, Y. F. Orlov, B. L. Roberts, Y. K. Semertzidis, A. Silenko, and E. J. Stephenson, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 052001 (2004).
4. D. Anastassopoulos, V. Anastassopoulos, D. Babusci et al. (Collaboration), BNL Report, Brookhaven (2008).
5. F. Abusaif, A. Aggarwal, A. Aksentev et al. (CPEDM collaboration), CERN Yellow Reports: Monographs, 2021-003, CERN, Geneva (2021).
6. G. Guidoboni, E. Stephenson, S. Andrianov et al. (JEDI collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **117**, 054801 (2016).
7. Yu. Senichev, A. Lehrach, R. Maier, and D. Zyuzin, in *Proc. IPAC2011*, San Sebastián, Spain (2011), p. 2175.
8. A. P. Lysenko, A. A. Polunin, and Y. M. Shatunov, *Part. Accel.* **18**, 215 (1986).
9. COSY Infinity, <http://cosyinfinity.org>.
10. J. Wenninger, preprint CERN SL-note 97-06 OP, CERN, Geneva (1997).
11. I. A. Koop and Ju. M. Shatunov, in *Proc. EPAC1988*, Rome, Italy (1988), p. 738.
12. Yu. Senichev, R. Maier, and D. Zyuzin, in *Proc. IPAC2013*, Shanghai, China (2013), p. 2579.
13. A. A. Melnikov, A. E. Aksentyev, Yu. V. Senichev, and E. Syresin, in *Proc. IPAC-22*, Bangkok, Thailand (2022), p. 1832.
14. A. A. Melnikov, A. E. Aksentyev, Y. Senichev, and S. Kolokolchikov, in *Proc. IPAC'23*, Venezia, Italy (2023), p. 2350.
15. N. Bogolyubov and Yu. Mitropolsky, *Asymptotic Methods in the Theory of Non-Linear Oscillations*, Hindustan Publishing Corp., Delhi (1961).
16. S. Y. Lee, *Spin Dynamics and Snakes in Synchrotrons*, World Scientific, New Jersey (1997).

Spreading widths of giant monopole resonance in the lead region: Random matrix approach

N. N. Arsenyev⁺, A. P. Severyukhin^{+}, R. G. Nazmitdinov^{+*1)}*

⁺*Bogoliubov Laboratory of Theoretical Physics, Joint Institute for Nuclear Research, 141980 Dubna, Russia*

^{*}*Dubna State University, 141982 Dubna, Russia*

Submitted 3 October 2023
Resubmitted 13 October 2023
Accepted 17 October 2023

DOI: 10.31857/S1234567823220032, EDN: piipnj

The general idea on Giant Resonance (GR) decay properties as a consequence of the coupling of high-lying modes with the lowest collective vibrational modes [1–4] requires further development in light of discussion on the role of order and disorder (chaos) in nuclei [5, 6]. We recall, however, that the analysis of spreading widths, associated with the cascade of couplings and their fragmentations due to these couplings (cf. [7–10]), is a real challenge for nuclear structure theory. Nowadays, most successful attempts in this direction are restricted by the consideration of the microscopic coupling between one-phonon and two-particle-two-hole ($2p-2h$) or two-phonon configurations (see, e.g., discussion in [11–17]).

In this paper we suggest the alternative approach, based on ideas of the Random Matrix Theory (RMT) [18, 19], which enables us to count effectively the problem of the hierarchy at the description of spreading widths. To provide a detailed overview of our approach we consider only spherical or near-spherical nuclei around ^{208}Pb and focus our attention on the spreading width of Giant Monopole Resonances (GMRs). To demonstrate the validity of our approach we compare the results of: i) the microscopic calculations, based on the coupling between one-phonon and two-phonon configurations, so called phonon-phonon coupling (PPC); ii) the random matrix approach based on the one-phonon approximation; iii) available experimental data for $^{204,206,208}\text{Pb}$ nuclei.

To carry out the item i) we employ the modern development of the quasiparticle-phonon model, where the single-particle spectrum and the residual interaction are determined making use of the Skyrme interaction without any further adjustments [20]. By means of the finite rank separable approximation [21, 22] for the residual interaction we perform the calculations within the quasiparticle random phase approximation

(QRPA) in very large two-quasiparticle spaces. To construct wave functions of the excited 0^+ states up to 20 MeV we take into account all two-phonon terms that are built from the phonons of different multiplicities $\lambda^\pi = 0^+, 1^-, 2^+, 3^-, 4^+$, coupled to 0^+ state (see details in [23, 17, 24]). Following the basic ideas of the quasiparticle-phonon model [4], the Hamiltonian is then diagonalized in a space spanned by states composed of one and two phonons coupled by means of the microscopic coupling matrix elements (see details in [20, 25]). In the item ii) the statistical description of the GMR fragmentation is based on ideas from the RMT [26, 27]. Namely, the one-phonon states are generated by means of the QRPA calculations, while the coupling matrix elements between the one-phonon and two-phonon states are replaced by random matrix elements of the Gaussian Orthogonal Ensemble type. Within the framework of our approach the two-phonon model space is decomposed on two subspaces that are differently coupled to the QRPA states. On the larger energy scale the gross structure and structure effects of the GMRs are defined; that includes the random coupling to surface vibrations of a few strongest coupling matrix elements. On the smaller energy scale there is the random coupling to surface vibrations of a majority (small) matrix elements. This coupling is particularly responsible for the fine structure of the strength function in the energy region around the GMR.

To illustrate the quality of our approach, all numerical calculations have been done on the basis of the Skyrme forces SLy4 [28, 29]. Switching on the strong as well as the weak interactions, with the chosen values $\sigma_1 = 600$ keV and $\sigma_2 = 30$ keV, the RMT results are in a quite good agreement with those of the PPC (see Fig. 1). It is notable that the strength distribution of the GMR, obtained in this case, is rather close to the experimental distribution [30]. The remarkable agreement between the results of the PPC and the RMT calcula-

¹⁾e-mail: rashid@theor.jinr.ru

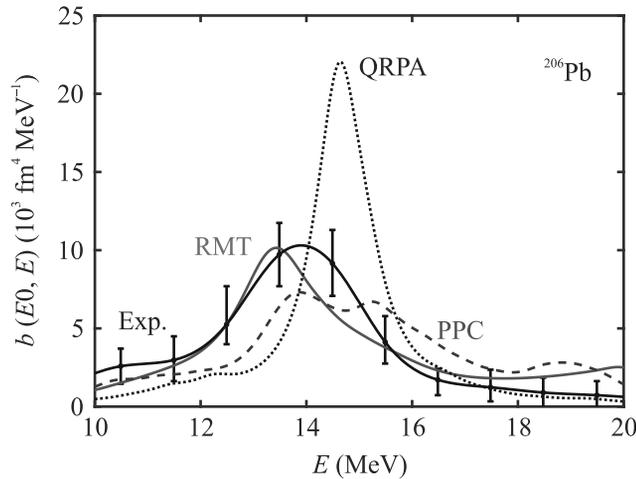


Fig. 1. (Color online) The monopole transition strength $b(E0, E)$ versus the transition energy E in the case of ^{206}Pb . The results, obtained by means of: i) the two-scale RMT approach are connected by (red) solid line; ii) the microscopic PPC calculations are connected by (blue) dashed line; iii) the QRPA approach are connected by (black) dotted line. For a comparison the experimental data [30] shown by (black) squares with error bars, smoothly interpolated, are connected by (black) thin line

tions for the GMR strength distribution of $^{204,206,208}\text{Pb}$ confirms the vitality and validity of our approach.

We are grateful to our friend Sven Åberg for the constant fruitful cooperation over the past years. All results, presented in this paper, have been discussed in detail with him. His criticisms led to significant improvements of the original version of the manuscript, which began two years ago.

N. N. Arsenyev acknowledges the financial support from the Russian Science Foundation (Grant #RSF-21-12-00061).

This is an excerpt of the article “Spreading widths of giant monopole resonance in the lead region: Random matrix approach”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023603020

1. A. Bohr and B. M. Mottelson, *Nuclear Structure*, Benjamin, N.Y. (1969).
2. V. G. Soloviev, Ch. Stoyanov, and A. I. Vdovin, *Nucl. Phys. A* **288**, 376 (1977).
3. G. F. Bertsch, P. F. Bortignon, and R. A. Broglia, *Rev. Mod. Phys.* **55**, 287 (1983).
4. V. G. Soloviev, *Theory of Atomic Nuclei: Quasiparticles and Phonons*, Institute of Physics, Bristol and Philadelphia (1992).
5. G. E. Mitchell, A. Richter, and H. A. Weidenmüller, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2845 (2010).

6. J. M. G. Gómez, K. Kar, V. K. B. Kota, R. A. Molina, A. Relaño, and J. Retamosa, *Phys. Rep.* **499**, 103 (2011).
7. H. Aiba and M. Matsuo, *Phys. Rev. C* **60**, 034307 (1999).
8. D. Lacroix and P. Chomaz, *Phys. Rev. C* **60**, 064307 (1999).
9. D. Lacroix and P. Chomaz, *Phys. Rev. C* **62**, 029901 (2000).
10. W. D. Heiss, R. G. Nazmitdinov, and F. D. Smit, *Phys. Rev. C* **81**, 034604 (2010).
11. J. Wambach, *Rep. Prog. Phys.* **51**, 989 (1988).
12. S. Kamenziev, J. Speth, and G. Terentychny, *Phys. Rep.* **393**, 1 (2004).
13. I. Hamamoto, H. Sagawa, and X. Z. Zhang, *Phys. Rev. C* **57**, R1064(R) (1998).
14. A. Shevchenko, O. Burda, J. Carter et al. (Collaboration), *Phys. Rev. C* **79**, 044305 (2009).
15. H. Aiba, M. Matsuo, S. Nishizaki, and T. Suzuki, *Phys. Rev. C* **83**, 024314 (2011).
16. N. Lyutorovich, V. Tselyaev, J. Speth, and P.-G. Reinhard, *Phys. Rev. C* **98**, 054304 (2018).
17. N. N. Arsenyev and A. P. Severyukhin, *Universe* **7**, 145 (2021).
18. T. A. Brody, J. Flores, J. B. French, P. A. Mello, A. Pandey, and S. S. M. Wong, *Rev. Mod. Phys.* **53**, 385 (1981).
19. M. L. Metha, *Random Matrices*, 3rd ed., Elsevier, Amsterdam (2004).
20. A. P. Severyukhin, V. V. Voronov, and N. van Giai, *Eur. Phys. J. A* **22**, 397 (2004).
21. A. P. Severyukhin, V. V. Voronov, and N. van Giai, *Phys. Rev. C* **77**, 024322 (2008).
22. N. van Giai, Ch. Stoyanov, and V. V. Voronov, *Phys. Rev. C* **57**, 1204 (1998).
23. A. P. Severyukhin, S. Åberg, N. N. Arsenyev, and R. G. Nazmitdinov, *Phys. Rev. C* **95**, 061305(R) (2017).
24. A. P. Severyukhin, S. Åberg, N. N. Arsenyev, R. G. Nazmitdinov, and K. N. Pichugin, *Phys. At. Nucl.* **79**, 835 (2016).
25. A. P. Severyukhin, N. N. Arsenyev, and N. Pietralla, *Phys. Rev. C* **86**, 024311 (2012).
26. A. P. Severyukhin, S. Åberg, N. N. Arsenyev, and R. G. Nazmitdinov, *Phys. Rev. C* **98**, 044319 (2018).
27. A. P. Severyukhin, S. Åberg, N. N. Arsenyev, and R. G. Nazmitdinov, *Phys. Rev. C* **104**, 044327 (2021).
28. E. Chabanat, P. Bonche, P. Haensel, J. Meyer, and R. Schaeffer, *Nucl. Phys. A* **635**, 231 (1998).
29. E. Chabanat, P. Bonche, P. Haensel, J. Meyer, and R. Schaeffer, *Nucl. Phys. A* **643**, 441 (1998).
30. D. Patel, U. Garg, M. Fujiwara et al. (Collaboration), *Phys. Lett. B* **726**, 178 (2013).

Linearly polarized gluon density in the rescaling model

N. A. Abdulov⁺, X. Chen^{*×}, A. V. Kotikov⁺¹⁾, A. V. Lipatov⁺⁰

⁺Joint Institute for Nuclear Research, 141980 Dubna, Russia

^{*}Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, 730000 Lanzhou, China

[×]School of Nuclear Science and Technology, University of Chinese Academy of Sciences, 100049 Beijing, China

⁰Skobel'syn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, 119991 Moscow, Russia

Submitted 16 October 2023

Resubmitted 16 October 2023

Accepted 19 October 2023

DOI: 10.31857/S1234567823220044, EDN: pilnho

Determination of parton (quark and gluon) distribution functions (PDFs) in a proton and nuclei is a rather important task for modern high energy physics. In particular, detailed knowledge on the gluon densities is necessary for experiments planned at the Large Hadron Collider (LHC) and future colliders, such as Electron-Ion Collider (EIC), Future Circular hadron-electron Collider (FCC-he), Electron-Ion Collider in China (EicC) and Nuclotron-based Ion Collider fAcility (NICA) [1–6]. For unpolarized cases, there are a distribution of unpolarized gluons, denoted as $f_g(x, Q^2)$, and a distribution of linearly polarized gluons $h_g(x, k_t^2, Q^2)$, which corresponds to interference between ± 1 gluon helicity states²⁾. Compared to $f_g(x, Q^2)$, function $h_g(x, k_t^2, Q^2)$ is currently poorly known³⁾ in comparison with $f_g(x, Q^2)$ and depends on the gluon transverse momentum k_t (so called Transverse Momentum Dependent, or TMD gluon density). A theoretical upper bound for $h_g(x, k_t^2, Q^2)$ was obtained [7, 8].

Previously, we have derived an analytical expression for linearly polarized gluon density in a proton and investigated its behavior at low x [9]. Our analysis was based on the small- x asymptotics for sea quark and gluon densities calculated in the generalized *double asymptotic scale* (DAS) approach [10–14] (see also [15]) and was done with leading order (LO) accuracy. In the present note we extend the consideration [9] for nuclei.

We follow the rescaling model [16–18] based on the assumption [19, 20] that the effective size of gluon and quark confinement in the nucleus is greater than in the free nucleon. Within the perturbative QCD, it was pointed out [16–20] that this confinement rescaling pre-

dicts that nPDFs and PDFs can be connected by simply scaling the argument Q^2 (see also a review [21]).

Initially, the rescaling model was proposed for the domain of valence quarks dominance, $0.2 \leq x \leq 0.8$, where x is the Bjorken variable. Recently it was extended to a small x [22–24], where certain shadowing and antishadowing effects⁴⁾ were found for the sea quark and gluon densities. Our main goal is to apply the rescaling model to linearly polarized gluon density $h_g(x, k_t^2, Q^2)$ and show its nuclear modification for small x values.

We found that the nuclear modification of linearly polarized gluon density is quite similar to the one of conventional gluon density, but polarized gluons are less affected by nuclear effects. So that, the derived expressions could be useful for subsequent phenomenological applications.

This is an excerpt of the article “Linearly polarized gluon density in the rescaling model”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023603196

-
1. D. P. Anderle, V. Bertone, X. Cao et al. (Collaboration), *Front. Phys. (Beijing)* **16**, 64701 (2021).
 2. X. Chen, F. K. Guo, C. D. Roberts, and R. Wang, *Few Body Syst.* **61**(4), 43 (2020).
 3. R. Abir, I. Akushevich, T. Altinoluk et al. (Collaboration), arXiv:2305.14572 [hep-ph].
 4. A. Arbutov, A. Bacchetta, M. Butenschoen et al. (Collaboration), *Prog. Part. Nucl. Phys.* **119**, 103858 (2021).
 5. V. M. Abazov, V. Abramov, L. G. Afanasyev et al. (Collaboration), arXiv:2102.00442 [hep-ex].

¹⁾e-mail: kotikov@theor.jinr.ru

²⁾In the literature, other notations $f_1^g(x, Q^2)$ and $h_1^g(x, k_t^2, Q^2)$ or $h_1^{\perp g}(x, k_t^2, Q^2)$ are also widely used.

³⁾See also recent review [6].

⁴⁾The investigations of shadowing and antishadowing effects (see [25–28] and [27, 28], respectively) have been started even before experimental data [29, 30] were appeared (see [31–33] for an overview).

6. R. Boussarie, M. Burkardt, M. Constantinou et al. (Collaboration), arXiv:2304.03302 [hep-ph].
7. P. J. Mulders and J. Rodrigues, Phys. Rev. D **63**, 094021 (2001)
8. D. Boer, W. J. den Dunnen, C. Pisano, M. Schlegel, and W. Vogelsang, Phys. Rev. Lett. **108**, 032002 (2012).
9. N. A. Abdulov, X. Chen, A. V. Kotikov, and A. V. Lipatov, arXiv:2310.08107 [hep-ph].
10. R. D. Ball and S. Forte, Phys. Lett. B **336**, 77 (1994).
11. L. Mankiewicz, A. Saalfeld, and T. Weigl, Phys. Lett. B **393**, 175 (1997).
12. A. V. Kotikov and G. Parente, Nucl. Phys. B **549**, 242 (1999).
13. A. Yu. Illarionov, A. V. Kotikov, and G. Parente Bermudez, Phys. Part. Nucl. **39**, 307 (2008).
14. G. Cvetič, A. Yu. Illarionov, B. A. Kniehl, and A. V. Kotikov, Phys. Lett. B **679**, 350 (2009).
15. A. De Rújula, S. L. Glashow, H. D. Politzer, S. B. Treiman, F. Wilczek, and A. Zee, Phys. Rev. D **10**, 1649 (1974).
16. R. L. Jaffe, F. E. Close, R. G. Roberts, and G. G. Ross, Phys. Lett. B **134**, 449 (1984).
17. O. Nachtmann and H. J. Pirner, Z. Phys. C **21**, 277 (1984).
18. F. E. Close, R. L. Jaffe, R. G. Roberts and G. G. Ross, Phys. Rev. D **31**, 1004 (1985).
19. F. E. Close, R. G. Roberts, and G. G. Ross, Phys. Lett. B **129**, 346 (1983).
20. R. L. Jaffe, Phys. Rev. Lett. **50**, 228 (1983).
21. R. L. Jaffe, arXiv:2212.05616 [hep-ph].
22. A. V. Kotikov, B. G. Shaikhatdenov, and P. Zhang, Phys. Rev. D **96**(11), 114002 (2017).
23. A. Kotikov, B. Shaikhatdenov, and P. Zhang, EPJ Web Conf. **204**, 05002 (2019).
24. A. V. Kotikov, B. G. Shaikhatdenov, and P. Zhang, Phys. Part. Nucl. Lett. **16**(4), 311 (2019); arXiv:1811.05615 [hep-ph].
25. L. Stodolsky, Phys. Rev. Lett. **18**, 135 (1967).
26. V. N. Gribov, ZhETF **57**, 1306 (1969).
27. N. N. Nikolaev and V. I. Zakharov, Phys. Lett. B **55**, 397 (1975).
28. V. I. Zakharov and N. N. Nikolaev, Sov. J. Nucl. Phys. **21**, 227 (1975).
29. M. Arneodo, A. Arvidson, J. J. Aubert et al. (European Muon Collaboration), Phys. Lett. B **211**, 493 (1988).
30. M. Arneodo, A. Arvidson, J. J. Aubert et al. (European Muon Collaboration), Nucl. Phys. B **333**, 1 (1990).
31. N. N. Nikolaev, Sov. Phys.-Uspekhi. **24**, 531 (1981).
32. V. Barone, M. Genovese, N. N. Nikolaev, E. Predazzi, and B. G. Zakharov, Z. Phys. C **58**, 541 (1993).
33. N. N. Nikolaev and B. G. Zakharov, Z. Phys. C **49**, 607 (1991).

Влияние облака вторичной плазмы на испарение макрочастиц в установках с магнитным удержанием

О. А. Бахарева¹⁾, В. Ю. Сергеев, И. А. Шаров

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, 195251 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 22 сентября 2023 г.

После переработки 11 октября 2023 г.

Принята к публикации 13 октября 2023 г.

Анализ экспериментальных данных о структуре углеводородных пеллетных облаков на гелиотроне LHD позволил сделать оценки относительных вкладов нейтрального и плазменного экранирования при испарении макрочастиц (пеллетов) в высокотемпературной замагниченной тороидальной плазме. В работе описана методика самосогласованного расчета скорости испарения макрочастицы, характерного размера пеллетного облака и концентрации электронов в его однократно ионизованной части с учетом нейтрального и плазменного экранирования. Для полистироловых макрочастиц, инжектированных в плазму установки LHD, такой расчет дает результаты, согласующиеся с экспериментальными, полученными в начальной фазе испарения, когда скорость испарения определяется тепловыми электронами, а влиянием надтепловой компоненты горячей плазмы на испарение можно пренебречь.

DOI: 10.31857/S1234567823220056, EDN: pinyqb

1. Введение. Одним из эффективных методов управления параметрами разряда и диагностики плазмы установок с магнитным удержанием является инжекция в нее макрочастиц (пеллетов) из различных материалов [1, 2]. Важной составляющей при реализации метода является модель испарения макрочастицы, описывающая скорость испарения и параметры пеллетного облака при известных локальных параметрах фоновой плазмы, размере и скорости макрочастицы.

Модель нейтрального экранирования NGS (*Neutral Gas Shielding*) топливных макрочастиц [3] была использована при получении закона подобия для предсказания измеряемых глубин проникновения в плазму [4]. Ряд важных физических механизмов в этой модели не учитывался: 1) распределение испаряющих частиц по энергии и возможный надтепловой характер такого распределения; 2) плазменное экранирование; 3) электростатическое экранирование; 4) неоднородность испарения по поверхности и др. Учет указанных механизмов приводит к увеличению или уменьшению расчетных значений скорости испарения. Этим объясняется [5] успешность предсказаний глубины проникновения макрочастиц с применением закона подобия [4] и модели [3]. Создание модели испарения, учитывающей указанные физические механизмы для предсказаний в различных экспериментальных условиях, остается

сложной актуальной задачей. Попытки создания моделей и кодов, самосогласованно рассчитывающих параметры пеллетного облака и скорость испарения макрочастицы, активно ведутся в настоящее время [6–9]. Заметим, что предсказательная способность модели зависит от результатов их верификации с экспериментальными данными.

Задачей данной работы является развитие модели нейтрального экранирования [10] с учетом самосогласованного расчета ослабления испаряющего теплового потока как нейтральной, так и плазменной компонентами облака. Разработанная модель нейтрального и плазменного экранирования NGPS (*Neutral Gas and Plasma Shielding*) позволила сравнить результаты расчетов с экспериментальными данными по скорости испарения углеводородной макрочастицы, характерным размерам и плотности пеллетного облака.

2. Модель плазменного и нейтрального экранирования (NGPS). В моделях испарения сферической макрочастицы типичными входными данными являются ее материал, скорость v_p и радиус r_p , а также параметры фоновой плазмы (для максвелловской плазмы – температура T_e и концентрация n_e электронов).

В данной работе развита модель, позволяющая самосогласованно рассчитать скорость испарения углеводородной макрочастицы \dot{N} с учетом ослабления испаряющего теплового потока как нейтральной, так и плазменной частью облака. При этом в модели так-

¹⁾e-mail: o.bakhareva@spbstu.ru

же рассчитывается характерный поперечный размер r_{cl} и концентрация n_{cl} холодных электронов облака. Расчетные значения температуры холодных электронов T_{cl} в модели подбираются с целью одновременно воспроизведения набора экспериментальных данных о \dot{N} , r_{cl} , n_{cl} , T_{cl} . Наиболее полный набор таких данных имеется в измерениях параметров пеллетных облаков с помощью изображающего полихроматора при испарении полистироловых $(C_8H_8)_n$ макрочастиц в гелиотроне LHD [11–13]. Поэтому в данной работе предсказания развиваемой модели NGPS сравниваются с этими измерениями, а скорость испарения имеет размерность числа мономеров C_8H_8 в секунду.

Фоновая плазма считается максвелловской и не учитывается электростатическое экранирование потока электронов фоновой плазмы, которое может возникать за счет разности потенциалов на границе пеллетного облака и фоновой плазмы. Одномерный расчет вдоль магнитного поля [14] демонстрирует, что значения потенциала могут быть сопоставимы со значением T_e/e . В работе [10] указывается, что двумерное рассмотрение этой задачи с учетом поперечных токов ионов в пеллетном облаке заметно снижает этот потенциал. Схематически картина испарения в выбранном нами приближении изображена на рис. 1.

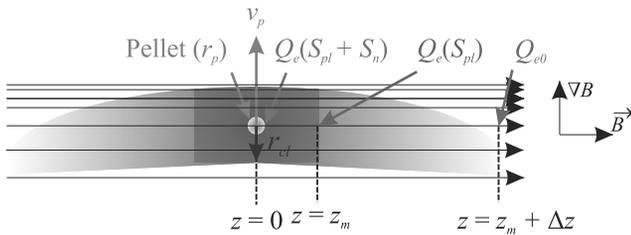


Рис. 1. (Цветной онлайн) Пояснительная схема к модели NGPS

В центре ($z = 0$) находится сферическая макрочастица с радиусом r_p , движущаяся со скоростью v_p поперек магнитного поля. Значение скорости v_p считается неизменным и используется для определения положения макрочастицы в текущий момент времени t . Вблизи макрочастицы находится облако испарившихся с ее поверхности нейтральных частиц, разлетающихся нормально от поверхности. По мере удаления от макрочастицы испаренное вещество прогревается, ускоряется, последовательно ионизируется, растекается вдоль направления z магнитного поля B и дрейфует в направлении большого радиуса установки в результате поляризации пеллетного облака в неоднородном магнитном поле [15].

Для нахождения скорости испарения макрочастицы под воздействием плотности теплового потока электронов фоновой плазмы

$$Q_{e0} = \frac{1}{4} n_e \sqrt{\frac{8T_e}{\pi m_e}} \cdot 2T_e \quad (1)$$

необходимо самосогласованно найти балансное значение S_{bal} суммарной интегральной толщины S нейтрального S_n и плазменного S_{pl} облаков

$$S = S_n + S_{pl} = \int_{r_p}^{\infty} (n_n(z) + n_{pl}(z)) dz, \quad (2)$$

при которой поток Q_{e0} будет ослаблен до значений $Q_{ep} = Q_e(S_{bal})$ у поверхности макрочастицы. Это определит скорость испарения

$$\dot{N} = \frac{Q_{ep}(S_{bal}) \cdot 2\pi r_p^2}{\varepsilon_s} = \frac{\delta \cdot Q_{e0} \cdot 2\pi r_p^2}{\varepsilon_s}, \quad (3)$$

и количество испаренного вещества для создания облаков с такой интегральной толщиной. Здесь n_n и n_{pl} – концентрации нейтральных и заряженных тяжелых частиц в нейтральном и плазменном облаках, $2\pi r_p^2$ – эффективная собирающая площадь поверхности макрочастицы для электронов [10], $\varepsilon_s \cong \cong 1.52 \text{ эВ}$ – энергия сублимации мономера полистирола C_8H_8 [16], δ – фактор экранирования теплового потока пеллетным облаком.

Текущий радиус полистироловой макрочастицы $r_p(t)$ в момент времени t рассчитывается в предположении сохранения сферичности с использованием зависимости скорости испарения в промежутке от 0 до t

$$r_p(t) = \left(r_{p0}^3 - \frac{3m_p}{4\pi\rho_p} \int_0^t \dot{N}(\tau) d\tau \right)^{1/3}. \quad (4)$$

Здесь r_{p0} – начальный радиус макрочастицы, $m_p = 1.73 \cdot 10^{-25} \text{ кг}$ – масса мономера, $\rho_p = 1050 \text{ кг} \cdot \text{м}^{-3}$ – плотность полистирола.

В модели NGS [10] скорость испарения \dot{N}_{NGS} и фактор нейтрального экранирования δ_{NGS} рассчитываются из балансного значения интегральной толщины облака нейтралов $S_{n,bal}^{NGS}$. На рисунке 2 показан пример определения $S_{n,bal}^{NGS}$ при нахождении испаряющейся полистироловой макрочастицы в разряде # 97812 LHD на большом радиусе 4.33 м [13] в момент измерения параметров плазменного облака с помощью полихроматора.

Плотность теплового потока электронов $Q_{ep}(S)$, проникающего до поверхности макрочастицы сквозь

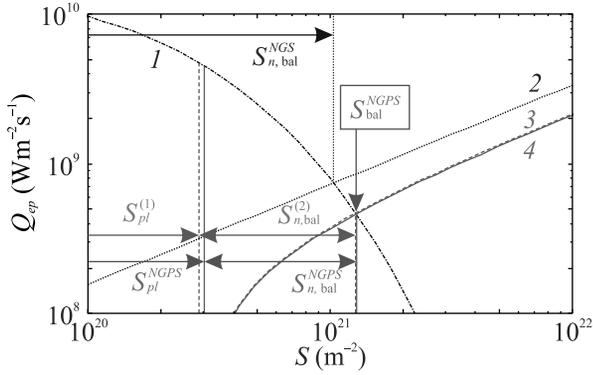


Рис. 2. (Цветной онлайн) Пример вычисления балансных значений интегральной оптической толщины пеллетных облаков в моделях NGS [10] и NGPS для #97812 LHD. Соответствующие параметры макрочастицы и фоновой плазмы указаны в табл. 1. Расчет по модели NGPS сделан при $T_{cl} = 2.5$ эВ, $\kappa = 2$ (отношение суммы излучательных и ионизационных потерь к ионизационным), $n_e = 1.4 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$, $T_e = 0.8$ кэВ, $r_p = 0.41$ мм

облако с интегральной толщиной S , показана кривой 1 на рис. 2. Падающая зависимость $Q_{ep}(S)$ получена из совместного решения уравнения торможения и кинетического уравнения для электронов (уравнения (2), (7) работы [10])

$$Q_{ep}(S) = \frac{4\pi}{m_e^{1/2}(2\pi T_e)^{3/2}} \int_0^1 \zeta d\zeta \int_0^\infty E^2 f_e(S, E, \zeta) dE,$$

$$f_a(S, E, \zeta) = n_e \sqrt{\frac{E_0(S, E, \zeta)}{E}} \times$$

$$\times \frac{L_e(E_0(S, E, \zeta))}{L_e(E)} \exp\left(\frac{E_0(S, E, \zeta)}{T_e}\right). \quad (5)$$

Здесь E_0 – энергия электронов фоновой плазмы, ζ –pitch-угол относительно направления магнитного поля, функция неупругих потерь энергии в пеллетном облаке

$$L_e(E) = \frac{Z_p}{B + C \cdot E} \quad (6)$$

и $Z_p = (1 + 6) \cdot 8 = 56$ в расчете на один мономер C_8H_8 . Здесь $B = 4.7 \cdot 10^{14} \text{ атом} \cdot \text{эВ}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$, $C = 8 \cdot 10^{11} \text{ атом} \cdot \text{эВ}^{-2} \cdot \text{см}^{-2}$, E – энергия электрона в эВ. Будем называть эту зависимость $Q_{ep}(S)$ кинетическим расчетом.

С другой стороны, при заданном Q_{e0} интегральная толщина нейтрального облака S_n растет с плотностью испаряющего поверхность макрочастицы теплового потока Q_{ep} (уравнение (12) работы

[10]). Эта зависимость получена решением системы гидродинамических уравнений в нейтральном облаке испаряющей макрочастицы

$$Q_{ep}(S_n) = \quad (7)$$

$$= 0.52 \left(\frac{S_n \cdot \varepsilon_s}{r_p} \right) \cdot \left[\frac{(Q_{e0} - Q_{ep}(S_n))(\gamma - 1)}{m_p S_n} \right]^{1/3},$$

где $\gamma = 8/6$ – показатель адиабаты испарившегося вещества [10]. Обычно для упрощения расчетов в уравнении (6) используется хорошо выполняющееся приближение $Q_{ep}(S_n) \ll Q_{e0}$. Будем называть эту зависимость $Q_{ep}(S_n)$, показанную на рис. 2 кривой 2, газодинамическим расчетом.

Из рисунка 2 видно, что пересечение кривых 1 и 2 дает балансное значение $S_{n,bal}^{NGS} \cong 1.04 \cdot 10^{21}$ мономеров/м², из которого с помощью выражения (3) определяются значения $\dot{N}_{NGS} \cong 3.29 \times 10^{21}$ мономеров $\cdot \text{с}^{-1}$ и $\delta_{NGS} \cong 0.044$. Текущий радиус макрочастиц $r_{p,NGS} = 0.41$ мм рассчитан с помощью уравнения (4) и расчетной зависимости \dot{N}_{NGS} ($R = v_p t$).

Для учета вклада плазменного экранирования в ослабление теплового потока ниже сделаны оценки поперечного размера r_{cl} , плотности n_{cl} и характерного продольного размера Δz плазменного облака с целью рассчитать S_{pl} . Использовались следующие приближения относительно структуры плазменной части облака. Полагается, что, начиная приблизительно с области $z \cong \pm z_m$, в которой достигается однократно ионизованное состояние испарившихся частиц, разлет облака переходит от радиального к одномерному разлету в цилиндрическом канале радиуса r_{cl} вдоль направления магнитного поля. Значение r_{cl} оценивается, исходя из нульмерного уравнения баланса энергии в “нейтральном” облаке, которое показано голубым прямоугольником на рис. 1 и имеет радиус r_{cl} и длину $2z_m$.

Предполагается, что энергия электронов фоновой плазмы $Q_e(S_{pl})$, поступающая на условную границу $z \cong z_m$ с эффективной поперечной площадью $2\pi r_{cl}^2$, расходуется на: 1) ε_s – испарение мономеров с поверхности макрочастицы; 2) $\varepsilon_a \cong A_i \cdot T_{cl}$ – приобретение испаренным веществом ($A_i = 16$ – количество атомов в мономере C_8H_8) направленной вдоль магнитного поля скорости порядка скорости звука при температуре T_{cl} в области однократной ионизации при $z \cong \pm \Delta z_m$; 3) $\varepsilon_h = 2A_i \cdot (3/2) \cdot T_{cl}$ – нагрев 16 ионов и 16 электронов до температуры T_{cl} ; 4) $\varepsilon_d = 73$ эВ – разрыв межатомных связей в мономере [16]; 5) $\varepsilon_i = (A_i/2) \cdot (11.26 + 13.6)$ эВ – однократную ионизацию 8 атомов углерода и 8 атомов

водорода; 6) ε_e – излучение, выходящее за пределы пеллетного облака, которое предполагается пропорциональным энергии, потраченной на ионизацию ε_i так, что $\varepsilon_e + \varepsilon_i = \kappa \cdot \varepsilon_i$. Коэффициент κ варьируется в расчетах в пределах от 1, что соответствует отсутствию потерь на излучение, до 2, что соответствует случаю, когда на каждую ионизацию облако теряет эквивалентную энергию посредством излучения из возбужденных состояний. Тогда для оценки r_{cl} получается следующее выражение:

$$r_{cl} = \sqrt{\frac{\varepsilon_s + \varepsilon_a + \varepsilon_h + \varepsilon_d + \kappa\varepsilon_i}{2\pi \cdot Q_e(S_{pl})}}. \quad (8)$$

Из значений скорости испарения \dot{N} (выраженной в мономерах/с) и радиуса облака r_{cl} можно оценить концентрацию электронов

$$n_{cl} = \frac{A_i \cdot \dot{N}}{2\pi r_{cl}^2 \cdot c_s} \quad (9)$$

в однократно ионизованной части облака, разлетающегося вдоль магнитного поля с ионно-звуковой скоростью [17]

$$c_s = \sqrt{\frac{4T_{cl}}{m_H + m_C}}, \quad (10)$$

где m_H и m_C – массы атомов водорода и углерода.

Для вычисления S_{pl} предполагалось, что спад концентрации ионов в облаке в направлении z экспоненциальный с характерной длиной Δz

$$n_{hv} = n_{hvm} \exp\left(-\frac{z - \Delta z_m}{\Delta z}\right). \quad (11)$$

Здесь $n_{hvm} = n_{C^+} + n_{H^+}$ – плотность ионов в точке Δz_m , соответствующей однократной ионизации испарившегося вещества. Данное предположение основано на аналитическом автотомельном решении задачи одномерного разлета плазмы с постоянной температурой [18], а также на результатах численного моделирования углеродных облаков в работе (рис. 11 работы [19]), где показано, что область быстрого роста температуры облака расположена вблизи макрочастицы, а по мере удаления от нее температура изменяется медленно. Для оценки продольного размера облака Δz делаются еще два предположения: 1) вещество покидает облако в поперечном к магнитному полю направлении с ускорением

$$g_{\perp} = -c_s^2 \frac{\nabla B}{B}, \quad (12)$$

возникающим в результате поляризации пеллетного облака в неоднородном магнитном поле с относительным градиентом $\nabla B/B$ [15]; 2) разлет облака продольно происходит со скоростью звука. Тогда величину Δz можно оценить как произведение

c_s на время прохождения радиуса макрочастицы с ускорением g_{\perp}

$$\Delta z = c_s(z) \sqrt{\frac{2r_{cl}}{g_{\perp}}} = c_s(z) \sqrt{\frac{2r_{cl}}{c_s(z)^2 \frac{\nabla B}{B}}} \approx \sqrt{\frac{2r_{cl}}{\frac{\nabla B}{B}}}. \quad (13)$$

Проинтегрировав выражение (13) от z_m до бесконечности и учитывая, что в области однократной ионизации суммарная концентрация тяжелых частиц равна концентрации электронов $n_{hvm} = n_{cl}$, получим следующее выражение для оценки интегральной толщины плазменного облака:

$$S_{pl} = \Delta z \frac{n_{cl}}{A_i} \left(1 - \exp\left(\frac{z_m}{\Delta z} - 2\right)\right). \quad (14)$$

Алгоритм вычисления параметров в модели NGPS описан ниже и использует понятие факторов нейтрального δ_n и плазменного δ_{pl} экранирования в соответствии с выражениями

$$Q_{ep}(S_{bal}) = \delta_n Q_e(S_{pl}) = \delta_n \delta_{pl} Q_{e0} = \delta Q_{e0}. \quad (15)$$

В месте нахождения макрочастицы задаются r_p , T_e , n_e , $\nabla B/B$. Текущий радиус r_p рассчитывается из уравнения (4) с использованием зависимости скорости испарения $\dot{N}_{NGPS}(\tau)$ в промежуток времени от 0 до t . Величина z_m берется из скейлинга [13] для положения вдоль z максимума излучения линии H_{β} , в котором, как показано в работе [13], более 90 % водорода ионизовано. В расчетах варьируются величины $k = 1-2$ и $T_{cl} = 2-3$ эВ с целью наилучшего описания набора имеющихся экспериментальных данных о \dot{N} , r_{cl} , n_{cl} , T_{cl} .

На первом шаге расчета по модели нейтрально-плазменного экранирования N_{GPS} вычисляются скорость испарения \dot{N}_{NGS} и фактор нейтрального экранирования δ_{NGS} по модели нейтрального экранирования. Далее, фактор плазменного экранирования оценивается как $\delta_{pl}^{(1)} \cong \delta_{NGS}^{1/2}$ согласно анализу, сделанному в работах [5, 20]. Это позволяет определить на первом шаге $Q_e(S_{pl}) = \delta_{pl}^{(1)} Q_{e0}$ и вычислить $r_{cl}^{(1)}$, $n_{cl}^{(1)}$, $\Delta z^{(1)}$, $S_{pl}^{(1)}$ из уравнений (8), (9), (13), (14) соответственно. Верхним индексом обозначается номер шага итерации.

На втором шаге вычисляется плотность ослабленного теплового потока (5), доходящего до условной границы нейтрального облака, $Q_{e,pl}^{(2)} = Q_e(S_{pl}^{(1)}) \cong \cong 4.8 \cdot 10^9$ Вт · м⁻², что показано левым синим вертикальным пунктирным отрезком на рис. 2. Затем ищется баланс для интегральной толщины нейтрального облака $S_n = S - S_{pl}^{(1)}$ путем приравнивания плотности теплового потока у поверхности макрочастицы

$Q_e(S, n_e, T_e)$ из кинетического расчета (5) (кривая 1 на рис. 2) и

$$Q_{ep}(S) = 0.52 \left(\frac{(S - S_{pl}^{(1)}) \cdot \varepsilon_s}{r_p} \right) \cdot \left[\frac{Q_{e,pl}^{(2)} \cdot (\gamma - 1)}{m_p \cdot (S - S_{pl}^{(1)})} \right]^{1/3} \quad (16)$$

из газодинамического расчета (кривая 3 на рис. 2). Уравнение (16) получено из скейлинга (7) с учетом того, что в нейтральном облаке расходуется практически весь поступающий на него тепловой поток с плотностью $Q_{e,pl}^{(2)}$. Таким образом определяются значения $S_{bal}^{(2)} = S_{pl}^{(1)} + S_{n,bal}^{(2)} \cong (3.03 + 9.89) \times 10^{20}$ мономеров/м² и $Q_e(S_{bal}^{(2)}) \cong 4.7 \cdot 10^8$ Вт · м⁻², показанные на рис. 2 правым синим вертикальным пунктирным отрезком (расчет сделан для значений $T_{cl} = 2.5$ эВ и $k = 2$). Величина $\dot{N}_{NGPS}^{(2)}$ находится из значения $Q_e(S_{bal}^{(2)})$ и уравнения (3). Далее находятся величины $r_{cl}^{(2)}$, $n_{cl}^{(2)}$, $\Delta z^{(2)}$ из уравнений (8), (9), (13) и корректируется значение $S_{pl}^{(2)}$, подаваемое на вход следующего шага. Для лучшей сходимости алгоритма в качестве нового приближения для $S_{pl}^{(2)}$ берется среднее значение между $S_{pl}^{(1)}$ и величиной, вычисленной по формуле (14) при значениях $r_{cl}^{(2)}$, $n_{cl}^{(2)}$, $\Delta z^{(2)}$ и $\dot{N}_{NGPS}^{(2)}$.

Процедура повторяется до тех пор, пока величина $S_{pl}^{(i)}$ не совпадет со значением, вычисленным на предыдущем шаге $S_{pl}^{(i-1)}$ с заданной точностью, скажем, 5% от ее величины $S_{pl}^{(i)}$. Таким образом определяется балансное значение $S_{bal}^{NGPS} = S_{pl}^{(i-1)} \approx S_{pl}^{(i)}$, при котором вычисляются $S_{n,bal}^{NGPS}$ и \dot{N}_{NGPS} . Для условий, соответствующих рис. 2, $S_{n,bal}^{NGPS} + S_{pl}^{NGPS} \cong (3.05 + 9.84) \cdot 10^{20}$ мономеров/м², это решение показано сплошными вертикальными отрезками, а сплошная кривая 4 соответствует зависимости $Q_e(S)$, полученной из газодинамического расчета (16) при $S_{pl}^{(2)}$. В силу быстрой сходимости алгоритма, решение в приведенном примере получено на третьем шаге: $S_{pl}^{NGPS} = S_{pl}^{(2)} \approx S_{pl}^{(3)}$.

Из рисунка 2 видно, что интегральная толщина облака, найденная по плазменно-нейтральной модели $S_{bal}^{NGPS} \cong 1.29 \cdot 10^{21}$ мономеров/м², получается приблизительно на 30% больше, чем интегральная толщина облака, рассчитанная для тех же n_e , T_e , r_p по нейтральной модели $S_{n,bal}^{NGS} \cong 1.0 \cdot 10^{21}$ мономеров/м². Значения плотности теплового потока на поверхности макрочастицы при учете плазменного экранирования снижаются приблизительно в 1.5 раза – со значения $7.4 \cdot 10^8$ Вт · м⁻² (по NGS модели) до $4.6 \cdot 10^8$ Вт · м⁻²

(по NGPS модели). Это приводит, соответственно, к уменьшению расчетной скорости испарения от $\dot{N}(Q_{ep}(S_{n,bal}^{NGS})) \cong 3.3 \cdot 10^{21}$ мономеров · с⁻¹ до $\dot{N}_{NGPS} \cong 2.0 \cdot 10^{21}$ мономеров · с⁻¹ (см. табл. 1). Интегральная толщина нейтральной части облака по NGPS модели $S_{n,bal}^{NGPS} \cong 9.8 \cdot 10^{20}$ мономеров/м² слабо отличается от $S_{n,bal}^{NGS}$ и оказывается приблизительно в 3 раза больше, чем интегральная толщина плазменной части облака $S_{pl}^{NGS} \cong 3.0 \cdot 10^{20}$ мономеров/м². Приблизительное равенство $S_{n,bal}^{NGPS}$ и $S_{n,bal}^{NGS}$ связано со следующим обстоятельством. Как отмечалось в работе [10], ослабление максвелловского теплового потока электронов в облаке грубо может быть представлено как уменьшение его значения при неизменной температуре, а интегральная толщина в нейтральной модели $S_{n,bal}$ слабо зависит от концентрации поступающих на облако электронов, но существенно зависит от их температуры.

Таблица 1. Локальные параметры фоновой плазмы, экспериментально измеренные и рассчитанные по модели NPGS параметры макрочастицы и пеллетного облака, в момент их измерения изображающим полихроматором для разрядов с инжекцией полистироловых макрочастиц в LHD

#	97812	97814
$n_e, 10^{19} \text{ м}^{-3}$	1.4	1.9
$T_e, \text{ кэВ}$	0.8	1.3
$v_p, \text{ м/с}$	467	462
$\dot{N}_{C8H8}, 10^{21} \text{ с}^{-1}$	2.3*	5.1*
$r_{p,C8H8}, \text{ мм}$	0.4	0.22
$n_{ce}, 10^{22} \text{ м}^{-3}$	8.2	14.4
$T_{ce}, \text{ эВ}$	2.2	2.2
$r_{H\beta}, \text{ мм}$	2.6	2.0
$r_{CII}, \text{ мм}$	4.4	4.0
$\nabla B/B, 10^{-4} \text{ м}^{-1}$	1.13	1.00
$z_m, \text{ мм}$	5.4	4
Результаты моделирования		
κ	2	2
$T_{cl}, \text{ эВ}$	2.5	2.5
$\dot{N}_{NGS}, 10^{21} \text{ с}^{-1}$	3.3*	4.6*
$r_{p,NGS}, \text{ мм}$	0.39	0.28
$\dot{N}_{NGPS}, 10^{21} \text{ с}^{-1}$	2.0*	3.2*
$r_{p,NGPS}, \text{ мм}$	0.41	0.31
$n_{cl}, 10^{22} \text{ м}^{-3}$	8.3	20.8
$r_{cl}, \text{ мм}$	2.7	2.2

*В мономерах C₈H₈.

3. Результаты моделирования испарения полистироловых макрочастиц на стеллараторе LHD. В таблице 1 представлены параметры полистироловых макрочастиц, пеллетных облаков и локальные параметры фоновой плазмы в момент фотографирования облака с помощью изображающего

полихроматора для двух разрядов установки LHD с мощностью нагрева нейтральными пучками 9.3 МВт, тороидальным магнитным полем 2.75 Тл [11–13]. Инжекция велась в экваториальной плоскости установки со стороны слабого магнитного поля. Здесь n_e и T_e – измеренные концентрация и температура фоновой плазмы; скорость $v_p \cong 470$ м/с и начальный радиус $r_{p0} \cong 0.45$ мм макрочастиц в этих разрядах близки; n_{ce} и T_{ce} – измеренные концентрация [12] и температура [11] электронов облака; экспериментальные скорость испарения \dot{N}_{CSHS} и радиус $r_{p,CSHS}$ макрочастиц в момент измерения параметров облаков с помощью изображающего полихроматора, поперечные размеры облака (половина расстояния между максимумами на поперечном распределении интенсивности излучения) $r_{H\beta}$ и r_{CII} в линиях $H\beta$ и CII , величины $\Delta B/B$, z_m известны из экспериментальных данных [9].

Результаты моделирования испарения по моделям NGS и NGPS представлены в табл. 1 и иллюстрируются на рис. 3, 4. В разряде # 97812 экспериментальные скорости испарения \dot{N}_{CSHS} сравниваются с рассчитанными по моделям \dot{N}_{NGS} и \dot{N}_{NGPS} . Из рисунка 3 видно, что вариация параметров модели плазменно-нейтрального экранирования $T_{cl} = (2-3)$ эВ и $\kappa = (1-2)$ незначительно влияют на результат моделирования скорости испарения \dot{N}_{NGPS} . В дальнейшем расчеты велись при значениях $T_{cl} = 2.5$ эВ и $\kappa = 2$.

На начальной стадии испарения в области $R \geq 4.33$ м скорость испарения \dot{N}_{NGPS} , найденная по модели плазменно-нейтрального экранирования, хорошо согласуется с экспериментально измеренными значениями. Модель NGS [10] в этой области дает завышенные до двух раз значения \dot{N}_{NGS} по сравнению с экспериментальными значениями \dot{N}_{CSHS} . Ближе к центру плазменного шнура экспериментально измеренная скорость испарения становится выше рассчитанной как по NGS, так и по NGPS моделям. По всей видимости, как обсуждается в работе [21] для испарения водородных макрочастиц в LHD и для испарения Li макрочастиц в Heliotron-E [22], это происходит благодаря заметному увеличению скорости испарения под воздействием надтепловых ионов при NBI нагреве плазмы. В обсуждаемых в нашей работе NGS и NGPS моделях этот механизм не учитывается. В результате в эксперименте макрочастица начинает испаряться при $R \leq 4.33$ м с заметно большими скоростями испарения, чем это предсказывается плазменно-нейтральной моделью. При этом глубина проникновения макрочастицы в плазму, вычисленная по модели NGS [10],

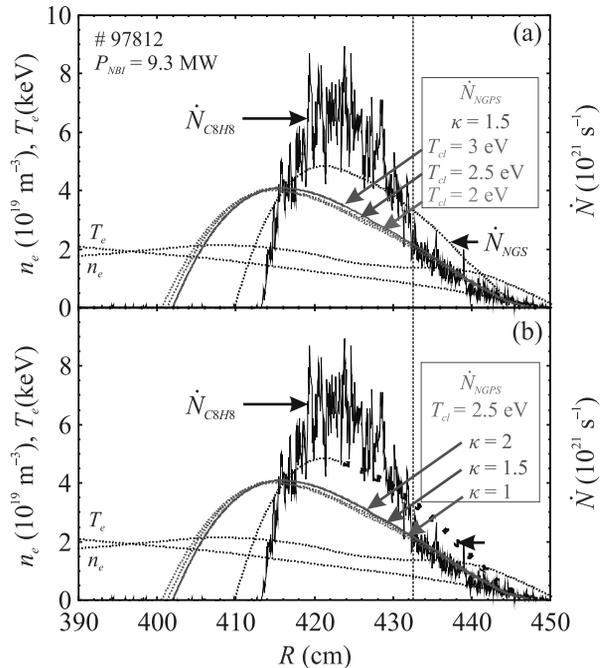


Рис. 3. (Цветной онлайн) Влияние вариации параметров модели NGPS на результат моделирования кривой испарения в разряде #97812 LHD. Вертикальными пунктирными линиями отмечено положение макрочастицы во время измерения параметров облака с помощью изображающего полихроматора [11–13]

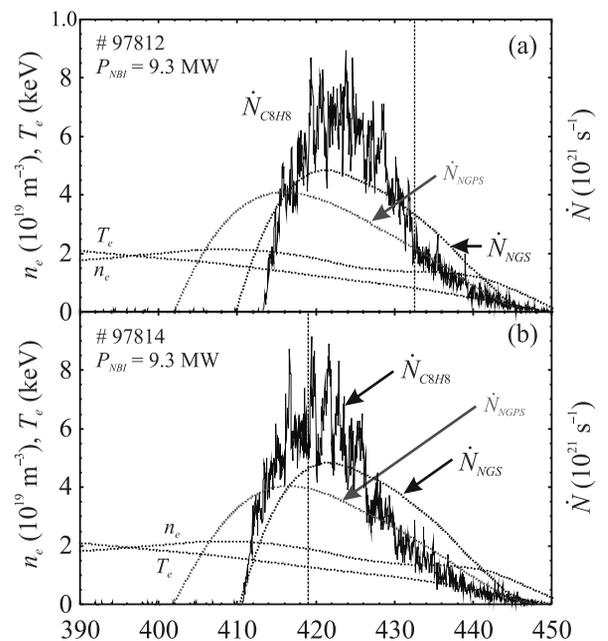


Рис. 4. (Цветной онлайн) Сравнение экспериментальных и расчетных кривых испарения полистироловых макрочастиц в разрядах # 97812 и # 97814 LHD. Расчет по модели NGPS выполнен при $T_{cl} = 2.5$ эВ и $\kappa = 2$

в конечном итоге оказывается ближе к экспериментально наблюдаемой.

Похожие результаты имеют место и для разряда #97814, эволюция скорости испарения для которого показана на рис. 4б. Это демонстрирует, как упоминалось выше, что учет различных механизмов приводит к увеличению или уменьшению расчетных значений скорости испарения вблизи значений, предсказываемых моделью нейтрального экранирования. Таким образом, в модели NGS не учитывается плазменное экранирование и испарение надтепловыми ионами. Это приводит к взаимной компенсации при расчете скорости испарения, и, как следствие, к лучшему совпадению с экспериментальными значениями скорости испарения в области повышенного из-за надтепловых ионов испарения и глубины проникновения макрочастицы.

Как видно из рис. 2, 3, в разряде #97812 момент измерения параметров пеллетного облака приходится на начало области повышенного испарения, и значение $r_{p,NGPS} = 0.41$ мм, рассчитанное по модели NGPS, близко к экспериментальному $r_{p,CSPs} = 0.4$ мм. Для этого разряда расчет по модели NGPS при $T_{cl} = 2.5$ эВ и $\kappa = 2$ дает значения $\dot{N}_{NGPS} = 2.1 \cdot 10^{21}$ мономеров/с, $n_{cl} = 8.3 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$, $r_{cl} = 0.27$ см. Таким образом, вычисленная в модели концентрация однократно ионизованной части облака n_{cl} также неплохо согласуется с экспериментально измеренными значениями концентрации холодных электронов $n_{ce} = 8.2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Вычисленный характерный поперечный размер однократно ионизованной части облака r_{cl} лежит в диапазоне между $r_{H\beta} = 0.26$ см и $r_{СП} = 0.44$ см, содержащем область, в которой, по нашим представлениям, будет преобладать состояние однократной ионизации ионов C^+ и H^+ . Неплохое согласование одновременно расчетной скорости испарения, концентрации электронов и характерного поперечного размера облака с соответствующими экспериментальными значениями получено впервые в модели нейтрально-плазменного экранирования для условий, в которых незначительно влияние надтепловых ионов на испарение. В разряде #97814 момент измерения параметров облака производится на более поздней стадии испарения, где имеет место значительное влияние надтепловых ионов на процесс испарения и на формирование пеллетных облаков. Соответственно, скорость испарения, размеры и плотность облака, найденные по модели NGPS без учета надтепловых ионов, не воспроизводят экспериментально измеренные величины, как видно из табл. 1. Вычисление скорости испарения макрочастицы и параметров облака в областях с заметной по-

пуляцией надтепловых ионов в принципе возможно при дальнейшем усовершенствовании нейтрально-плазменной модели, в которой будет учтено взаимодействие быстрых частиц фоновой плазмы с пеллетными облаками, как это сделано, например, в работах [21, 22].

4. Заключение. Развита модель, позволяющая самосогласованно вычислять скорость испарения макрочастицы и параметры пеллетных облаков с учетом не только нейтрального, но и плазменного экранирования. Модель верифицирована на экспериментальных данных по испарению полистироловых макрочастиц на гелиотроне LHD.

В области, где можно пренебречь влиянием быстрых частиц на испарение, скорость испарения, вычисленная по модели нейтрального и плазменного экранирования, расчетные значения радиуса и плотности плазменного пеллетного облака неплохо соответствуют экспериментально измеренным величинам. При этом расчетная скорость испарения по модели только нейтрального экранирования в этой области примерно в 1.5–2 раза превышает измеренные экспериментальные значения.

В областях, где можно ожидать значительного влияния быстрых ионов на испарение макрочастицы и на формирование облака холодной вторичной плазмы, предсказания модели отличаются от экспериментальных измерений. Поэтому требуется дальнейшее усовершенствование модели нейтрально-плазменного экранирования посредством учета взаимодействия быстрых частиц фоновой плазмы с пеллетными облаками.

Работа поддержана ГК Росатом и Минобрнауки России в рамках Федерального проекта 3 (УЗ), проект #FSEG-2023-0018 “Разработка и создание систем струйной и пеллет инжекции с повышенными производительностью и ресурсом”.

-
1. B. V. Kuteev, Tech. Phys. **44**, 1058 (1999).
 2. B. Pégourié, Plasma Phys. Control. Fusion **49**, R87 (2007).
 3. P. B. Parks and R. J. Turnbull, Phys. Fluids **20**, 1735 (1978).
 4. L. R. Baylor, G. L. Schmidt, W. A. Houlberg, S. L. Milora, C. W. Gowers, W. P. Bailey, M. Gadeberg, P. Kupschus, J. A. Tagle, D. K. Owens, D. K. Mansfield, and H. K. Park, Nucl. Fusion **32**, 2177 (1992).
 5. V. A. Rozhansky and I. Y. Senichenkov, Plasma Phys. Rep. **31**, 993 (2005).
 6. L. L. Lengyel, K. Büchl, G. Pautasso, L. Ledl, A. A. Ushakov, S. Kalvin, and G. Veres, Nucl. Fusion **39**, 791 (1999).

7. F. Koechl, B. Pégourié, A. Matsuyama, H. Nehme, V. Waller, D. Frigione, L. Garzotti, G. Kamelander, V. Parail, and JET EFDA contributors, *J. E. (2012), Modelling of pellet particle ablation and deposition: the hydrogen pellet injection code HPI2*, EUROfusion Preprint EFDA-JET-PR(12)57 (2012); <https://scipub.euro-fusion.org/wp-content/uploads/2014/11/EFDP12057.pdf>.
8. R. Samulyak, S. Yuan, N. Naitlho, and P. Parks, *Nucl. Fusion* **61**, 046007 (2021).
9. J. McClenaghan, L. Lao, P. Parks, W. Wu, J. Zhang, and V. Chan, *Nucl. Fusion* **63**, 036015 (2023).
10. V. Y. Sergeev, O. A. Bakhareva, B. V. Kuteev, and M. Tendler, *Plasma Phys. Rep.* **32**, 363 (2006).
11. I. A. Sharov, V. Y. Sergeev, I. V. Miroshnikov, N. Tamura, B. V. Kuteev, and S. Sudo, *Rev. Sci. Instrum.* **86**, 043505 (2015).
12. I. A. Sharov, V. Y. Sergeev, I. V. Miroshnikov, B. V. Kuteev, N. Tamura, and S. Sudo, *Tech. Phys. Lett.* **44**, 384 (2018).
13. I. A. Sharov, V. Yu. Sergeev, I. V. Miroshnikov, N. Tamura, and S. Sudo, *Plasma Phys. Control. Fusion* **63**, 065002 (2021).
14. V. A. Rozhansky, *Sov. J. Plasma Phys.* **15**, 638 (1989).
15. V. Rozhansky, I. Senichenkov, I. Veselova, and R. Schneider, *Plasma Phys. Control. Fusion* **46**, 575 (2004).
16. S. J. Blanksby and G. B. Ellison, *Acc. Chem. Res.* **36**, 255 (2003).
17. Л. Г. Лойцянский, *Механика жидкости и газа*, учеб. для вузов, 7-е изд., испр., Дрофа, М. (2003).
18. В. А. Рожанский, *Теория плазмы*, Лань, СПб. (2012).
19. D. K. Morozov, V. I. Gervids, I. Y. Senichenkov, I. Y. Veselova, V. A. Rozhansky, and R. Schneider, *Nucl. Fusion* **44**, 252 (2004).
20. O. A. Bakhareva, V. Y. Sergeev, and I. A. Sharov, *JETP Lett.* **117**, 207 (2023).
21. A. Matsuyama, B. Pégourié, R. Sakamoto, J. S. Mishra, G. Motojima, and H. Yamada, *Plasma Phys. Control. Fusion* **54**, 035007 (2012).
22. V. Y. Sergeev, K. V. Khlopenkov, B. V. Kuteev, S. Sudo, K. Kondo, H. Zushi, S. Besshou, F. Sano, H. Okada, T. Mizuuchi, K. Nagasaki, T. Obiki, and Y. Kurimoto, *Plasma Phys. Control. Fusion* **40**, 1785 (1998).

Rattling phonon modes in quadruple perovskites

Z. V. Pchelkina^{+*}, E. V. Komleva^{+*}, V. Yu. Irkhin⁺, Y. Long^{×°}, S. V. Streltsov^{+*1)}

⁺Institute of Metal Physics, 620108 Ekaterinburg, Russia

^{*}Department of Theoretical Physics and Applied Mathematics, Ural Federal University, 620002 Ekaterinburg, Russia

[×]Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, 100190 Beijing, China

[°]Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan, 523808 Guangdong, China

Submitted 9 October 2023
Resubmitted 9 October 2023
Accepted 23 October 2023

DOI: 10.31857/S1234567823220068, EDN: piorrc

Anharmonic vibrations of weakly bound ions in an oversized atomic cage formed by the other atoms are commonly known as rattling. They have been observed in materials such as $\text{VA}_{10+\delta}$ [1], clathrates [2], dodecaborides [3], filled skutterudites [4], β -pyrochlore oxides [5]. Rattling or other types of anharmonicity can lead, e.g., to Schottky-type anomaly of specific heat at low temperature [6], result in significant increase of electron effective mass [7–9], suppress thermal conductivity [10, 11] or be a driving force for the superconductivity [7–9, 12].

Recently, the rattling has been suggested for quadruple perovskite $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$ synthesized under a high-pressure [13]. In quadruple perovskites $\text{AA}'_3\text{B}_4\text{O}_{12}$ the A site ions are icosahedrally (twelve neighbors) coordinated by oxygen atoms. The thermal displacement parameter of Cu ions at A site in $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$ was found to be quite large, $U_{\text{iso}} \approx 0.045 \text{ \AA}^2$ at 300 K. Together with unusual behavior of specific heat $C_p(T)$ this led to suggestion of possible rattling in $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$ [13].

In the present paper we report direct evidence of a rattling mode in $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$ and another recently synthesized quadruple perovskite $\text{CuCu}_3\text{Fe}_2\text{Re}_2\text{O}_{12}$. The total energy density functional theory (DFT) calculations clearly show rattling distortions along [111] direction related to the Cu vibration.

The electronic structure calculations were performed in the local density approximation taking into account Coulomb repulsion within LDA + U method [14] using the Vienna *ab initio* simulation package (VASP) [15]. The experimental crystal structure data with the space groups $Im\bar{3}$ (# 204) and $Pn\bar{3}$ (# 201) reported in [13] and [16] for $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$ and $\text{CuCu}_3\text{Fe}_2\text{Re}_2\text{O}_{12}$, respectively, were used.

The crystal structure of quadruple perovskites $\text{AA}'_3\text{B}_4\text{O}_{12}$ on example of $\text{CuCu}_3\text{Fe}_2\text{Re}_2\text{O}_{12}$ is shown in Fig. 1a. $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$ has a similar structure with V ions occupying both octahedral positions. Crystallographically, there are two different Cu positions. Our calculations, as well as previous results [17] show that Cu at A sites (i.e. those, which are in icosahedra) have $3d^{10}$ electronic configuration, i.e., these are Cu^{1+} ions. Cu ions at A' site have local magnetic moment and these are Jahn–Teller active Cu^{2+} ions.

In $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$ distance between Cu^{1+} and surrounding oxygen ions (2.548 Å) is much larger than the sum of corresponding ionic radii 2.13 Å [18]. This is the reason why there develops a localized phonon mode with Cu vibrating in this large O_{12} cage, a rattling mode. The dependence of DFT + U total energy on Cu^{1+} displacement has a minimum at $\sim 0.35 \text{ \AA}$ distortion. Thus our calculations directly demonstrate presence of the rattling mode in $\text{CuCu}_3\text{V}_4\text{O}_{12}$. Moreover, this mode does not seem to be specific for this particular material, and therefore we tested whether rattling vibrations are present in another quadruple perovskite, namely, recently synthesized $\text{CuCu}_3\text{Fe}_2\text{Re}_2\text{O}_{12}$ [16].

There are several possible types of rattling. Indeed, as one can see from Fig. 1a there are two Cu1 ions in the unit cell: those sitting in the center of cube and in its corners. Therefore, rattling distortions of these two Cu1 ions can be in the same [111] direction (in-phase distortion), or in the opposite directions when we have two different Cu1–Cu1 distances (out-of-phase distortions). Moreover, there are two inequivalent by symmetry out-of-phase distortions with Cu1 ions moving to Fe or Re ions between them. Fig. 1b summarizes results of calculations for these 3 types of possible rattling distortions. One can see that this is the out-of-phase distortion to Fe ions, which gives the lowest total energy.

¹⁾e-mail: streltsov@imp.uran.ru

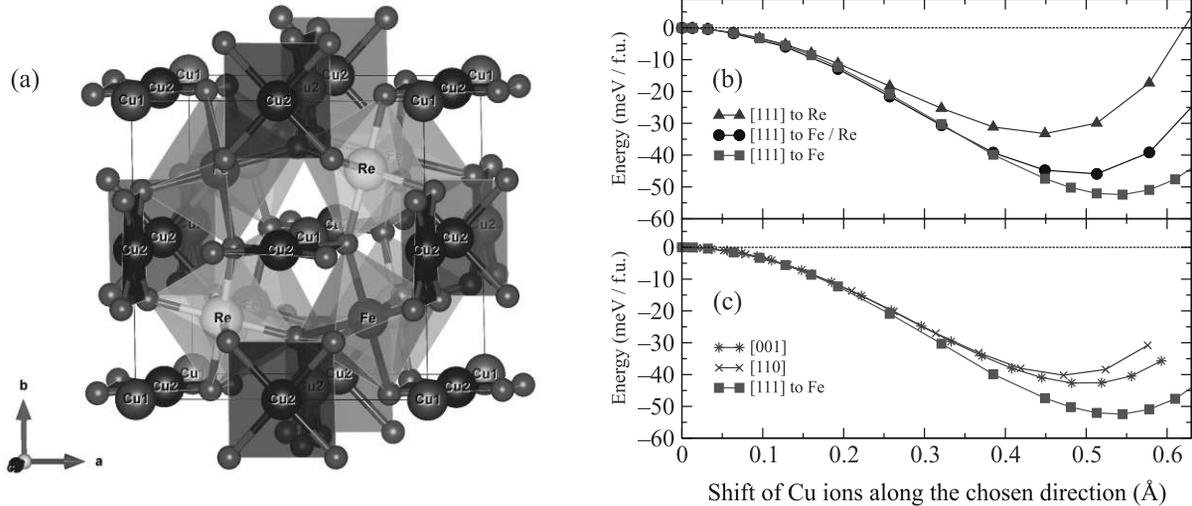


Fig. 1. (Color online) (a) – Crystal structure of quadruple perovskites $AA'_3B_4O_{12}$ on example of $CuCu_3Fe_2Re_2O_{12}$. There are two types of Cu ions: Cu1 (light blue) is in a large cage, A site, and can rattle, while Cu2 (dark blue) is in square-planer coordinated A' site. FeO_6 and ReO_6 octahedra are shown by yellow and green, respectively. In $CuCu_3V_4O_{12}$, both these octahedra are filled by V ions instead of Fe and Re. (b) – Total energy vs Cu1 displacement along [111] direction, when two different Cu1 ions in a unit cell are shifted both to Re, one to Re and one to Fe, and both to Fe atoms, and (c) along [001], [110], and [111] directions in $CuCu_3Fe_2Re_2O_{12}$

We checked other directions of possible rattling distortions and found that there are indeed local minima in [001], along [110] directions, but all of them have higher energies than the one along [111] direction, see Fig. 1c. This result demonstrates that the potential for the rattling has a complex form with many local minima and can not be described by a simplified double-well shape.

In conclusion, we provide theoretical evidence of the presence of rattling modes in quadruple perovskite $CuCu_3V_4O_{12}$. We predict the same phenomenon in the recently synthesized $CuCu_3Fe_2Re_2O_{12}$. The [111] direction of Cu1 rattling turns out to be the most energetically favourable.

The work was supported by the Russian Science Foundation via project RSF 23-42-00069, and the National Natural Science Foundation of China (Grant 12261131499).

This is an excerpt of the article “Rattling phonon modes in quadruple perovskites”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023603202

1. D. Caplin, G. Grüner, and J.B. Dunlop, Phys. Rev. Lett. **30**, 1138 (1973).
2. B. Eisenmann, H. Schafer, and R. Zagler, J. Less-Common Met. **118**, 43 (1986).
3. N. Sluchanko, A. Bogach, N. Bolotina, V. Glushkov, S. Demishev, A. Dudka, V. Krasnorussky, O. Khrykina,

- K. Krasikov, V. Mironov, V.B. Filipov, and N. Shitsevalova, Phys. Rev. B **97**, 035150 (2018).
4. D.J. Braun AND W. Jeitschko, J. Less-Common Met. **72**, 147 (1980).
5. J. Yamaura, S. Yonezawa, Y. Muraoka, and Z. Hiroi, J. Solid State Chem. **179**, 336 (2006).
6. H. Hasegawa, Phys. Rev. E **86**, 061104 (2012).
7. M. Brihwiler, S.M. Kazakov, J. Karpinski, and B. Batlogg, Phys. Rev. B **73**, 094518 (2006).
8. F.M. Grosche, H.Q. Yuan, W. Carrillo-Cabrera, S. Paschen, C. Langhammer, F. Kromer, G. Sparrn, M. Baenitz, Y. Grin, and F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **87**, 247003 (2001).
9. E.D. Bauer, N.A. Frederick, P.-C. Ho, V.S. Zapf, and M.B. Maple, Phys. Rev. B **65**, 100506(R) (2002).
10. M.K. Jana, K. Pal, U.V. Waghmare, and K. Biswas, Angew. Chem. Int. Ed. **55**, 7792 (2016).
11. C. Chang and L.-D. Zhao, Mater. Today Phys. **4**, 50 (2018).
12. Y. Nagao, J. Yamaura, H. Ogusu, Y. Okamoto, and Z. Hiroi, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 064702 (2009).
13. Y. Akizuki, I. Yamada, K. Fujita, K. Taga, T. Kawakami, M. Mizumaki, and K. Tanaka, Angew. Chem. Int. Ed. **54**, 10870 (2015).
14. A.I. Liechtenstein, V.I. Anisimov, and J. Zaanen, Phys. Rev. B **52**, R5467 (1995).
15. G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B **47**, 558 (1993).
16. Y. Long et al., to be published.
17. S. Mehmood and Z. Ali, Mater. Chem. Phys. **282**, 125915 (2022).
18. R.D. Shannon, Acta Crystallogr. A **32**, 751 (1976).

Синтез и сверхпроводящие свойства некоторых фаз полигидридов железа при высоких давлениях¹⁾

А. Г. Гаврилюк^{+*×2)}, И. А. Троян^{+*}, В. В. Стружкин[°], Д. Н. Трунов⁺, С. Н. Аксенов⁺, А. А. Минович⁺,
А. Г. Иванова^{+*}, И. С. Любутин^{*}

⁺ Институт ядерных исследований РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

^{*} Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова,
Федеральный научно-исследовательский центр “Кристаллография и фотоника” РАН, 119333 Москва, Россия

[×] Балтийский федеральный университет имени Иммануила Канта, 236041 Калининград, Россия

[°] Center for High Pressure Science and Technology Advanced Research (HPSTAR), 201203 Shanghai, China

Поступила в редакцию 8 августа 2023 г.

После переработки 11 октября 2023 г.

Принята к публикации 12 октября 2023 г.

При лазерном нагреве образца в камерах высокого давления с алмазными наковальнями выполнен экспериментальный синтез двух полигидридов железа FeH_x (I) и FeH_x (II) в условиях мегабарных давлений 178 и 195 ГПа и высоких температур около 700 и 2000 К соответственно. Исходным образцом служила пластинка металлического железа, обогащенного мессбауэровским изотопом Fe-57, помещенная в среду борана аммиака (BH_3NH_3). Электронные свойства соединений FeH_x исследованы с помощью измерения электрического сопротивления $R(T)$ при высоких давлениях (180–216 ГПа) в температурном диапазоне ~ 8 –300 К. По данным $R(T)$ обнаружены две сверхпроводящие фазы соединений FeH_x с максимальными критическими температурами сверхпроводящего перехода $T_C \approx 25.0$ и 27.7 К. Установлено, что значение T_C в обоих гидридах линейно растет с увеличением давления с коэффициентом $dT_C/dP \sim 0.063 \pm 0.001$ К/ГПа для фазы FeH_x (I) и $dT_C/dP \sim 0.056 \pm 0.003$ К/ГПа для фазы FeH_x (II). Кроме измерений $R(T)$, эффект сверхпроводимости в гидридах железа подтвержден рядом дополнительных методов.

DOI: 10.31857/S123456782322007X, EDN: pirnry

1. Введение. Железо – один из самых распространенных элементов на нашей планете. Фундаментальные электронные, магнитные и структурные свойства железа и его простых соединений (особенно при высоких давлениях) чрезвычайно важны как для понимания строения сильно коррелированных электронных систем, так и для исследований свойств внутренних слоев Земли.

Однако следует отметить, что до настоящего времени нет однозначного ответа на вопрос о химическом составе, строении, электронных и магнитных свойствах вещества верхней и нижней мантии и ядра Земли. Железо является одним из ключевых химических элементов в мантии и ядре Земли. Считается, что ядро Земли состоит в основном из железа с небольшой примесью никеля и других, преимущественно легких, элементов S, Si, C, O, а также во-

дороды [1–5]. Железо также в значительной степени присутствует в слоях мантии в виде сложных оксидных соединений. Поэтому изучение структуры, магнитных и электронных свойств соединений железа, в том числе соединений железа с водородом, при высоких давлениях имеет большое значение для реконструкции строения внутренних сфер Земли, а также для понимания ее физических свойств.

Гидриды железа рассматриваются в числе возможных соединений в составе мантии и ядра Земли [1, 6–8]. Они могут сформироваться при высоких давлениях и температурах в результате реакций между железом и минералами, содержащими воду [9–11]. Однако предполагается, что в недрах Земли преобладают гидриды железа лишь с небольшим содержанием водорода FeH_x ($x \leq 1$). В то же время в ряду гидридов железа с повышенным содержанием водорода FeH_x ($x > 2$) возможны сверхпроводящие фазы, принадлежащие к недавно открытому новому семейству высокотемпературных сверхпроводников – полигидридам металлов [12–14].

¹⁾ См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru.

²⁾ e-mail: gavriliuk@mail.ru

С момента открытия сверхпроводимости (СП) с критической температурой T_C выше 200 К в гидридах SH_3 [12, 13], LaH_{10} [14] и YH_6 [15] началась эра поиска высокотемпературных сверхпроводников на основе полигидридов металлов [16, 17]. С 2015 года по настоящее время синтезированы следующие соединения с относительно высокими T_C , приближающимися к комнатной температуре (см. обзоры [16, 17]), такие как: RN_x с T_C выше 100 К при давлении $P = 207$ ГПа, YH_x с T_C около 243 К (при $P > 200$ ГПа), ThH_x с $T_C = 161$ К (при $P < 175$ ГПа), PrH_x с T_C 9 К (при $P < 130$ ГПа), LaYH_x с T_C 253 К (при $P < 183$ ГПа), CeH_x с T_C 115–120 К (при $P < 95$ ГПа), SnH_x с $T_C = 70$ К (при $P < 200$ ГПа), BaH_x с T_C около 20 К (при $P < 140$ ГПа), CaH_x с T_C 215 К (при $P = 172$ ГПа), ScH_x с T_C 22.4 К (при $P = 156$ ГПа) и LuH_x с T_C 15 К (при $P = 128$ ГПа).

Теоретические расчеты и поиск наиболее вероятных стабильных фаз гидридов железа проводились из первых принципов на основе теории функционала плотности с использованием базиса из плоских волн и псевдопотенциалов [18, 19], эволюционного алгоритма USPEX [20, 21], методов роя частиц [22–24] и случайного поиска с использованием метода решеточной динамики в квазигармоническом приближении [25]. В этих работах были описаны структуры гидридов железа разной стехиометрии и рассчитаны области их термодинамической устойчивости. Кубический FeH может существовать при давлениях до 400 ГПа [21, 25]. Гидрид Fe_3N_5 (пр. гр. $R\bar{6}_3/mmc$) стабилен в диапазоне давлений 50–145 ГПа [21, 24], FeH_2 (пр. гр. $I4/mmm$) устойчив при 45–130 ГПа [18, 21, 24], Fe_3N_8 (пр. гр. $Pm\bar{3}m$ – до 75 ГПа [21], FeH_3 (пр. гр. $Pm\bar{3}m$) существует выше 65 ГПа [18, 21] вплоть до 400 ГПа [20]. Согласно расчетам, в диапазоне давлений 100–240 ГПа возможно существование фаз FeH_4 в кубической (пр. гр. $P2_13$), ромбической (пр. гр. $Imma$) и моноклинной (пр. гр. $P2_1/m$) модификациях [20, 22, 24]. Тетрагональные фазы Fe_3N_{13} и FeH_5 (пр. гр. $I4/mmm$) стабильны в диапазоне 75–150 ГПа [21]. Выше 200 ГПа возможна ромбическая фаза FeH_5 с пр. гр. $Cmca$ [25]. Для FeH_6 в диапазоне давлений 35–115 ГПа предсказаны структуры моноклинной (пр. гр. $C2/m$) и ромбической модификаций (пр. гр. $Cmmm$) [21, 23], а также структура моноклинной фазы FeH_6 с пр. гр. $C2/c$, которая реализуется выше 200 ГПа [23, 25]. Существование метастабильных гидридов FeH_7 и FeH_8 возможно в области мегабарных давлений 150–300 ГПа [23].

На протяжении нескольких последних десятилетий многочисленные экспериментальные работы бы-

ли сосредоточены на исследовании условий образования, структуры и свойств низших гидридов железа FeH_x ($x \leq 1$) в области относительно низких давлений (до 10 ГПа) и высоких температур [26–35], а также при более высоких давлениях в *in situ* экспериментах [7, 8, 18, 36–41].

Эти экспериментальные работы показали, что помимо твердых растворов внедрения водорода в α -Fe могут существовать гидриды FeH_x ($x \leq 1$) с разным стехиометрическим составом, которые в зависимости от P - T режима можно представить в трех кристаллических модификациях:

1) Фаза *dhcp*- FeH_x ($x \leq 1$) (или фаза ϵ' -FeH) с четырехслойной плотнейшей упаковкой из атомов Fe образуется уже при комнатной температуре и давлении 3.5 ГПа [35, 36] и остается стабильной до 550 °C [26, 27, 34] и как минимум до 136 ГПа [8, 18]. По данным мессбауэровской спектроскопии эта фаза является магнитоупорядоченной [30, 42].

2) Фаза *hcp*- FeH_x ($x \leq 1$) (или фаза ϵ -FeH) [30, 34] – является метастабильной промежуточной фазой, которая может сформироваться в условиях дефицита водорода при образовании *dhcp*- FeH_x ($x \leq 1$) из α -Fe.

3) Высокотемпературная кубическая модификация *fcc*- FeH_x ($x \leq 1$) (γ -фаза) со структурой типа NaCl наиболее стабильна выше 700–800 °C [27, 34, 37, 43]. Атомы водорода, занимающие межузельные позиции (пустоты) кристаллической решетки в плотноупакованных структурах FeH_x ($x \leq 1$), вызывают достаточно значительное объемное расширение, достигающее 2–3 Å³ на атом железа [31, 36].

В работе [38] моногидрид *fcc*-FeH ($x \approx 1$), синтезированный при $P = 55$ ГПа и $T = 1500$ К, был исследован методами рентгеновской дифракции и мессбауэровской спектроскопии под давлением до 80 ГПа и при декомпрессии. Было установлено, что немагнитная кубическая фаза *fcc*-FeH стабильна в диапазоне 19–68 ГПа. При снижении давления до 26 ГПа зафиксировано появление магнитной компоненты указывающей на обратный переход *fcc*-FeH в структуру *dhcp*-FeH. Этот переход полностью завершается при 12 ГПа [38].

Результаты недавних экспериментальных исследований фазы FeH_x ($x \leq 1$) в диапазоне давлений 43–137 ГПа и температур 1000–2000 К [39], а также до давления 146 ГПа при температуре 3660 К [7] подтверждают существование *fcc*-FeH в немагнитном состоянии. При снижении давления до 7 ГПа и при охлаждении до 800 К наблюдается переход кубической фазы *fcc*- FeH_x ($x = 0.5–1$) в гексагональную

hcp-фазу, которая при дальнейшем охлаждении до 430 К постепенно разлагается на *dhcp*-FeH_{1-x} и *bcc*-Fe [40]. В работе [41] из измерений электрического сопротивления *fcc*-FeH_x ($x = 0.5-1$) при давлениях до 65 ГПа было установлено, что проводимость этой фазы растет с увеличением содержания водорода.

Из всех многочисленных теоретически предсказанных фаз гидридов железа FeH_x ($x > 1$) с более высоким содержанием водорода к настоящему времени экспериментально получены только FeH₂-*I4/mmm* при давлении 23–87 ГПа [18], FeH₃-*Pm-3m* (при $P \approx 39-160$ ГПа) [18, 19] и FeH₅-*I4/mmm* (при $P \approx 66-147$ ГПа). Эти три гидрида были синтезированы при высоких давлениях в результате лазерного нагрева поликристаллического образца железа в среде газообразного водорода, загруженного в камеры высокого давления с алмазными наковальнями. Методом синхротронной рентгеновской дифракции установлены структуры металлической подрешетки из атомов железа, содержание водорода и его кристаллографические позиции определены в результате расчетов из первых принципов, а также построены уравнения состояния исследованных гидридов железа в широком диапазоне давлений [18, 19].

Недавние теоретические исследования предсказывают сверхпроводимость для двух фаз полигидридов железа FeH₅ (пр. гр. *I4/mmm*) и FeH₆ (пр. гр. *Cmmm*) с T_c до ~ 50 К при давлениях 130–150 ГПа [19, 21, 44]. Однако расчеты, опубликованные в работах [45], опровергают возможную сверхпроводимость в фазе FeH₅ и других гидридах железа [23].

Из наших недавних исследований железа методом синхротронной мессбауэровской спектроскопии на изотопе Fe-57 (*nuclear forward scattering* – NFS или ядерно-резонансное рассеяние вперед) следует, что чистое железо в диапазоне давлений 13–241 ГПа является немагнитным при температурах 4.2–300 К [46–48].

Также недавно нами были синтезированы и подробно исследованы магнитные свойства некоторых фаз FeH_x, полученных при давлениях до 130 ГПа [49]. С помощью метода NFS обнаружены две магнитные фазы с высоким значением температуры магнитного фазового перехода и несколько немагнитных фаз FeH_x. В частности, установлено, что фаза FeH₂ имеет тетрагональную структуру (пр. гр. *I4/mmm*) и при давлении 82 ГПа является магнитной до температуры $T_N = 174$ К. Однако при давлениях выше 130 ГПа эта фаза становится немагнитной в диапазоне температур 4–300 К [49]. При давлении 128 ГПа обнаружена еще одна фаза FeH_x (с пока неустановленной кристаллической структурой), которая оста-

ется магнитной до комнатной и выше комнатной температуры.

Теоретические предсказания вместе с нашими предварительными результатами NFS экспериментов на ядрах Fe-57 [46, 47] дают надежду на возможность синтезировать сверхпроводящие фазы FeH_x при давлениях порядка и выше 150 ГПа. При высоких давлениях мы также можем исследовать электронные и магнитные свойства фаз FeH_x в NFS экспериментах, кристаллическую структуру в экспериментах по рентгеновской дифракции (XRD), а также транспортные и магнитные свойства в экспериментах по измерению электросопротивления и магнитной восприимчивости.

В настоящей работе выполнен последовательный синтез двух фаз полигидридов железа FeH_x(I) и FeH_x(II) с помощью лазерного нагрева образцов в камерах с алмазными наковальнями в два этапа до температур ~ 700 и 2000 К при давлениях 178 и 195 ГПа, соответственно. В результате синтеза обнаружено два различных соединения FeH_x со сверхпроводящими свойствами. Установлено, что одна из фаз FeH_x(I) имеет критическую температуру сверхпроводящего перехода $T_C \sim 24$ К при давлении 180 ГПа, а другая FeH_x(II) – $T_C \sim 26.5$ К при давлении 195 ГПа.

2. Методика эксперимента. В данной работе полигидриды железа (FeH_x) были синтезированы в условиях высокого давления и высокой температуры методом лазерного нагрева металлического железа в камерах с алмазными наковальнями. Для синтеза полигидридов использовался исходный порошок металлического железа, обогащенного мессбауэровским изотопом Fe-57 со степенью обогащения $\sim 96\%$. Из исходного порошка прессовались пластинки с характерными размерами около 20×10 (мкм)² и толщиной $0.3 \div 4$ мкм. Такая пластинка железа помещалась в рабочий объем камеры высокого давления с алмазными наковальнями, который затем заполнялся сублимированным боразаном (боран аммиака – BH_3NH_3). Боразан служил средой, передающей давление, и одновременно являлся источником водорода при лазерном нагреве образца (детали методики синтеза см. в [14]). После этого давление в камере поднималось до ожидаемого давления синтеза, и производился лазерный нагрев образца. При высокой температуре боразан разлагается с выделением атомарного водорода поэтапно по схеме: $\text{NH}_3\text{BH}_3 \rightarrow (\text{NH}_2\text{BH}_2)_n + \text{H}_2 \rightarrow (\text{NHBH})_n + \text{H}_2 \rightarrow \text{c-BN} + \text{H}_2$ [50]. При высокой температуре и высоком давлении этот водород вступает в реакцию с металлом, и происходит синтез высших гидридов FeH_x.

Известно, что исходный образец α -Fe (с ОЦК структурой) при давлении выше 13 ГПа переходит в ε -Fe фазу со структурой ГПУ (гексагональной плотноупакованной), которая стабильна до высоких давлений [51–53]. Поэтому следует ожидать, что образование полигибрида происходит из начальной фазы ε -Fe.

Величина давления измерялась по алмазной шкале [54] с помощью рамановского спектрометра на базе монохроматора Acton SP2558 с детектором CCD PIXIS-100f фирмы “Princeton Instruments”. Для возбуждения рамановских спектров использовался красный лазер с длиной волны 660 нм.

Все измерения давления в камере проводились при комнатной температуре вне криостата с помощью измерения рамановских спектров от алмазной наковальни [54]. Первоначально давление устанавливалось вне криостата, а затем измерялось каждый раз, когда камера извлекалась из криостата после очередного цикла измерений электросопротивления. При каждом измерении давления записывались рамановские спектры в нескольких участках образца, чтобы оценить его разброс и возможный градиент. Установлено, что градиент давления на образце даже при максимальном давлении в каждой камере был не больше $2 \div 5$ ГПа. Это свидетельствует о хорошей степени гидростатичности среды боразана. Пример рамановских спектров и оценка градиента давления приведены в дополнительных материалах.

На рисунке 1 приведены микрофотографии сборки эксперимента в рабочем объеме камеры высокого давления для исходного Fe (рис. 1а), сразу после первого синтеза гидрида FeH_x (I) при давлении 180 ГПа и нагреве до температуры ~ 700 К (рис. 1б), и сразу после второго синтеза гидрида FeH_x (II) при давлении 195 ГПа и нагреве до температуры 2000 К (рис. 1с).

При первом синтезе давление возросло от 178 ГПа на исходном ε -Fe образце до 180 ГПа на синтезированном FeH_x (I) образце.

Затем камера помещалась в криостат и охлаждалась до ~ 5 –8 К. Электронные свойства полученных фаз FeH_x исследовались путем измерения зависимости электрического сопротивления от температуры $R(T)$ при высоких давлениях в диапазоне 178–216 ГПа и при сканировании температуры в пределах 8–300 К. В процессе охлаждения камеры с образцом и последующего отогрева до комнатной температуры (при заданном давлении) проводились непрерывные измерения температурной зависимости электросопротивления $R(T)$ по 4-х контактной схеме.

Первый цикл $R(T)$ измерений для образца FeH_x (I) (синтезированного при P - T условиях 178 ГПа – 700 К), был выполнен в диапазоне давлений 180–195 ГПа.

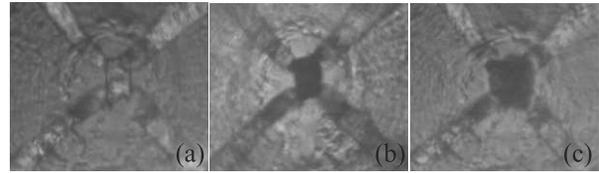


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Фотография исходного образца ε -Fe в рабочем объеме камеры до нагрева (при давлении 178 ГПа). (б) – Фото полигибрида FeH_x (I) сразу после синтеза в результате 1-го нагрева при исходном давлении 178 ГПа (давление после синтеза 180 ГПа); (с) – фото полигибрида FeH_x (II) сразу после синтеза в результате 2-го нагрева при давлении 195 ГПа. Одновременная подсветка на отражение и пропускание. Среда – боран аммиака (BH_3NH_3). Материал гаскеты – ультрадисперсный порошок Al_2O_3 с примесью эпоксидной смолы. Тоководы выполнены методом напыления золотых контактов на подложку из палладия. Размер исходного образца ε -Fe составляет $14 \times 8 \times 0.5$ мкм

Затем, при достижении давления 195 ГПа, был выполнен второй нагрев образца до температуры порядка 2000 К с увеличенной мощностью лазерного излучения. При этом произошел второй синтез образца с образованием фазы FeH_x (II). Температура оценивалась по яркости свечения нагретой лазером области образца (с точностью ~ 100 градусов). После этого продолжились измерения $R(T)$ зависимостей уже новой фазы до давления ~ 216 ГПа, при котором камера разрушилась.

Установлено, что после сканирования по температуре, давление на образце незначительно поднималось на величину около $\sim 2 \div 5$ ГПа. Это значение меньше (или порядка) среднего градиента давления на образце, поэтому не влияет на основные результаты и выводы по работе.

Измерения электрического сопротивления проводились на установке с гелиевым криостатом замкнутого цикла на базе криорефрижератора SRDK-101-A11C производства фирмы “Sumitomo”. В установке использовался терморегулятор Lake Shore 335, нановольтметр Keithley 2182A и источник тока Keithley 6221. Для измерений сопротивления использовался дельта-режим, который благодаря импульсному алгоритму минимизирует возможность перегрева образца при пропускании большого тока. Характерное время охлаждения камеры с образцом в криостате порядка 4.5 ч, а время отогрева до комнатной температуры около 12.5 ч.

По окончании каждого температурного цикла давление в камере дополнительно контролировалось при комнатной температуре. Стабильность давления

при температурном цикле неоднократно проверялась и составляет величину не хуже 5 ГПа.

3. Результаты экспериментов.

3.1. *Аттестация исходного и синтезированного образцов методом рентгеновской дифракции.* Аттестация исходного образца α -Fe при нормальном давлении была проведена методом рентгеновской дифракции с использованием $\text{MoK}\alpha$ -излучения на дифрактометре XtaLAB Synergy-DW ($\lambda = 0.7093 \text{ \AA}$) (рис. 2). Измерения сравнивались со стандартом (PDF # 006-0696) [55].

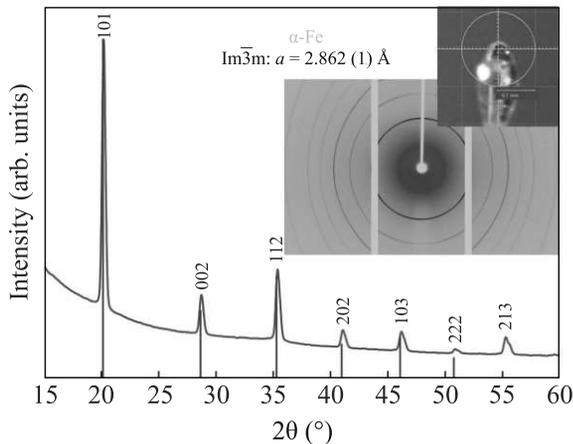


Рис. 2. (Цветной онлайн) Рентгенограмма исходного образца α -Fe при атмосферном давлении и комнатной температуре. Штрих-дифрактограмма стандарта α -Fe (PDF # 006-0696) [55] показана голубым цветом. На вставках показаны изображение образца α -Fe с размерами $\sim 50 \times 30 \times 5 \text{ мкм}^3$ и двумерная дифрактограмма

К сожалению, мы не смогли провести *in situ* рентгеновские исследования синтезированных образцов гидридов FeH_x (I) и FeH_x (II). Однако нам удалось выполнить исследования структуры полигидридов, синтезированных в предварительном эксперименте при давлении 82 ГПа (рис. 3). Это позволило, во-первых, убедиться, что синтез полигидридов железа с насыщением водородом выше FeH_1 происходит при достаточно высоких значениях P - T , и, во-вторых, это позволило предварительно оценить нижнюю границу насыщения водородом, при которой еще нет сверхпроводимости.

В этом тестовом (предварительном) эксперименте полигидриды железа FeH_x были синтезированы по аналогичной методике в камере TD3 при давлении 77 ГПа методом лазерного нагрева пластинки железа ε -Fe в системе Fe-AB (где AB – боран аммония NH_3BH_3). После лазерного нагрева давление на образце повысилось до 82 ГПа.

Исследования кристаллической структуры методом синхротронной рентгеновской дифракции выполнены на полученном образце при давлении ~ 82 ГПа на синхротронной станции ID27 (ESRF, Гренобль, Франция) с использованием острофокусного рентгеновского пучка диаметром $\sim 3 \text{ мкм}$ и длиной волны $\lambda = 0.3738 \text{ \AA}$. В результате двумерного сканирования снимался набор рентгеновских дифрактограмм с шагом 2–5 мкм. На рисунке 3 приведена рентгеновская дифрактограмма от области вблизи Re гаскеты. В результате анализа дифрактограмм однозначно установлено образование гидрида $I4/m\bar{m}$ - FeH_2 и, вероятно, образование гидридов $Pm\bar{3}m$ - FeH_3 и $I4/m\bar{m}m$ - Fe_3H_{13} . Параметры кристаллической структуры этих фаз приведены в табл. 1.

Таблица 1. Параметры фаз гидридов железа при 82 ГПа

Фаза/химический состав	a , \AA	b , \AA	V , \AA^3	V/Z , \AA^3
$I4/m\bar{m}$ - FeH_2	2.472	8.39	51.3	12.825
$Pm\bar{3}m$ - FeH_3	2.507	–	15.77	15.77
$I4/m\bar{m}m$ - Fe_3H_{13}	2.48	17.58	107.82	17.97

Таким образом, в результате тестирования исходного образца показано, что такие размеры образца достаточны для проведения достоверных исследований структуры полигидридов железа на синхротронных источниках.

Из наших проведенных рентгеновских измерений и предыдущих NFS исследований [49] следует, что при насыщении железа водородом вплоть до $\text{FeH}_{4.3}$ (структура $I4/m\bar{m}m$ - Fe_3H_{13}) фазы полигидрида железа все еще не являются сверхпроводящими.

Более того, в работе [49] было установлено, что фаза FeH_2 с тетрагональной структурой (пр. гр. $I4/m\bar{m}m$) и при давлении 82 ГПа является магнитной до температуры $T_N = 174 \text{ K}$. Однако при давлениях выше 130 ГПа эта фаза становится немагнитной во всем диапазоне температур 4–300 K.

3.2. *Синтез и измерение электрического сопротивления полигидридов FeH_x при давлениях 178–216 ГПа и температурах 8.2–290 K (run-4).* Для вариации режимов синтеза, нами было изготовлено несколько камер высокого давления и проведено несколько серий экспериментов с попыткой синтезировать различные фазы полигидридов железа (FeH_x), и исследовать их электронные свойства. Серии экспериментов мы обозначили как run-N, где N – номер серии. Основные результаты, представленные в данной работе, были получены в сериях run-4 и run-6. Предварительно проводилось несколько $R(T)$ измерений в чистом железе при разных давлениях,

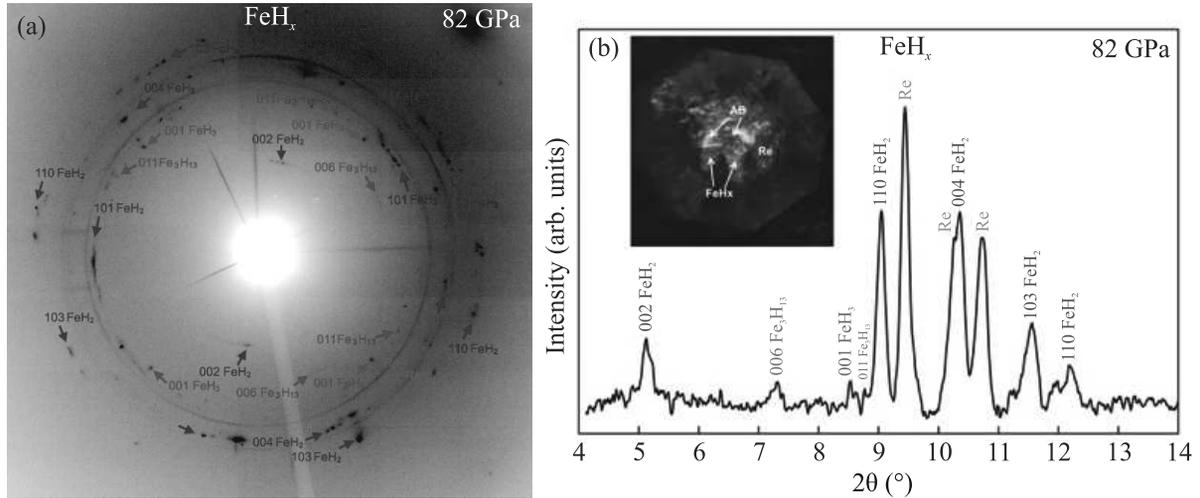


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Двумерная дифрактограмма гидридов железа при давлении 82 ГПа; (б) – Проинтегрированная одномерная дифрактограмма. Во врезке показана фотография образца FeH_x , синтезированного в системе $\text{Fe} - \text{NH}_3\text{BH}_3$ в камере высокого давления с Re -гasketой. Рефлексы идентифицированных фаз FeH_2 , FeH_3 и Fe_3H_{13} подписаны синим, красным и фиолетовым цветами соответственно

а затем при определенных давлениях осуществлялся нагрев образца в камере с попыткой синтеза полигидрида FeH_x .

Пока синтез сверхпроводящих полигидридов FeH_x удалось выполнить только в двух камерах, в двух сериях экспериментов: gun-4 и gun-6. Здесь мы приводим результаты экспериментов в серии gun-4 при синтезе образцов при двух значениях P - T параметров: (178 ГПа – 700 К) и (195 ГПа – 2000 К).

На рисунке 1 показаны фотографии исходного образца ϵ -Fe железа, полигидрида FeH_x (I), полученного в режиме (178 ГПа – 700 К), и полигидрида FeH_x (II), полученного в режиме (195 ГПа – 2000 К).

Одинаковый масштаб на этих фотографиях и условия съемки позволяют сравнивать размеры образцов (и цветовые отражения) после каждого этапа P - T обработки. Видно, что после 1-го нагрева образец кардинально изменил свой цвет с блестящего на черный (см. рис. 1b), и немного увеличился в размере. После 2-го синтеза размер образца изменился кардинально (увеличился почти в 2 раза, см. рис. 1c), при этом сохранился темный цвет в отражающем свете. Это кардинально отличается от исходного, хорошо отражающего блестящего образца исходного железа ϵ -Fe. Таким образом, даже из визуальных наблюдений, очевидно, что синтез при нагреве приводит к кардинальным изменениям свойств образца. В частности, в результате синтеза происходит увеличение объема образца, что можно объяснить только увеличением насыщенности водородом полигидрида FeH_x .

На рисунке 4 приведены температурные зависимости сопротивления $R(T)$ образцов FeH_x (I) и FeH_x (II) при разных давлениях. На всех зависимостях $R(T)$ обнаружены резкие падения сопротивления, указывающие на переход образцов гидридов железа в сверхпроводящее состояние. Температурные зависимости $R(T)$ во всем экспериментальном диапазоне температур 8–294 К показаны на рис. 4а, и в увеличенном масштабе в области температур начала перехода в сверхпроводящее состояние – на рис. 4б.

Как видно в увеличенном масштабе на рис. 4б, в области резкого падения сопротивления наблюдается “волнообразный” характер зависимости $R(T)$, что характерно для неоднородных сверхпроводников, в которых могут присутствовать несколько сверхпроводящих фаз с близкими значениями T_C . Тем не менее, максимальное значение T_C можно легко и надежно идентифицировать с точностью не хуже 0.2 К.

На рисунке 5 приведена зависимость значения T_C от давления в полигидридах FeH_x (I) и FeH_x (II). Установлено, что с ростом давления критическая температура T_C в фазе FeH_x (I) растет от 24.2 К при 180 ГПа до 25 К при 192 ГПа. В фазе FeH_x (II) значение T_C также немного повышается от 26.7 К при 197 ГПа до 27.7 К при 216 ГПа.

3.3. Эволюция зависимостей $R(T)$ в области перехода в СП состояние в зависимости от величины проходящего тока (gun-6). Чтобы подтвердить и убедиться, что обнаруженный переход на зависимостях $R(T)$ является переходом в СП состояние, в новой серии экспериментов (gun-6) были проведены измере-

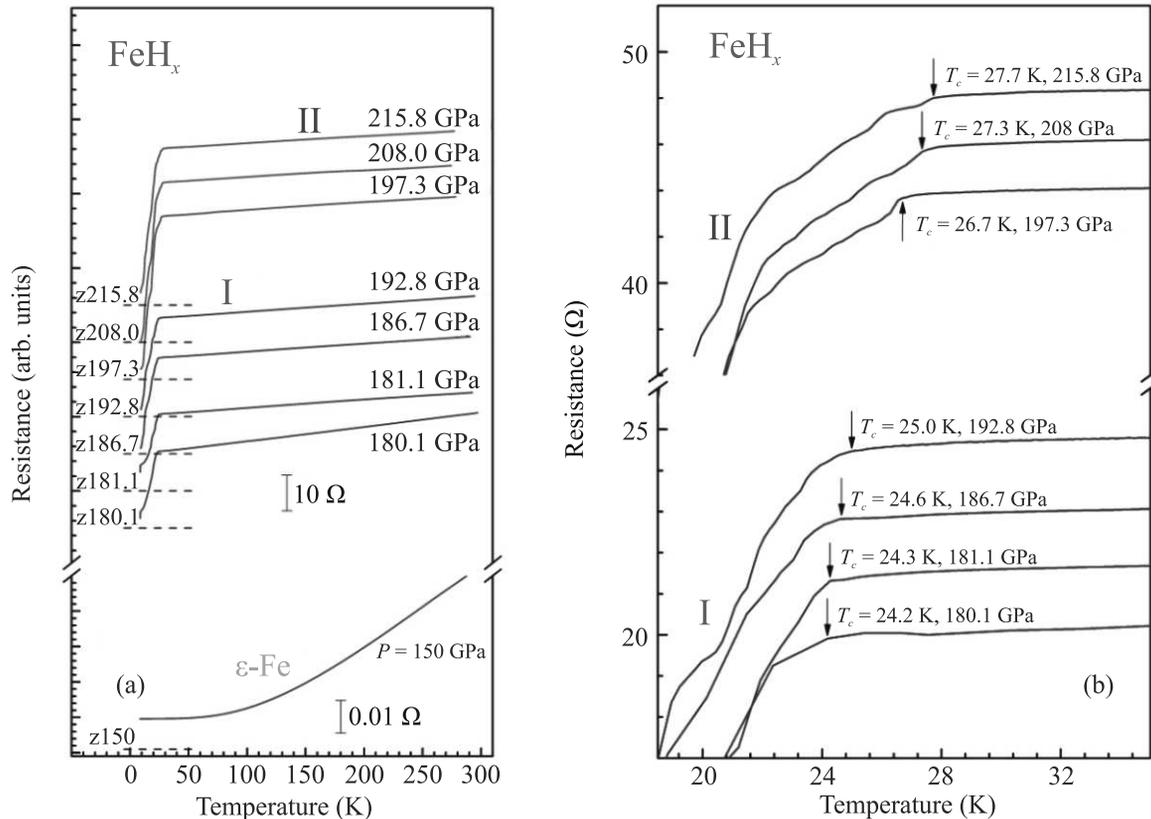


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Эволюция температурных зависимостей сопротивления $R(T)$ полигидридов железа FeH_x (I) и FeH_x (II) с ростом давления. Для сравнения приведена зависимость $R(T)$ для железа ϵ -Fe при давлении 150 ГПа в широком диапазоне температур. (б) – Температурные зависимости сопротивления $R(T)$ в увеличенном масштабе в области начала сверхпроводящего перехода

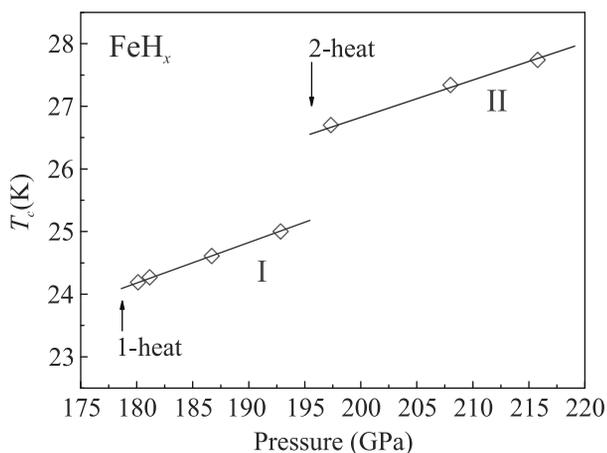


Рис. 5. (Цветной онлайн) Барическая зависимость критической температуры перехода в сверхпроводящее состояние T_C в полигидридах железа FeH_x (I) и FeH_x (II)

ния $R(T)$ кривых в полигидриде FeH_x (II) в зависимости от величины проходящего тока. Этот полигидрид железа FeH_x (II) был синтезирован при давлении

~ 190 ГПа и температуре ~ 2000 К. На рисунке 6 приведена температурная зависимость $R(T)$ при минимальном токе, не влияющем на форму СП перехода. При детальном рассмотрении формы ступеньки СП перехода можно обнаружить как минимум 5 различных СП фаз с разными значениями T_C (см. рис. 6b).

На рисунке 7 приведена экспериментальная эволюция формы кривых $R(T)$ в области перехода в СП состояние в полигидриде FeH_x (II) в зависимости от величины проходящего тока (рис. 7а) и зависимость значения T_C от величины тока (рис. 7б).

Из этих измерений установлено, что при увеличении проходящего тока ширина СП перехода увеличивается, а температура начала перехода (T_C) уменьшается и затем сдвигается в сторону нуля. Такое поведение является характерным для сверхпроводника.

3.4. Эволюция формы спектров микро-контактной спектроскопии (PCS) в области СП перехода (run-6). Для изучения параметров сверхпроводников можно исследовать спектры, измеренные методом

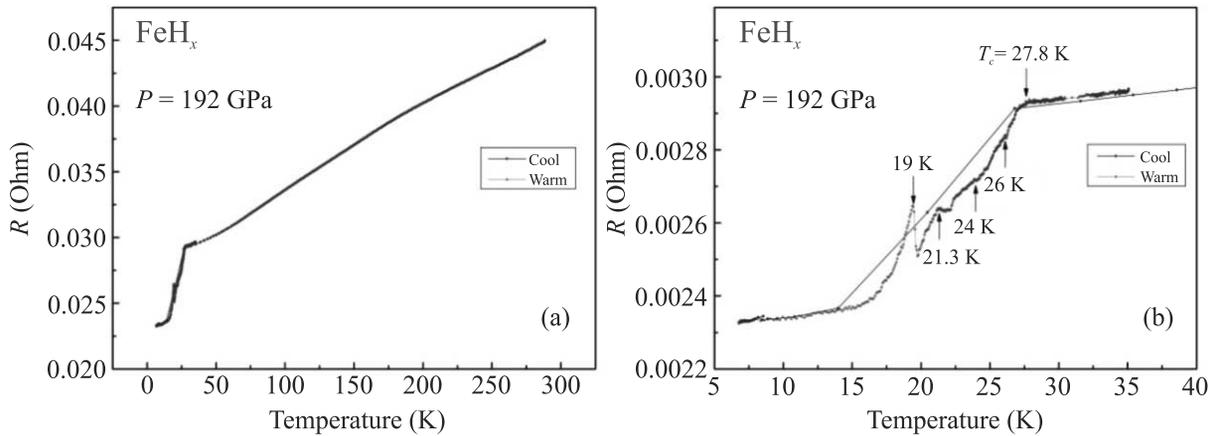


Рис. 6. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость $R(T)$ в образце $\text{FeH}_x(\text{II})$ при охлаждении и частичном медленном нагреве образца во всем экспериментальном диапазоне температур. (b) – Зависимость $R(T)$ для образца $\text{FeH}_x(\text{II})$ в области СП перехода. Видно наложение нескольких ступенек от разных фаз с разными значениями T_C . Давление 192 ГПа

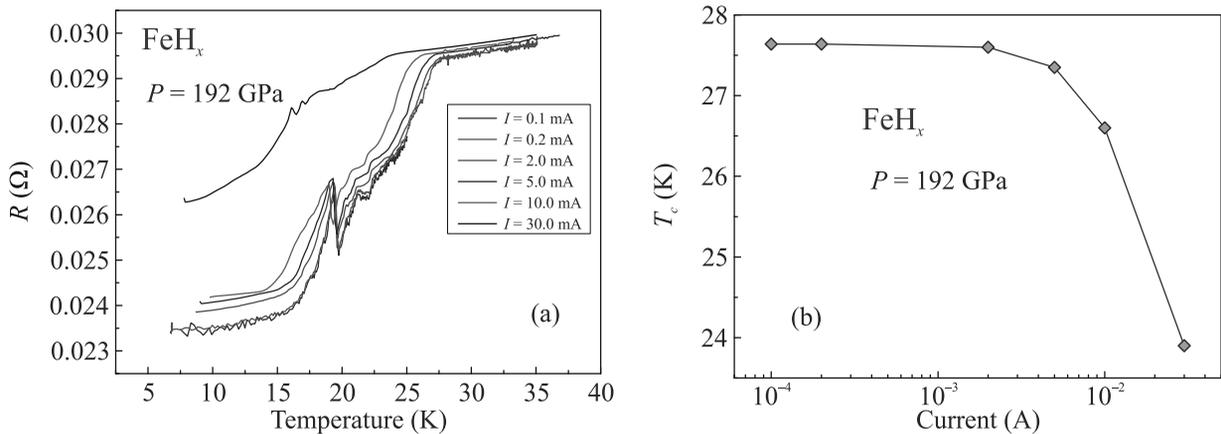


Рис. 7. (Цветной онлайн) (a) – Эволюция формы $R(T)$ кривых полигидрида $\text{FeH}_x(\text{II})$ в зависимости от величины тока, пропускаемого через образец при давлении 192 ГПа. (b) – Зависимость температуры СП перехода T_C полигидрида $\text{FeH}_x(\text{II})$ при давлении 192 ГПа от величины тока. Шкала по току представлена в логарифмическом масштабе

микрoконтактной спектроскопии [56] (английский термин PCS – *point-contact spectroscopy*). Описание метода можно посмотреть, например, в работе [57].

В случае контактов очень малого размера, удовлетворяющих специальным критериям (d – диаметр контактов должен быть меньше длины свободного пробега квазичастиц l) можно получать спектры PCS спектроскопии [58]. В нашем же случае, размер контактов, как правило, больше критерия, удовлетворяющего необходимым требованиям, тем не менее, можно делать измерения в рамках “диффузионного типа” контактов [57]. Такие измерения не позволяют достоверно проводить расчеты параметров сверхпроводника на основе теории, однако наличие ненулевой интенсивности PCS спектров указывает на СП состояние, и по этому критерию можно

оценивать переход от СП в нормальное состояние и обратно при изменении температуры образца.

На рисунке 8 детально показана эволюция PCS спектров в полигидриде $\text{FeH}_x(\text{II})$ при давлении 192 ГПа с увеличением температуры в диапазонах 12.56–15.02 К (рис. 8a), 15.02–16.45 К (рис. 8b) и 16.45–275 К (рис. 8c). Как только спектры становятся “плоскими” – это означает, что материал перешел в нормальное состояние.

На рисунке 9 построено распределение дифференциальной проводимости ($G = dI(V)/dV$) в T - V области (рис. 9a) и зависимость дифференциальной проводимости $G_0(V \rightarrow 0)$ от температуры (рис. 9b). Из этих данных становится очевидным окончательное затухание PCS сигнала при $T_C \sim 18$ К. Установлено, что выше 18 К PCS сигнал отсутствует во всем

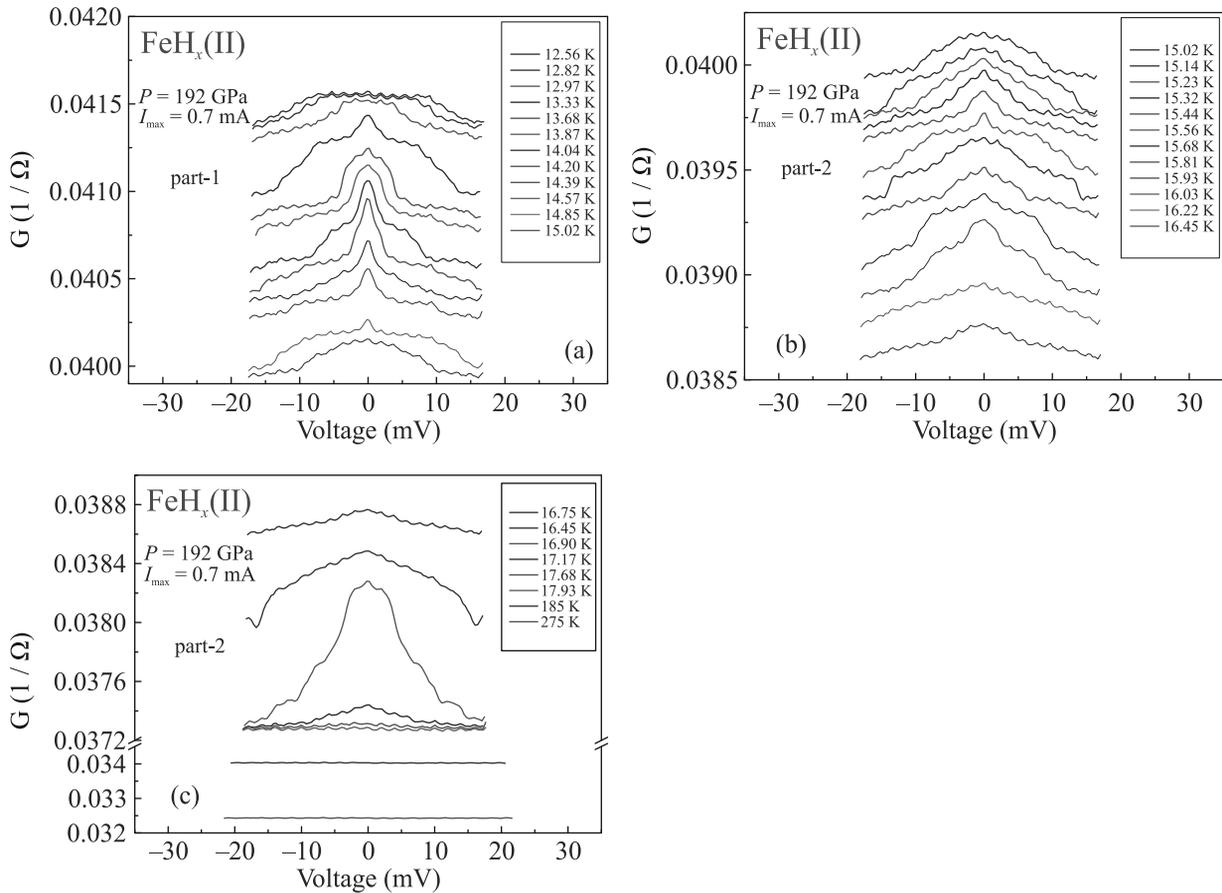


Рис. 8. (Цветной онлайн) Эволюция с ростом температуры спектров PCS (зависимость дифференциальной проводимости $G = dI(V)/dV$ от напряжения V) в полигидриде $\text{FeH}_x(\text{II})$ при давлении 192 ГПа (run-6): (a) – в диапазоне 12.56–15.02 К; (b) – в диапазоне 15.02–16.45 К; (c) – в диапазоне 16.45–275 К

диапазоне температур вплоть до комнатной температуры.

Таким образом, мы наблюдаем характерное для сверхпроводника температурное поведение PCS спектров в полигидриде $\text{FeH}_x(\text{II})$ при переходе через T_C , а именно: при увеличении температуры сигнал PCS постепенно затухает, а выше T_C сигнал отсутствует во всем диапазоне вплоть до комнатной температуры. Оценка значения $T_C \sim 18$ К из PCS спектров меньше оценки $T_C \sim 27$ К из $R(T)$ зависимости и соответствует примерно середине ступеньки на $R(T)$ зависимости.

3.5. *Обработка изображений образца (run-6) и оценка уравнения состояния $V_{\text{Fe}}(P)$.* По микрофотографиям высокого разрешения можно вычислить видимую площадь образца (S) в камере высокого давления. Из экспериментальной барической зависимости $S(P)$ мы построили барическую зависимость удельного объема, приходящегося на один атом железа $V_{\text{Fe}}(P)$ как в исходном железе ($\epsilon\text{-Fe}$), так и в син-

тезированных полигидридах (FeH_x) при росте давления и в процессе синтеза.

Объем образца в форме кусочка фольги в зависимости от условий сжатия и синтеза наиболее вероятно зависит от его площади степенным образом $V \sim S^\alpha$. Так, например, при условии изотропного образца и гидростатических условий сжатия, объем образца зависит от площади как $V \sim S^{3/2}$. В случае, когда при сжатии рабочие поверхности наковален сдвигаются (в направлении нормали к плоскости образца) намного меньше, чем боковое сжатие (вследствие движения материала гаскеты), объем образца зависит от площади как $V \sim S^1$. В действительности, показатель степени α имеет, скорее всего, некое промежуточное значение. Выбор реальной зависимости можно получить из экспериментальных рентгеноструктурных данных.

После проведения измерений, мы сравнили экспериментальные данные с рентгеновскими данными и с теоретическими результатами, как по чистому желе-

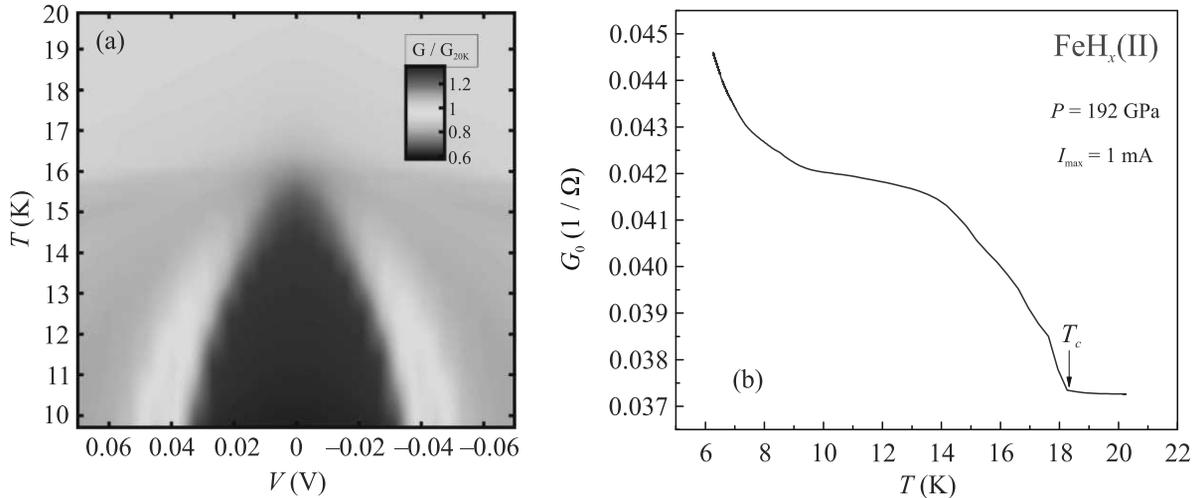


Рис. 9. (Цветной онлайн) Распределения дифференциальной проводимости ($G = dI(V)/dV$) в T - V области (а), и зависимость дифференциальной проводимости G_0 при нулевом напряжении ($V \rightarrow 0$) от температуры (б) в полигидриде $FeH_x(II)$ при давлении 192 ГПа. На рисунке (а) красный и синий цвет показывают, соответственно, большую или меньшую дифференциальную проводимость

зу [59], так и по структурам FeH_5 [19] и FeH_6 (пр. гр. $C2/c$) [24]. Оказалось, что в данной серии экспериментов объем подчиняется зависимости $V \sim S^1$ как при подъеме давления (без нагрева), так и при синтезе гидридов.

На рисунке 10 приведена барическая зависимость удельного объема (на атом железа) в полигидридах $FeH_x(I)$ и $FeH_x(II)$ в модели, когда $V \sim S^1$ как при изменении давления без нагрева, так и при лазерном нагреве при синтезе гидридов.

Таким образом, оказалось, что объем V_{Fe} меняется пропорционально видимой площади $V \sim S^1$ как при увеличении давления, так и при очередном синтезе в результате лазерного нагрева. При сравнении с теоретическими расчетами оказалось, что удельный объем на атом железа в фазе $FeH_x(I)$ соответствует фазе FeH_5 (пр. гр. $I4/mmm$) [19], а в фазе $FeH_x(II)$ соответствует структуре FeH_6 (пр. гр. $C2/c$) [24]. Детали расчетов по этому разделу приведены в дополнительных материалах.

4. Обсуждение результатов. Настоящие эксперименты, а также недавние NFS эксперименты [49] показали, что тип фазы полигидрида FeH_x очень чувствителен к условиям синтеза. В данной работе синтез проводился путем нагрева образца мощным лазерным пучком (длина волны около 1 мкм) отдельными импульсами длительностью 0.3 с. Лазерное пятно было существенно меньше размера образца, поэтому синтез осуществлялся многократными короткими импульсами в различных частях образца.

Поскольку пятно лазера еще имеет неоднородную интенсивность по радиальной координате, то в про-

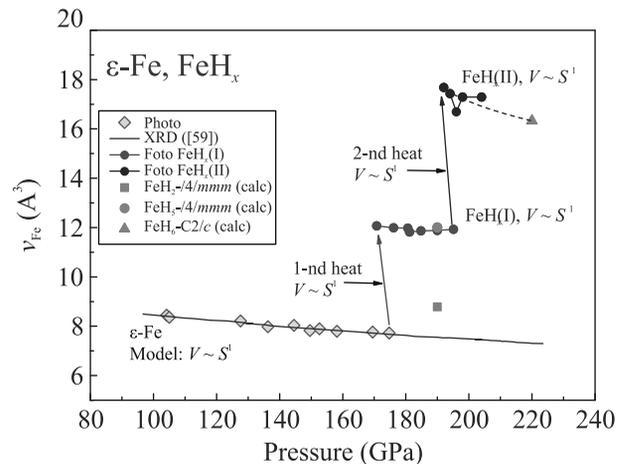


Рис. 10. (Цветной онлайн) Барическая зависимость удельного объема на атом железа в полигидридах $FeH_x(I)$ и $FeH_x(II)$ в рамках 1-й модели, когда $V \sim S^1$ как при изменении давления, так и при лазерном нагреве. Для сравнения на график нанесены значения удельного объема из экспериментальных данных для фаз ϵ -Fe [59], FeH_2 , FeH_5 [18, 19] и из теоретических расчетов для гипотетической сверхпроводящей фазы FeH_6 ($C2/c$) [24]

цессе нагрева возникает большой градиент температуры по образцу. Очевидно, что это приводит к синтезу нескольких фаз FeH_x (с близкими значениями x), которые демонстрируют сложный характер перехода в сверхпроводящее (и/или магнитное [49]) состояние.

В результате вместо резкой ступеньки на зависимости $R(T)$ при падении сопротивления в области T_C образуется несколько волнообразных спадов, со-

ответствующих наличию нескольких фаз с немного разным значением T_C .

В итоге в данном эксперименте в области мегабарных давлений 178–216 ГПа впервые синтезированы и изучены сверхпроводящие фазы двух полигидридов железа FeH_x (I) и FeH_x (II). Максимальная критическая температура в полигидриде FeH_x (I) примерно равна $T_C \sim 25$ К при давлении 192.8 ГПа, а в полигидриде FeH_x (II) максимальное значение T_C составляет ~ 27.7 К при давлении 215.8 ГПа. В исследованной области давлений значение T_C линейно растет с увеличением давления в обеих фазах гидридов с коэффициентом $dT_C/dP \sim 0.063 \pm 0.001$ К/ГПа для FeH_x (I) и $dT_C/dP \sim 0.056 \pm 0.003$ К/ГПа для FeH_x (II).

Из наших предыдущих рентгеновских и NFS [49] исследований следует, что сверхпроводимость не возникает в полигидридах железа при насыщенности образца водородом вплоть до FeH_4 .

В соответствии с данными по фазовым P - T -диаграммам и диапазоном устойчивости различных фаз, теоретически рассчитанными в работе [25], в диапазоне давлений 170–220 ГПа могут быть стабильны фазы $I4/mmm$ - FeH_5 , а также $C2/c$ - FeH_6 при $T < 500$ К или фаза $Cmmm$ - FeH_6 при $T > 500$ К. Мы предполагаем, что полученные в нашей работе сверхпроводящие фазы (FeH_x (I) и FeH_x (II)) могут соответствовать структуре FeH_5 (пр. гр. $I4/mmm$) или (и) структуре FeH_6 (пр. гр. $Cmmm$ или $C2/c$), предсказанным в работе [21], или их дефектным модификациям. Возможны также смеси этих фаз или смеси их дефектных модификаций.

Согласно теории [21], эти структуры должны быть стабильны при давлениях выше 140 ГПа, что соответствует нашему эксперименту.

Однако значение T_C , полученное в эксперименте (25–28 К), оказалось почти вдвое меньше предсказанного (47 К) для структур FeH_5 и FeH_6 [21]. Это может быть связано как с отличием синтезированных в данной работе структур от FeH_5 и FeH_6 , предсказанных в работе [21], так и с возможной неточностью теоретических вычислений T_C [21]. Данный результат требует дополнительного исследования. Но сам факт появления сверхпроводимости в полигидридах железа при давлениях выше 150 ГПа подтверждается нашими экспериментами.

Полученные результаты очень важны как с фундаментальной точки зрения физики полигидридов металлов, их магнетизма и сверхпроводимости, так и с точки зрения физики Земли и земного магнетизма. Мы планируем дальнейшие эксперименты по измерению транспортных свойств, магнитной восприимчивости, спектров комбинационного рассеяния, а

также по изучению структуры сверхпроводящих фаз FeH_x , и теоретический анализ результатов.

Работа была выполнена главным образом при поддержке гранта Российского научного фонда # 21-12-00344. Юстировочная система рамановской установки, используемой при подготовке экспериментальныхборок, была создана при поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках выполнения работ по гранту # 075-15-2021-1362. При подготовке зарядки образцов для эксперимента использовалось оборудование ЦКП “Ускорительный центр нейтронных исследований структуры вещества и ядерной медицины” Института ядерных исследований РАН. Предварительные рентгеноструктурные исследования, а также частьборок камер высокого давления для измерения электросопротивления выполнены в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” с использованием оборудования ЦКП.

Мы также благодарим европейский синхротрон ESRF (Гренобль, Франция) за использование оборудования станции ID-27 для измерения синхротронной рентгеновской дифракции, а также М. Мезуара и В. Свитлых за помощь при работе на станции ID-27.

1. D. Y. Pushcharovsky, *Geochemistry International* **57**, 941 (2019).
2. K. D. Litasov and A. F. Shatskiy, *Russian Geology and Geophysics* **57**, 22 (2016).
3. Z. G. Bazhanova, V. V. Roizen, and A. R. Oganov, *Phys.-Uspekhi* **60**, 1025 (2017).
4. K. D. Litasov, Z. I. Popov, P. N. Gavryushkin, S. G. Ovchinnikov, and A. S. Fedorov, *Russian Geology and Geophysics* **56**, 164 (2015).
5. K. Hirose, B. Wood, and L. Vočadlo, *Nat. Rev. Earth Environ.* **2**, 645 (2021).
6. S. Tagawa, N. Sakamoto, K. Hirose, S. Yokoo, J. Hernlund, Y. Ohishi, and H. Yurimoto, *Nat. Commun.* **12**, 2588 (2021).
7. S. Tagawa, H. Gomi, K. Hirose, and Y. Ohishi, *Geophys. Res. Lett.* **49**, e2021GL096260 (2022).
8. N. Hirao, T. Kondo, E. Ohtani, K. Takemura, and T. Kikegawa, *Geophys. Res. Lett.* **31**, L06616-1 (2004).
9. Y. He, D. Y. Kim, V. V. Struzhkin, Z. M. Geballe, V. Prakapenka, and H.-k. Mao, *Sci. Bull.* **68**(4), 1567 (2023).
10. M. J. Walter, *National Science Review* **8**, nwab007 (2021).
11. H. Mao and W. L. Mao, *Matter and Radiation at Extremes* **5**, 038102 (2020).

12. A. P. Drozdov, M. I. Eremets, I. A. Troyan, V. Ksenofontov, and S. I. Shylin, *Nature* **525**, 73 (2015).
13. I. Troyan, A. Gavriiliuk, R. Rüffer, A. Chumakov, A. Mironovich, I. Lyubutin, D. Perekalin, A. P. Drozdov, and M. I. Eremets, *Science* **351**, 1303 (2016).
14. M. Somayazulu, M. Ahart, A. K. Mishra, Z. M. Geballe, M. Baldini, Y. Meng, V. V. Struzhkin, and R. J. Hemley, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 027001 (2019).
15. I. A. Troyan, D. V. Semenov, A. G. Kvashnin et al. (Collaboration), *Advanced Materials* **2006832** (2021).
16. D. Wang, Y. Ding, and H.-K. Mao, *Materials* **14**, 7563 (2021).
17. I. A. Troyan, D. V. Semenov, A. G. Ivanova, A. G. Kvashnin, D. Zhou, A. V. Sadakov, O. A. Sobolevskiy, V. M. Pudalov, I. S. Lyubutin, and A. R. Oganov, *Physics-Uspekhi* **65**, 748 (2022).
18. C. M. Pépin, A. Dewaele, G. Geneste, P. Loubeyre, and M. Mezouar, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 265504 (2014).
19. C. M. Pépin, *Science* **357**, 382 (2017).
20. Z. G. Bazhanova, A. R. Oganov, and O. Gianola, *Phys.-Uspekhi* **55**, 489 (2012).
21. A. G. Kvashnin, I. A. Kruglov, D. V. Semenov, and A. R. Oganov, *J. Phys. Chem. C* **122**, 4731 (2018).
22. F. Li, D. Wang, H. Du, D. Zhou, Y. Ma, and Y. Liu, *RSC Adv.* **7**, 12570 (2017).
23. N. Zarifi, T. Bi, H. Liu, and E. Zurek, *J. Phys. Chem. C* **122**, 24262 (2018).
24. S. Zhang, J. Lin, Y. Wang, G. Yang, A. Bergara, and Y. Ma, *J. Phys. Chem. C* **122**, 12022 (2018).
25. D. N. Sagatova, P. N. Gavryushkin, N. E. Sagatov, I. V. Medrish, and K. D. Litasov, *JETP Lett.* **111**, 145 (2020).
26. V. E. Antonov, I. T. Belash, V. F. Degtyareva, E. G. Ponyatovskii, and V. I. Shiryayev, *Sov. Phys. Dokl., Engl. Transl.* **25**, 490 (1980).
27. V. E. Antonov, I. T. Belash, and E. G. Ponyatovsky, *Scr. Mater.* **16**, 203 (1982).
28. V. E. Antonov, I. T. Belash, E. G. Ponyatovskii, V. G. Thiessen, and V. I. Shiryayev, *Phys. Status Solidi A* **65**, K43 (1981).
29. V. E. Antonov, I. T. Belash, V. F. Degtyareva, D. N. Mogilyansky, B. K. Ponomarev, and V. S. Shekhtman, *Sov. Phys. Dokl.* **14**, 371 (1989).
30. V. E. Antonov, K. Cornell, V. K. Fedotov, A. I. Kolesnikov, E. G. Ponyatovsky, V. I. Shiryayev, and H. Wipf, *J. Alloys Compounds* **264**(1–2), 214 (1998).
31. V. E. Antonov, M. Baier, B. Dorner, V. K. Fedotov, G. Grosse, A. I. Kolesnikov, E. G. Ponyatovsky, G. Schneider, and F. E. Wagner, *J. Phys. Condens. Matter* **14**, 6427 (2002).
32. Y. Fukai, M. Yamakata, and T. Yagi, *Z. Für Phys. Chem.* **179**, 119 (1993).
33. H. Saitoh, A. Machida, H. Sugimoto, T. Yagi, K. Aoki, and K. Aoki, *J. Alloys Compd.* **706**, 520 (2017).
34. M. Yamakata, T. Yagi, W. Utsumi, and Y. Fukai, *Proc. Jpn. Acad. Ser. B* **68**, 172 (1992).
35. I. Choe, R. Ingalls, J. M. Brown, Y. Sato-Sorensen, and R. Mills, *Phys. Rev. B* **44**, 1 (1991).
36. J. V. Badding, R. J. Hemley, and H. K. Mao, *Science* **253**, 421 (1991).
37. K. Sakamaki, E. Takahashi, Y. Nakajima, Y. Nishihara, K. Funakoshi, T. Suzuki, and Y. Fukai, *Phys. Earth Planet. Inter.* **174**, 192 (2009).
38. O. Narygina, L. Dubrovinsky, C. McCammon, A. Kurnosov, I. Kantor, V. B. Prakapenka, and N. Dubrovinskaya, *Earth Planet. Sci. Lett.* **307**, 409 (2011).
39. C. Kato, K. Umemoto, K. Ohta, S. Tagawa, K. Hirose, and Y. Ohishi, *Am. Mineral.* **105**, 917 (2020).
40. A. Machida, H. Saitoh, T. Hattori, A. Sano-Furukawa, K. Funakoshi, T. Sato, S. I. Orimo, K. Aoki, and K. Aoki, *Sci. Rep.* **9**, 12290 (2019).
41. K. Ohta, S. Suehiro, K. Hirose, and Y. Ohishi, *Comptes Rendus Geosci.* **351**, 147 (2019).
42. J. Ying, J. Zhao, W. Bi, E. E. Alp, Y. Xiao, P. Chow, G. Shen, and V. V. Struzhkin, *Phys. Rev. B* **101**, 020405(R) (2020).
43. E. C. Thompson, A. H. Davis, W. Bi, J. Zhao, E. E. Alp, D. Zhang, E. Greenberg, V. B. Prakapenka, and A. J. Campbell, *Geochem. Geophys. Geosyst.* **19**, 305 (2018).
44. A. Majumdar, J. S. Tse, M. Wu, and Y. Yao, *Phys. Rev. B* **96**, 201107(R) (2017).
45. C. Heil, G. B. Bachelet, and L. Boeri, *Phys. Rev. B* **97**, 214510 (2018).
46. A. Gavriiliuk, I. Trojan, S. Aksenov, O. Leupold, I. Sergeev, H. Wille, A. Mironovich, I. Lyubutin, and V. Struzhkin, *EPSC-DPS Joint Meeting 2019* **13**, EPSC-DPS2019-886 (2019).
47. I. S. Lyubutin, I. A. Troyan, and A. G. Gavriiliuk, *XVI International Conference Mössbauer Spectroscopy and its Applications, XVII ICMSA, 5-9 September, Ekaterinburg, Russia* (2022), p. 69.
48. A. G. Gavriiliuk, V. V. Struzhkin, S. N. Aksenov, A. A. Mironovich, I. A. Troyan, A. G. Ivanova, and I. S. Lyubutin, *JETP Lett.* **117**, 126 (2023).
49. A. G. Gavriiliuk, V. V. Struzhkin, S. N. Aksenov, A. G. Ivanova, A. A. Mironovich, I. A. Troyan, and I. S. Lyubutin, *JETP Lett.* **116**, 804 (2022).
50. Yu. V. Kondrat'ev, A. V. Butlak, I. V. Kazakov, and A. Y. Timoshkin, *Thermochimica Acta* **622**, 64 (2015).
51. H.-K. Mao, W. A. Bassett, and T. Takahashi, *J. Appl. Phys.* **38**, 272 (1967).
52. N. V. Barge and R. Boehler, *High Pressure Research* **6**, 133 (1990).
53. R. Boehler, N. v. Barga, and A. Chopelas, *J. Geophys. Res.* **95**, 21731 (1990).

54. Y. Akahama and H. Kawamura, *J. Appl. Phys.* **100**, 043516 (2006).
55. H. E. Swanson, R. K. Fuyat, and G. M. Urganic, *Natl. Bur. Stand. (U.S.)* **IV**, 3 (1955).
56. D. Daghero and R. S. Gonnelli, *Supercond. Sci. Technol.* **23**, 043001 (2010).
57. Z.-Y. Cao, H. Jang, S. Choi, J. Kim, S. Kim, J.-B. Zhang, A. S. Sharbirin, J. Kim, and T. Park, *NPG Asia Mater.* **15**, 5 (2023).
58. S. A. Kuzmichev and T. E. Kuzmicheva, *Low Temp. Phys.* **42**, 1008 (2016).
59. N. Hirao, Y. Akahama, and Y. Ohishi, *Matter and Radiation at Extremes* **7**, 038403 (2022).

Температурная зависимость запрещенной зоны полностью фторированных/гидрированных углеродных нанотрубок: роль одномерных цепочек

В. Л. Катков¹⁾, В. А. Осипов¹⁾

Лаборатория теоретической физики имени Н. Н. Боголюбова,
Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

Поступила в редакцию 10 октября 2023 г.

После переработки 17 октября 2023 г.

Принята к публикации 18 октября 2023 г.

Теоретически исследована температурная зависимость величины запрещенной зоны $E_g(T)$ в одностенных углеродных нанотрубках типа “зигзаг” при максимальном (50-процентном) фторировании и гидрировании для трех вариантов покрытия. Показано, что характер покрытия критически влияет на зависимость $E_g(T)$, которая может меняться в широких пределах от очень слабой, характерной для чистых углеродных нанотрубок, до сильной, типичной для объемных полупроводников. Характер температурного поведения $E_g(T)$ напрямую связан с формированием в трубках одномерных альтернированных цепочек. Основными факторами, определяющими данную зависимость, являются диаметр углеродных нанотрубок, способ расположения примеси и ее тип.

DOI: 10.31857/S1234567823220081, EDN: pixldd

Введение. Уникальные свойства углеродных нанотрубок (УНТ) обуславливают возможности их широкого практического применения в наноэлектронике, оптоэлектронике и других областях. В настоящее время наибольший интерес вызывает использование однослойных УНТ при создании инфракрасных сенсоров и биосенсоров, интегральных схем, полевых транзисторов, ячеек памяти, элементов солнечных батарей (см., например, обзор [1]). Ключевую роль при проектировании таких устройств играет наличие энергетической щели в электронном спектре и возможность управления ее величиной (*band engineering*). Также важной характеристикой для различных приложений в туннельной электронике, оптоэлектронике, исследовании оптических свойств (спектры пропускания и поглощения), люминесценции и т.д. является зависимость величины запрещенной зоны от температуры. Поскольку в УНТ запрещенная зона прямо связана с диаметром ($E_g \sim 1/d$) и хиральностью, появляется возможность подбирать необходимое значение путем использования наиболее подходящей для конкретных целей УНТ. Следующим шагом, расширяющим возможность настройки запрещенной зоны, является химическая функционализация УНТ. Экспериментальные и теоретические исследования показали, что имеется лишь огра-

ниченное число перспективных вариантов химической функционализации графеноподобных материалов. Фактически, относительно надежно такие материалы могут быть покрыты фтором, водородом и кислородом (см., например, [2–4]).

Как было показано в [5], чистые УНТ делятся на два семейства, для каждого из которых тип зависимости запрещенной зоны от температуры принципиально различен. Монотонная зависимость, типичная для большинства полупроводников, характерна для нанотрубок с индексами хиральности m и n , удовлетворяющими условию $(m - n) \bmod 3 \neq 2$. Принципиально иной тип зависимости характерен для семейства $(m - n) \bmod 3 = 2$. Здесь имеет место увеличение запрещенной зоны с ростом температуры, но затем происходит изменение поведения, и при дальнейшем росте T величина $E_g(T)$ начинает падать. В нашем исследовании мы будем рассматривать три нанотрубки типа “зигзаг” с увеличивающимся радиусом: двух характерных представителей первого семейства (10, 0) и (12, 0) и одного второго (14, 0), в условиях фторирования и гидрирования.

Эксперименты по фторированию одностенных УНТ показывают, что наибольшей степени фторирования соответствует стехиометрия C_2F [6]. Этот факт подтверждается также и теоретическими расчетами [7, 8]. Вместе с тем, DFT-расчеты демонстрируют, что использование в качестве ковалентной при-

¹⁾e-mail: katkov@theor.jinr.ru; osipov@theor.jinr.ru

меси водорода вместо фтора порождает структуры C_2H , аналогичные структурам C_2F по расположению атомов [9]. Сравнение энергий связи для аналогично допированных углеродных квантовых точек при замене водорода фтором проведено в работе [10].

Целью данной работы является выявление особенностей влияния характера покрытия и типа примеси на температурную зависимость $E_g(T)$ для максимально фторированных и гидрированных одностенных УНТ. Мы рассмотрим три варианта расположения примесных атомов, которые возникают при максимальном (50%) заполнении [8], назовем их “линия”, “спираль” и “цепочка” (см. рис. 1). Как и в работах [7–9] будет исследована УНТ (10, 0), дополнительно – УНТ (12, 0), а также (14, 0), как представитель семейства $(m-n) \bmod 3 = 2$, которое имеет немонотонное поведение $E_g(T)$ в случае чистых УНТ.

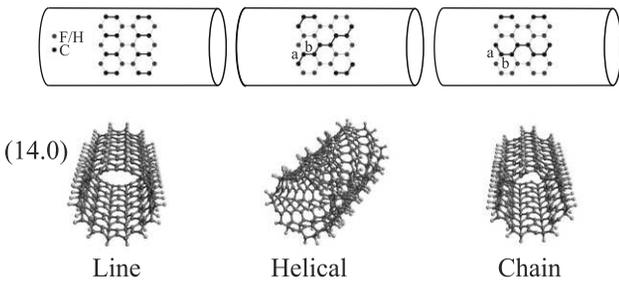


Рис. 1. (Цветной онлайн) Три возможных типа максимального фторирования/гидрирования: “линия”, “спираль” и “цепочка”. Схема конфигурации атомов фтора/водорода. Жирными линиями выделены π -связи углерода, образующие димеры, транс- и цис-конфигурированные цепочки, соответственно. Ниже вид УНТ (14, 0) с соответствующим типом допирования

Метод расчета. Проблема адекватного расчета $E_g(T)$ и оценка вклада в эту величину нулевых колебаний атомов имеет богатую историю (см., например, [11, 12]). Недавно был предложен очередной эффективный подход, основанный на методе “специального смещения” (*the special displacement method*) [13, 14]. С помощью данного метода были рассчитаны зависимости $E_g(T)$ для различных графеновых квантовых точек [15], а его модификации в комбинации с GW-приближением и методом Монте-Карло были использованы для вычисления перенормировки запрещенной зоны в различных полупроводниках [16–18]. В какой-то мере данный подход можно рассматривать как развитие методов “термической линии” [19] и “замороженных фононов” [5]. В данной работе мы использовали метод “замороженных фононов”, поскольку расчеты показали, что для

рассматриваемых УНТ он является менее требовательным к вычислительным ресурсам при том, что дает идентичные результаты.

Суть метода заключается в том, что для достаточно большой суперячейки производится расчет спектра мод фононных колебаний $\{\omega_i\}$ и соответствующего набора векторов поляризации $\{e_i\}$, нормированных обычным образом $e_i e_j = \delta_{ij}$. Размер суперячейки выбирается так, чтобы дальнейшее его увеличение не влияло на полученные результаты (в наших расчетах все ячейки имели размер порядка 10^3 атомов). Затем для каждой i -й моды дважды производится смещение всех атомов суперячейки на величины “замороженного” фононного смещения $\pm \mathbf{x}_i$:

$$\mathbf{x}_i = \sqrt{\frac{\hbar}{m_\alpha \omega_i}} \mathbf{e}_i(\alpha). \quad (1)$$

Здесь m_α – масса атома α . После смещения для каждой полученной конфигурации вычисляется энергетический спектр, в частности, позиция дна зоны проводимости (LUMO), вершины валентной зоны (HOMO) и запрещенная зона $E_g(\pm \mathbf{x}_i)$. Всего колебательных мод $3N$, где N – число атомов в суперячейке, а с учетом того, что каждой моде соответствует два смещения, произвести расчет спектра необходимо для $6N$ конфигураций. Далее необходимо дважды найти разницу между значением искомой величины в структуре без смещений атомов и в структуре, искаженной фононной модой: $\Delta E_g(\pm \mathbf{x}_i) = E_g(\pm \mathbf{x}_i) - E_g(0)$, а затем провести усреднение, избавившись от возможных линейных вкладов:

$$\frac{\partial E_g}{\partial n_i} \equiv \frac{\Delta E_g(+\mathbf{x}_i) + \Delta E_g(-\mathbf{x}_i)}{2}. \quad (2)$$

Полученный в итоге набор значений $\{\partial E_g / \partial n_i\}$ характеризует степень влияния каждой фононной моды на величину запрещенной зоны. Температурная зависимость запрещенной зоны $\Delta E_g(T) = E_g(T) - E_g(0)$ может быть найдена согласно соотношению

$$\Delta E_g(T) = \sum_i \frac{\partial E_g}{\partial n_i} n_i(T), \quad (3)$$

где $n_i(T) = [\exp(\hbar \omega_i / k_B T) - 1]^{-1}$ – распределение Бозе–Эйнштейна.

Оптимизация структур и вычисление мод фононных колебаний были проведены с использованием программного пакета DFTB+ (в том числе программы MODES) [20] и применением метода параметризации интегралов сильной связи GFN1-xTB [21]. Выбор метода GFN1-xTB обусловлен тем, что рассчитанные с его помощью фононные спектры чистых

УНТ оказались наиболее близки к таковым, полученным ранее методом DFT [22]. Для расчета положения энергетических уровней с нужной точностью были использованы, создаваемые DFTB+ матрицы параметров перескока H и соответствующие матрицы перекрытия волновых функций S (аналогично работе [23]).

Результаты и обсуждение. Зависимость величины $\Delta E_g(T)$ для чистых нанотрубок (10,0) и (14,0) представлена на рис. 2. Полученные результаты практически идентичны таковым в [5], что указывает на адекватность использования DFTB+ для решения подобных задач.

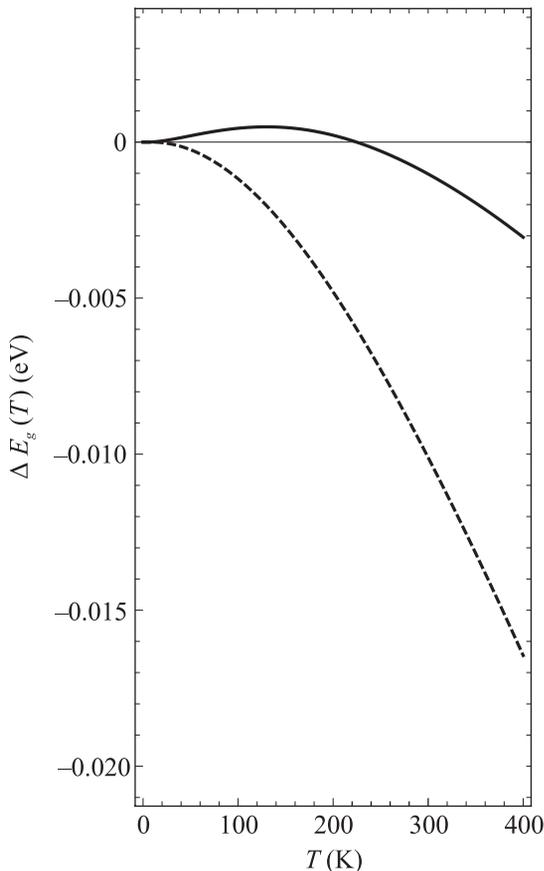


Рис. 2. $\Delta E_g(T)$ для УНТ (14,0) – сплошная линия и УНТ (10,0) – пунктирная линия

Все рассматриваемые допированные УНТ оказались полупроводниковыми, в том числе фторированная (10,0) типа “цепочка”. Это, с одной стороны, не согласуется с работой [7], где также был использован метод DFTB, но соответствует работе [8], где величина запрещенной зоны была получена из первых принципов и определена как 0.9 эВ. На наш взгляд, указанное отличие связано с тем, что при использовании DFTB+ мы применяем другой, не такой как

в [7], метод параметризации интегралов перескока. Полученные при нулевой температуре значения запрещенных зон приведены в табл. 1.

Таблица 1. Запрещенная зона для всех рассмотренных структур с примесью фтор/водород (в эВ)

	Линия	Спираль	Цепочка
(10,0)	2.47/ 3.81	1.24/ 1.02	0.42/0.46
(12,0)	2.48/3.58	1.14/1.01	0.59/0.62
(14,0)	2.48/3.41	1.11/0.99	0.73/0.78

Как было указано в работе [7], критическим фактором, влияющим на величину $E_g(T)$, является следующий: изолирован или нет свободный от ковалентной примеси углерод, связанный π -электронами. Как видно из рис. 1, в случае УНТ типа “линия” островки двойных π -связей изолированы друг от друга атомами, соединенными с примесью. В этом случае запрещенная зона достаточно велика (порядка 3 эВ) для всех УНТ независимо от типа примеси. Проведенный нами анализ парциального вклада орбиталей в плотность энергетических состояний также показывает, что в этом случае уровни НОМО и LUMO образованы с участием электронов атомов Н и F. Поскольку орбитали примесных атомов непосредственно участвуют в формировании запрещенной зоны, ее зависимость от типа атома достаточно велика.

В случае УНТ типа “спираль” атомы углерода образуют цепочки с транс-конфигурацией. При этом запрещенная зона существует, но ее значение относительно невелико (порядка 1 эВ). Природа появления запрещенной зоны обусловлена альтернированным характером таких цепочек. Длины связи в ней чередуются (см. табл. 2) и, соответственно, чередуются

Таблица 2. Длины чередующихся связей (a, b), изображенных на рис. 1, для π -цепочек (в пм)

	Спираль	Цепочка
(10,0) C ₂ F	(135.2, 144.9)	(142.2, 139.3)
C ₂ H	(135.0, 144.7)	(141.9, 137.2)
(12,0) C ₂ F	(135.6, 145.2)	(143.0, 138.8)
C ₂ H	(135.3, 144.9)	(142.4, 136.6)
(14,0) C ₂ F	(135.9, 145.3)	(143.5, 138.5)
C ₂ H	(135.6, 145.1)	(143.1, 136.6)

ются интегралы перескока между ближайшими атомами. Такую картину также подтверждает анализ парциальной плотности состояний, который показывает, что уровни НОМО и LUMO образованы исключительно орбиталями атомов π -связанных цепочек. Следствием этого, в частности, является то, что зна-

чение запрещенной зоны слабо зависит от типа примеси (см. табл. 1).

УНТ типа “цепочка” содержат цис-конфигурированные цепочки свободных от примеси атомов углерода, вытянутые вдоль оси трубки. Они также имеют чередующиеся связи (см. табл. 2), которые отвечают за запрещенную зону в УНТ. В данном случае, в отличие от остальных, E_g растет с увеличением диаметра.

Температурная зависимость $\Delta E_g(T)$ для всех рассмотренных УНТ показана на рис. 3. Как видно, для УНТ типа “линия” имеет место заметное усиление зависимости $\Delta E_g(T)$ по сравнению с таковой для чистых УНТ. Такое поведение можно объяснить, если принять во внимание, что запрещенная зона в таких УНТ сформирована как орбиталями углерода, так и орбиталями примесных атомов, которые имеют свое колебательное поведение. Согласно (1), более легкий по сравнению с фтором водород приводит к более сильным искажениям структуры, что в итоге проявляется в заметном усилении электрон-фононного взаимодействия для C_2H .

Наиболее интересен случай УНТ типа “цепочка”. Здесь наблюдается изменение $\Delta E_g(T)$ в зависимости от диаметра УНТ, причем с ростом диаметра происходит увеличение наклона $\Delta E_g(T)$ как для случая фтора, так и для случая водорода. Для случая водорода эта закономерность проявляется гораздо заметнее. Такое поведение можно объяснить, если обратиться к анализу спектров $\{\partial E_g/\partial n_i\}$. Как и в случае чистых УНТ [5], наибольшее значение в этом наборе имеют коэффициенты, соответствующие низколежащим оптическим модам, изменяющим форму УНТ единообразно вдоль ее оси (так называемые “*shape-deformation modes*”). Они являются аналогом поперечных акустических колебаний (ZA-ветки) в графене. Согласно (3), чем ниже энергия моды, тем больший вклад она внесет в температурную зависимость запрещенной зоны. Анализ спектра $\{\partial E_g/\partial n_i\}$ показывает, что решающее влияние на поведение $E_g(T)$ для всех рассмотренных УНТ типа “цепочка” оказывает самая низкоэнергетическая “эллиптическая” или “сплющивающая” мода (*squashing mode*) (см. рис. 4). Для этой моды коэффициенты $\partial E_g/\partial n_i$ заметно уменьшаются (увеличиваются по абсолютному значению) при движении в сторону увеличения диаметра УНТ.

Специфика этой моды такова, что она не меняет длину тех π -связей цепочки, которые параллельны оси нанотрубки, но единым образом меняет длину связей, расположенных под углом к ее оси (см. рис. 4а). Таким образом, меняется отношение длин

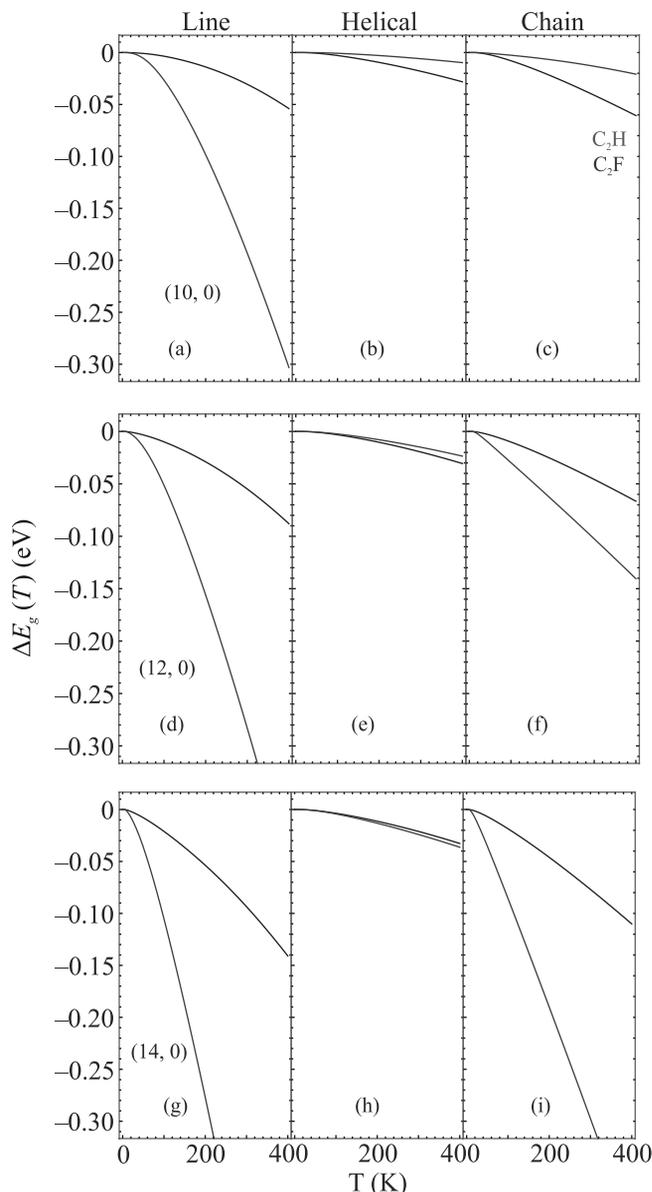


Рис. 3. (Цветной онлайн) $\Delta E_g(T)$ для трубок (10, 0) – (a)–(c); (12, 0) – (d)–(f) и (14, 0) – (g)–(i). Красная линия соответствует структурам C_2H , синяя – C_2F . Графики расположены слева направо в порядке “линия”, “спираль”, “цепочка”

последовательно чередующихся связей, и, соответственно, интегралов перескока. Иными словами, меняется степень альтернирования цепочки. Причем, как видно из рис. 4а, альтернирование для одних цепочек может уменьшаться, а для других, в то же время, увеличиваться в зависимости от того, в какой точке “эллипса” они расположены. Энергия “эллиптической” моды уменьшается с ростом ее “длины волны”, которая ограничена периметром поперечного сечения нанотрубки. Согласно (1), уменьшение

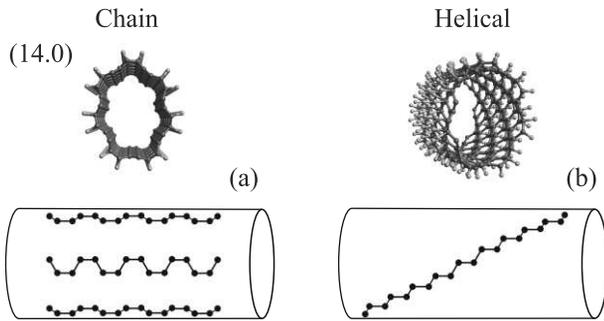


Рис. 4. (Цветной онлайн) Изображение наиболее низкоэнергетической “эллиптической” оптической моды для УНТ типа “цепочка” и “спираль”, а также схема деформации соответствующих альтернированных цепочек

энергии данной моды приводит к увеличению соответствующего ей искажения и, как итог, к существенному изменению степени альтернирования и, соответственно, более значительному изменению запрещенной зоны.

В итоге, при увеличении диаметра УНТ типа “цепочка” поведение $E_g(T)$ меняется критическим образом: от характерного для чистых нанотрубок до поведения, характерного для нанотрубок типа “линия”, где полиацетиленоподобные альтернированные цепочки вообще отсутствуют.

Расчеты показали, что зависимость $\Delta E_g(T)$ в трубках типа “спираль” весьма слабая, почти не зависит от типа примеси и близка к таковой у чистых УНТ. Анализ величин $\{\partial E_g/\partial n_i\}$ показывает, что весь спектр значений заметно ниже в сопоставлении с предыдущими случаями, т.е. электрон-фононное взаимодействие подавлено для всех мод. Температурная зависимость запрещенной зоны в УНТ типа “спираль” почти не зависит от ее диаметра. “Эллиптическая” мода здесь не имеет такого существенного влияния, как для трубок типа “цепочка”, поскольку здесь связанное с ней искажение решетки приводит не к строго последовательному чередованию длин π -связей, а к гладкой модуляции длин “поперечных” связей транс-конфигурированной цепочки с периодом, равным половине длины одного витка намотки цепочки, как показано на рис. 4б. Подобное растянутое искажение цепочки не оказывает столь заметного влияния на значение величины запрещенной зоны, как в случае альтернирования.

Закключение. Мы рассмотрели температурную динамику запрещенной зоны для УНТ типа “зигзаг” с максимальной (пятидесятипроцентной) концентрацией ковалентной примеси. В качестве ковалентной примеси рассматривались фтор и водород, которые одновалентны и образуют схожие струк-

туры. Во всех случаях обнаружено поведение, характерное для объемных полупроводников, а именно, строгое уменьшение величины запрещенной зоны с ростом температуры. Особенности для случая $(m - n) \bmod 3 = 2$, характерной для чистых УНТ, в случае допированных УНТ не обнаружено. Оказалось, что как значение запрещенной зоны, так и функция $\Delta E_g(T)$ могут критическим образом зависеть от таких факторов, как способ размещения примеси, тип ковалентной примеси и диаметр УНТ. Специфика поведения $\Delta E_g(T)$ обусловлена тем, что в УНТ образуются либо разделенные димеры, либо цепочки атомов углерода с цис- или транс-конфигурацией, электронное поведение которых обусловлено π -электронами углерода, а колебательное поведение определяется цилиндрическим остовом трубки. В УНТ типа “линия” наклон $\Delta E_g(T)$ намного больше случая чистых УНТ, и строго зависит как от типа примеси F/H, так и от диаметра. В УНТ типа “спираль” наклон мал и сравним с таковым у чистых УНТ. Зависимость от типа примеси и диаметра трубки крайне слабая. Интересен тот факт, что вариант допирования “спираль” в случае C_2F является наиболее стабильным [8]. В УНТ типа “цепочка” наблюдается заметный рост наклона $\Delta E_g(T)$ с увеличением диаметра, что связано с критическим влиянием “эллиптической” фононной моды на параллельные оси УНТ цис-конфигурированные цепочки. Влияние замены F/H в этом случае также значительно.

Таким образом, допированные УНТ предоставляют уникальные возможности для создания полупроводников с настраиваемой в широких пределах температурной зависимостью запрещенной зоны. Для структур, где важна температурная стабильность E_g и ее малая величина (канал полевого транзистора), предпочтительными будут УНТ типа “спираль” и “линия” с малым диаметром. Для приложений, где решающую роль играет температурная чувствительность (датчик температуры, сенсор ИК излучения) могут быть использованы УНТ типа “линия” и “цепочка” большого диаметра. Отметим также уникальность фторированных и гидрированных УНТ с точки зрения базы для создания одномерных полиацетиленоподобных цепочек. Для сравнения, в графене формирование одномерных цепочек путем, к примеру, фторирования будет затруднено, так как его наиболее стабильной стехиометрией является CF [10].

1. L. Qian, Y. Xie, S. Zhang, and J. Zhang, Matter **3**, 664 (2020).

2. R. D. Yamaletdinov, V. L. Katkov, Y. A. Nikiforov, A. V. Okotrub, and V. A. Osipov, *Advanced Theory and Simulations* **3**(4), 1900199 (2020).
3. L. A. Chernozatonskii, P. B. Sorokin, and A. A. Artukh, *Russ. Chem. Rev.* **83**, 251 (2014).
4. J. E. Johns and M. C. Hersam, *Acc. Chem. Res.* **46**(1), 77 (2013); PMID: 23030800.
5. R. B. Capaz, C. D. Spataru, P. Tangney, M. L. Cohen, and S. G. Louie, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 036801 (2005).
6. E. T. Mickelson, I. W. Chiang, J. L. Zimmerman, P. J. Boul, J. Lozano, J. Liu, R. E. Smalley, R. H. Hauge, and J. L. Margrave, *J. Phys. Chem. B* **103**(21), 4318 (1999).
7. G. Seifert, T. Köhler, and T. Frauenheim, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 1313 (2000).
8. K. N. Kudin, H. F. Bettinger, and G. E. Scuseria, *Phys. Rev. B* **63**, 045413 (2001).
9. C. W. Bauschlicher, *Nano Lett.* **1**(5), 223 (2001).
10. M. de Avila Ribas, A. K. Singh, P. B. Sorokin, and B. I. Yakobson, *Nano Res.* **4**, 143 (2010).
11. S. Poncé, G. Antonius, Y. Gillet, P. Boulanger, J. Laflamme Janssen, A. Marini, M. Côté, and X. Gonze, *Phys. Rev. B* **90**, 214304 (2014).
12. J.-M. Lihm and C.-H. Park, *Phys. Rev. B* **101**, 121102 (2020).
13. M. Zacharias and F. Giustino, *Phys. Rev. B* **94**, 075125 (2016).
14. M. Zacharias and F. Giustino, *Phys. Rev. Res.* **2**, 013357 (2020).
15. M. Zacharias and P. C. Kelires, *J. Phys. Chem. Lett.* **12**, 9940 (2021).
16. F. Karsai, M. Engel, E. Flage-Larsen, and G. Kresse, *New J. Phys.* **20**, 123008 (2018).
17. Y. Zhang, Z. Wang, J. Xi, and J. Yang, *J. Phys. Condens. Matter* **32**, 475503 (2020).
18. H. Shang and J. Yang, *J. Chem. Phys.* **158**, 130901 (2023).
19. B. Monserrat, *Phys. Rev. B* **93**, 014302 (2016).
20. B. Hourahine, B. Aradi, V. Blum et al. (Collaboration), *J. Chem. Phys.* **152**, 124101 (2020).
21. S. Grimme, C. Bannwarth, and P. Shushkov, *J. Chem. Theory Comput.* **13**, 1989 (2017).
22. O. Dubay and G. Kresse, *Phys. Rev. B* **67**, 035401 (2003).
23. A. Croy, E. Unsal, R. Biele, and A. Pecchia, *J. Comput. Electron.* **22**, 1231 (2023).

Возбуждение джозефсоновских токов колебаниями аэрогеля в сверхтекучем ^3He

Е. В. Суровцев¹⁾

Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН, 119334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 октября 2023 г.

После переработки 18 октября 2023 г.

Принята к публикации 18 октября 2023 г.

В работе решена задача о механических колебаниях аэрогеля, прикрепленного к упругой нити, происходящих в сверхтекучем ^3He для случая, когда внутри аэрогеля также реализуется сверхтекучее состояние. Рассмотренные в работе гидродинамические граничные условия на поверхности аэрогеля позволяют объяснить аномально быстрый рост частоты механических колебаний системы с понижением температуры. Найденное соотношение между скачком фазы на границе аэрогеля и протекающим через границу сверхтекучим током указывает на его джозефсоновский характер.

DOI: 10.31857/S1234567823220093, EDN: ogqlif

1. Введение. Эксперименты с колеблющимся в сверхтекучем ^3He аэрогелем широко применяются для исследования влияния примесей (магнитных или немагнитных) на сверхтекучие свойства ^3He . Как известно, в случае p -спаривания даже немагнитные примеси могут приводить к подавлению сверхтекучести системы [1]. Помимо простого подавления параметра порядка, симметрия аэрогеля позволяет реализовывать сверхтекучие фазы, существование которых было энергетически невыгодно в чистом ^3He [2–4]. Одной из таких фаз является полярная фаза сверхтекучего ^3He , для которой при некоторых условиях выполнен аналог теоремы Андерсона [5], т.е. примеси не влияют на ее термодинамические свойства. Первые эксперименты указанного выше типа, в которых использовались кремниевые аэрогели, т.е. состоящие из нитей SiO_2 , были описаны в работах [6–8]. Одним из результатов указанных работ было указание на то, что сверхтекучий ^3He внутри аэрогеля находится в состоянии Ларкина–Имри–Ма для А-фазы [9]. В настоящее время важным направлением исследований с помощью данной методики является изучение свойств сверхтекучего ^3He в так называемых немагнитических аэрогелях, которые состоят из сонаправленных нитей [10]. В ходе экспериментов с данным типом аэрогеля была обнаружена β -фаза сверхтекучего ^3He [4], а также исследовано влияние магнитных примесей на фазовую диаграмму сверхтекучего ^3He [11].

Во всех экспериментах указанного типа аэрогель прикреплялся к тонкой П-образной сверхпроводя-

щей нити, помещался в ячейку, заполненную ^3He , и на систему накладывалось постоянное магнитное поле. Далее по нити пропускался переменный электрический ток, который за счет силы Лоренца, действующей на нить, приводил к возбуждению механических колебаний системы. При самом простом рассмотрении данных колебаний квадрат частоты должен быть обратно пропорционален суммарной массе системы $\omega^2 \sim \frac{1}{M_\Sigma}$, которая, в свою очередь, складывается из массы нити, массы аэрогеля, массы нормальной компоненты ^3He внутри аэрогеля, и, наконец, присоединенной массы ^3He снаружи аэрогеля, т.е. той, которая участвует в движении системы. Возникновение сверхтекучей фазы внутри аэрогеля приводит к изменению линий тока сверхтекучей компоненты внутри и снаружи аэрогеля, что, в свою очередь, меняет полную присоединенную массу системы и, как следствие, частоту колебаний. Для вычисления токов, которые возникают при колебаниях системы, необходимо знать граничные условия на поверхности аэрогеля. Ранее в работах [7, 12, 13] рассматривались два типа граничных условий. В частности, в работах [12, 13] предполагалось, что на поверхности аэрогеля непрерывны сверхтекучий ток, а также фаза конденсата куперовских пар внутри и снаружи аэрогеля. Последнее условие не является всегда верным и может быть обосновано только при условии непрерывности параметра порядка на границе аэрогеля [13]. Отметим также существенную для дальнейшего деталь, что в указанной работе аэрогель считался абсолютно жестким телом. Несмотря на существенные различия в граничных условиях, рассмотренных в работах [7, 12], асимпто-

¹⁾e-mail: e.v.surovtsev@gmail.com

тическая зависимость частоты колебаний от температуры вдали от точки сверхтекучего перехода внутри аэрогеля получается практически одинаковой в обоих случаях. Это связано с тем, что рассмотренные граничные условия приводят к тому, что при достаточно низких температурах сверхтекучая компонента как внутри аэрогеля, так и снаружи в основном не увлекается движением аэрогеля, и вся температурная зависимость связана лишь с уменьшением массы нормальной компоненты, участвующей в движении. Удивительно, что посчитанная в рамках рассмотренных моделей сверхтекучая плотность внутри аэрогеля оказывается существенно больше, чем сверхтекучая плотность чистого ^3He при тех же температурах, что явно противоречит предположению о подавлении параметра порядка примесями. В работе [12] было сделано предположение, что указанное несоответствие связано с взаимодействием механической моды колебаний со второй модой колебаний, которая также возбуждается в рассмотренных экспериментах и описывается как аналог второго звука для данной сложной системы [14]. Тем не менее, тот факт, что в работе [8] вторая ветка колебаний не наблюдалась, а вычисленная сверхтекучая плотность оказалась также большой, говорит о том, что данное взаимодействие не является существенным при объяснении наблюдаемого эффекта.

В данной работе будет показано, что более быстрый рост частоты механических колебаний системы при понижении температуры может быть объяснен при рассмотрении гидродинамических граничных условий на поверхности аэрогеля, которые заключаются в непрерывности гидродинамических потоков. Таким образом, сравнивая с работой [13], условие непрерывности фазы параметра порядка должно быть заменено на непрерывность компонент тензора потока импульса в направлении нормали к поверхности аэрогеля. Как будет показано ниже, из результатов решения гидродинамических уравнений следует, что в узком слое на границе аэрогеля возникает разность фаз между двумя сверхтекучими состояниями, а сверхтекучий ток, протекающий через границу, пропорционален этой разности фаз. Данный вид связи между током и скачком фазы соответствует случаю джозефсоновского контакта между сверхтекучими состояниями внутри и снаружи аэрогеля, т.е. случаю слабой связи.

2. Уравнение движения аэрогеля в сверхтекучей жидкости. В данном разделе будет рассмотрено эффективное уравнение движения аэрогеля в форме шара в сверхтекучем ^3He , колеблющегося за счет упругости нити, к которой он прикреплен.

Сразу оговоримся, что точное решение поставленной задачи требует аккуратного вычисления напряжений внутри аэрогеля и проволоочки, которое, в частности, зависит от способа крепления аэрогеля. Мы же будем рассматривать составную систему в виде простого осциллятора с заданной эффективной жесткостью. Так как для рассматриваемых частот колебаний глубина вязкого проникновения гораздо больше расстояния между нитями аэрогеля, то будем считать, что нормальная компонента ^3He внутри аэрогеля движется совместно с каркасом аэрогеля. Для начала рассмотрим движение системы без учета эффектов вязкости, которые возникают снаружи аэрогеля. Так как движение сверхтекучей жидкости потенциально, то введем соответствующие потенциалы внутри и снаружи аэрогеля: φ_s^{in} и φ_s^{out} . Градиенты данных функций определяют векторное поле сверхтекучих скоростей внутри и снаружи аэрогеля. Движение нормальной компоненты снаружи аэрогеля в первом приближении (при малых амплитудах колебаний и без учета вязкости) также можно рассматривать как потенциальное и заданное полем φ_n^{out} . Пусть $u_i^{(0)}$ – средний вектор смещения аэрогеля из положения равновесия, т.е. $u_i^{(0)} = \frac{1}{V_0} \int dV u_i(\mathbf{r})$, где $u_i(\mathbf{r})$ – поле смещений в аэрогеле, интеграл берется по объему аэрогеля, V_0 – объем аэрогеля в равновесии. Тогда проинтегрированное по объему гидродинамическое уравнение, выражающее закон сохранения суммарного импульса аэрогеля и ^3He [15], даст эффективное уравнение движения системы в виде:

$$\begin{aligned}
 V_0(\tilde{\rho}_a \delta_{ij} + (\rho_n^{\text{in}})_{ij}) \ddot{u}_j^{(0)} + (\rho_s^{\text{in}})_{ij} \int \nabla_j \frac{\partial \varphi_s^{\text{in}}}{\partial t} dV + \\
 + V_0 \cdot \tilde{\rho}_a \omega_0^2 u_i^{(0)} + \oint n_j \delta \sigma_{ij}^{\text{out}} dS = 0, \quad (1)
 \end{aligned}$$

где $\tilde{\rho}_a$ – эффективная плотность аэрогеля (с учетом конечной массы нити, к которой крепится аэрогель), ρ_l – плотность жидкости, $(\rho_{s,n}^{\text{in}})_{ij}$ – тензоры плотности нормальной и сверхтекучей компонент жидкости внутри аэрогеля, $\delta \sigma_{ij}^{\text{out}}$ изменение тензора потока импульса снаружи аэрогеля, связанное с потоком жидкости, n_i – внешняя нормаль к поверхности аэрогеля, ω_0 – частота колебаний системы в вакууме, в последнем члене интеграл берется по поверхности аэрогеля. Первые два члена в уравнении определяют изменение импульса выделенного объема системы, а вторые два – силу, действующую на систему со стороны проволоочки и со стороны окружающей аэрогель жидкости. Описание силы, действующей на выделенный объем системы со стороны нити, в виде члена $V_0 \cdot \tilde{\rho}_a \omega_0^2 u_i^{(0)}$ является упрощением, которое оговаривалось в начале раздела.

Для начала вычислим силу, действующую на шарик со стороны нормальной компоненты окружающей аэрогель жидкости. Из условия потенциальности движения снаружи аэрогеля тензор потока импульса можно определить соотношением:

$$\delta\sigma_{ij}^{\text{out}} = -(\rho_s^{\text{out}})_{ij} \frac{\partial\varphi_s^{\text{out}}}{\partial t} - (\rho_n^{\text{out}})_{ij} \frac{\partial\varphi_n^{\text{out}}}{\partial t}, \quad (2)$$

где второе слагаемое определяет искомый вклад нормальной компоненты. В силу того, что нормальная компонента жидкости не протекает сквозь аэрогель, на поверхности аэрогеля выполнено граничное условие: $(\rho_n^{\text{out}})_{ij}(\nabla_j\varphi_n^{\text{out}} - \dot{u}_j^{(0)})n_i = 0$, которое для случая изотропной В-фазы или А-фазы с текстурой орбитального вектора \mathbf{l} по типу “ежа” (вектор \mathbf{l} везде перпендикулярен поверхности) сводится к обычному выражению: $\dot{u}_i^{(0)}n_i = (\nabla_i\varphi_n^{\text{out}})n_i$. Так как для рассматриваемых частот колебаний жидкость можно считать несжимаемой, то используем хорошо известное решение для φ_n^{out} уравнения $\Delta\varphi_n^{\text{out}} = 0$, удовлетворяющее данным граничным условиям у шара радиуса R [16]: $\varphi_n^{\text{out}}(\mathbf{r}, t) = -\frac{R^3}{2r^2} \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial t} n_i$. Сила, действующая на шарик со стороны нормальной компоненты жидкости, получается интегрированием по поверхности тела:

$$-\oint n_j (\rho_n^{\text{out}})_{ij} \frac{\partial\varphi_n^{\text{out}}}{\partial t} dS = \frac{2\pi}{3} R^3 (\rho_n^{\text{out}})_{ij} \frac{\partial^2 u_j^{(0)}}{\partial t^2}, \quad (3)$$

где величина $\frac{1}{2}(\rho_n^{\text{out}})_{ij}V_0$ – задает тензор присоединенной массы нормального движения жидкости вокруг аэрогеля.

В уравнение (1) входят две неизвестные функции φ_s^{in} и φ_s^{out} , которые мы определим из следующих соображений. Вначале найдем фазу сверхтекучей жидкости внутри аэрогеля из уравнения сохранения потенциальности сверхтекучего движения:

$$\frac{\partial\varphi_s^{\text{in}}}{\partial t} = -\delta\mu_l^{\text{in}}, \quad (4)$$

где $\delta\mu_l^{\text{in}}$ – изменение химического потенциала жидкости внутри аэрогеля при колебательном движении системы. Пусть $u_i(\mathbf{r}, t) = u_i^{(0)}(t) + u_i^{(1)}(\mathbf{r}, t)$ – поле смещений внутри аэрогеля, $u_i^{(1)} \ll u_i^{(0)}$. Тогда, как было показано ранее для анизотропного аэрогеля [14]:

$$\delta\mu_l^{\text{in}} = c_{l1}^2 \frac{\delta\rho_l}{\rho_l^{(0)}} + c_{ul}^2 u_{zz}^{(1)} - \tilde{c}_{ls}^2 u_{ll}^{(1)}, \quad (5)$$

где c_{l1} – скорость первого звука в системе, c_{ul}^2 , c_{ls}^2 – комбинации упругих коэффициентов системы, $\delta\rho_l$ – изменение плотности жидкости, $u_{ll}^{(1)} = \partial_l u_l^{(1)}$, $u_{zz}^{(1)} = \partial_z u_z^{(1)}$. Заметим, что при условии, что $\rho_l \gg \rho_s^{\text{in}}$

из уравнения сохранения массы следует связь между $\delta\rho_l$ и $u_{ll}^{(1)}$: $\delta\rho_l \approx -\rho_l u_{ll}^{(1)}$. Для дальнейшего важно, что скорость первого звука много больше всех остальных упругих скоростей системы (в частности, скоростей звука в аэрогеле), поэтому можно записать следующее приближенное равенство:

$$\delta\mu_l^{\text{in}} \approx -c_{l1}^2 u_{ll}^{(1)}. \quad (6)$$

В главном приближении тензор потока импульса системы изотропен и описывается одной скалярной величиной – давлением, которое внутри аэрогеля в рассматриваемом приближении также определяется выражением:

$$\delta p^{\text{in}} \approx -\tilde{c}_{l1}^2 \rho_l u_{ll}^{(1)}, \quad (7)$$

где коэффициент \tilde{c}_{l1}^2 дается суммой нескольких упругих констант, но в дальнейшем ее отличим от c_{l1}^2 , можно пренебречь. Исключив из последних двух равенств $u_{ll}^{(1)}$, можно получить связь между изменением давления внутри аэрогеля и изменением потенциала сверхтекучего движения:

$$\delta p^{\text{in}} \approx \rho_l \delta\mu_l = -\rho_l \frac{\partial\varphi_s^{\text{in}}}{\partial t}. \quad (8)$$

Из непрерывности тензора потока импульса следует, что изменение давления снаружи и внутри аэрогеля должно быть одинаковым: $\delta p^{\text{in}} = \delta p^{\text{out}}$. Заметим так же, что в достаточно широком интервале температур компоненты тензора сверхтекучей плотности малы не только внутри аэрогеля, но и снаружи $(\rho_s^{\text{out}})_{ij} \ll \rho_l$. Поэтому в написанном выше равенстве давлений можно считать, что давление снаружи в основном определяется обтеканием нормальной компоненты жидкости с изотропным тензором плотности, т.е. $\delta p^{\text{out}} \approx \rho_l \frac{\partial\varphi_n^{\text{out}}}{\partial t}$. Резюмируя сказанное, можно получить следующее приближенное соотношение, справедливое на границе аэрогеля:

$$\frac{\partial\varphi_s^{\text{in}}}{\partial t} \approx \frac{\partial\varphi_n^{\text{out}}}{\partial t}. \quad (9)$$

Данному граничному условию удовлетворяет функция:

$$\varphi_s^{\text{in}}(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{2} \cdot \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial t} r_i, \quad (10)$$

соответствующая протеканию сверхтекучей компоненты с одинаковой во всем объеме аэрогеля сверхтекучей скоростью ($\Delta\varphi_s = 0$). Таким образом, мы получили, что создаваемая движением нормальной компоненты снаружи аэрогеля разность давлений

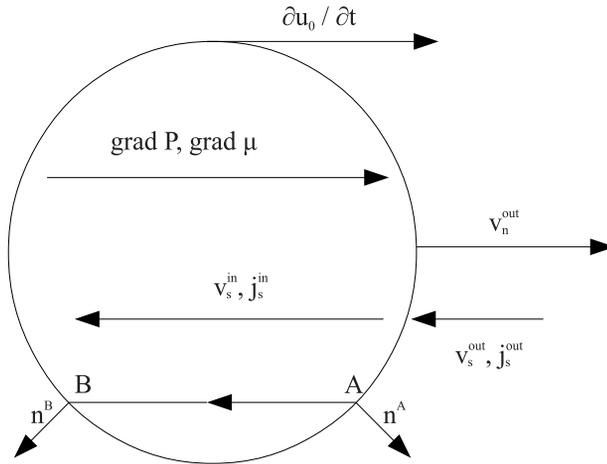


Рис. 1. При движении шарика аэрогеля со скоростью $\frac{\partial u_0}{\partial t}$ в сверхтекучем ^3He внутри объема, занимаемого аэрогелем, создается градиент давления и химического потенциала жидкости в направлении движения. Согласно уравнению сохранения сверхтекучей скорости это приводит к возникновению сверхтекучего потока в противоположном направлении. Из закона сохранения суммарного импульса системы при появлении данного движения на аэрогель начинает действовать дополнительная сила вдоль направления движения, увеличивающая итоговую частоту колебаний

между его концами приводит к втеканию сверхтекучей компоненты внутрь аэрогеля в направлении, противоположном движению тела (рис. 1).

Далее, функцию φ_s^{out} определим из условия непрерывности сверхтекучего тока через границу аэрогеля. Будем искать для функции φ_s^{out} убывающее на бесконечности решение, удовлетворяющее условию несжимаемости сверхтекучей компоненты жидкости ($\nabla_i(j_s)_i = 0$, j_s – ток сверхтекучей компоненты относительно нормальной) [13]:

$$\varphi_s^{\text{out}} = b \frac{R^{\gamma+1}}{r^\gamma} \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial t} n_i - \frac{R^4}{2r^3} \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial t} n_i, \quad (11)$$

где $\gamma = 3$ для изотропной В-фазы и $\gamma = \frac{3}{2} + \frac{\sqrt{17}}{2}$ для А-фазы с текстурой типа “ежа”. Условие непрерывности потока массы на границе аэрогеля (в данном случае сверхтекучего тока) запишем в виде:

$$(\rho_s^{\text{in}})_{ij} (\nabla_j \varphi_s^{\text{in}} - \dot{u}_j^0) n_i = (\rho_s^{\text{out}})_{ij} (\nabla_j \varphi_s^{\text{out}} - \dot{u}_j^0) n_i. \quad (12)$$

Подставив (10), (11) в (12), найдем коэффициент b :

$$b = \frac{3}{2} \frac{1}{\gamma - 1} \frac{\rho_s^{\text{in}}}{\rho_s^{\text{out}}}, \quad (13)$$

ρ_s^{in} – компонента тензора сверхтекучей плотности внутри аэрогеля вдоль направления колебаний

(вдоль или поперек оси анизотропии аэрогеля), ρ_s^{out} – компонента тензора сверхтекучей плотности снаружи аэрогеля вдоль нормали к поверхности (для двух рассмотренных выше фаз). Отметим, что в области температур, где $\rho_s^{\text{in}} \simeq \rho_s^{\text{out}}$, движения сверхтекучей и нормальной компонент жидкости снаружи аэрогеля вблизи его поверхности происходят в противоположных направлениях.

После нахождения всех неизвестных функций можно записать эффективное уравнение колебаний системы в виде:

$$(\tilde{\rho}_a + \frac{3}{2} \rho_l - \frac{3}{2} \frac{\gamma}{\gamma - 1} \rho_s^{\text{in}}) \ddot{u}_i^{(0)} + \tilde{\rho}_a \omega_0^2 u_i^{(0)} = 0. \quad (14)$$

Выразим из последнего уравнения частоту колебаний системы, как функцию от ρ_s^{in} :

$$\omega(T) = \frac{\omega_n}{\sqrt{1 - \frac{\gamma}{\gamma - 1} \frac{\rho_s^{\text{in}}(T)}{\rho_l} \left(1 - \frac{\omega_n^2}{\omega_0^2}\right)}}, \quad (15)$$

где введено обозначение $\omega_n^2 = \omega_0^2 \frac{\tilde{\rho}_a}{\tilde{\rho}_a + \frac{3}{2} \rho_l}$ – частота колебаний системы в ^3He в пределе нулевого затухания. При температурах больших, чем температура сверхтекучего перехода внутри аэрогеля, $T > T_{ca}$, частота колебаний (без учета вязкости окружающего ^3He) не зависит от температуры $\omega(T) = \omega_n = \text{const}$, а при $T < T_{ca}$, в области применимости теории Гинзбурга–Ландау, должен наблюдаться линейный рост частоты при понижении температуры, так как $\rho_s^{\text{in}} \sim (1 - \frac{T}{T_{ca}})$. Стоящий под корнем в правой части выражения множитель $\frac{\gamma}{\gamma - 1}$ является геометрическим фактором, т.е. зависит от формы образца, и может быть записан в более общем виде как $1 + \tilde{\alpha}$, $\tilde{\alpha} = \frac{\gamma}{\gamma - 1}$ для шарика. Отметим также, что данный множитель зависит и от вида наружной сверхтекучей фазы: в случае шарика для В-фазы $\tilde{\alpha} = 0.5$, а для А-фазы с текстурой “ежа” $\tilde{\alpha} \approx 0.4$, т.е. при переходе из А в В-фазу скорость роста частоты с понижением температуры должна немного увеличиться. Именно наличие данного постоянного множителя, большего единицы, может объяснять более быстрый, чем предполагалось, рост частоты при понижении температуры, который наблюдается в эксперименте. В следующем разделе для обработки экспериментальных данных для аэрогеля произвольной формы частоту колебаний будем описывать более общей формулой:

$$\omega(T) = \frac{\omega_n}{\sqrt{1 - (1 + \tilde{\alpha}) \frac{\rho_s^{\text{in}}(T)}{\rho_l} \left(1 - \frac{\omega_n^2}{\omega_0^2}\right)}}, \quad (16)$$

с неизвестным параметром $\tilde{\alpha} > 0$.

3. Сравнение с экспериментом. В качестве проверки полученных соотношений рассмотрим экспериментальные данные для случая, когда внутри нематического аэрогеля образуется полярная фаза [12]. Имеющийся массив экспериментальных данных включает в себя зависимости от температуры частот двух возбуждаемых мод колебаний $\omega_{1,2}(T)$, а также зависимость от температуры ширин резонансных линий $\zeta_{1,2}(T)$. Затухание первой колебательной моды (механической) связано в основном с вязкостью окружающего аэрогель ${}^3\text{He}$. Помимо этого, существует также вклад вязкости (отличия от потенциальности движения жидкости вблизи поверхности аэрогеля) в присоединенную массу системы и как следствие в частоту колебаний. В рассуждениях предыдущего пункта мы данный вклад не рассматривали. Помимо этого, мы не учитывали вклад этой дополнительной инерциальной вязкой силы в φ_s^{in} , так как это потребовало бы решения задачи по нахождению $u_{ll}^{(1)}$ и $u_{zz}^{(1)}$ внутри аэрогеля, чего в нашем приближении можно было не делать. Результат более аккуратного вычисления показывает, что вклад вязкости в потенциал сверхтекучего движения внутри аэрогеля мал в меру отношения δ/R , где δ – глубина вязкого проникновения для жидкого ${}^3\text{He}$. Данное отношение ниже температуры объемного сверхтекучего перехода быстро убывает с температурой, что оправдывает сделанное приближение. Таким образом, для более точного сравнения с экспериментом необходимо исключить вклад вязкости в экспериментально наблюдаемую частоту колебаний системы, связанный с изменением присоединенной массы жидкости снаружи аэрогеля из-за вязкого вклада. Для колеблющегося в вязкой жидкости шарика это легко сделать, так как, если затухание мало, то существует простая связь между соответствующей добавкой к частоте колебаний и шириной линии резонанса: $\omega_1(T) = \omega'_1(T) + \frac{1}{2}\zeta_1(T)$, где ω'_1 – частота колебаний системы с учетом небольшого вклада от непотенциальности движения нормальной компоненты вблизи поверхности аэрогеля, ζ_1 – ширина резонансной кривой, $\zeta_1 \ll \omega_1$. Как и ранее, коэффициент $1/2$ в написанном выражении является геометрическим фактором и может отличаться для тела другой формы. То, что для рассматриваемой системы данная зависимость вполне согласуется с экспериментальными данными при $T > T_{ca}$, было продемонстрировано в работе [12].

Вторая трудность, которая возникает при обработке экспериментальных данных состоит в эффективном взаимодействии двух наблюдаемых мод колебаний, природа которого не совсем ясна. Для упро-

щения, рассмотрим модель взаимодействия мод, которое описывается матричным элементом, задаваемым частотой ω_{12} , так что:

$$\omega_1 = \frac{\omega_1^{(0)} + \omega_2^{(0)}}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{(\omega_1^{(0)} - \omega_2^{(0)})^2 + 4\omega_{12}^2}, \quad (17)$$

$$\omega_2 = \frac{\omega_1^{(0)} + \omega_2^{(0)}}{2} - \frac{1}{2}\sqrt{(\omega_1^{(0)} - \omega_2^{(0)})^2 + 4\omega_{12}^2}, \quad (18)$$

где $\omega_{1,2}^{(0)}$ – частоты двух мод без учета взаимодействия. Температурная зависимость частоты $\omega_1^{(0)}$ задается формулой (16), а температурная зависимость частоты второй моды была найдена в пределе Гинзбурга–Ландау в работе [14]:

$$\omega_2^{(0)}(T) = \frac{\omega_{a\perp}}{\sqrt{\left[1 + 3\frac{\rho_l}{\rho_a}\right] + \frac{\rho_l^2}{\rho_s^2(T)\rho_a} \frac{c_{yl}^2}{c_{l1}^2}}}, \quad (19)$$

где ρ_s^\perp – компонента тензора сверхтекучей плотности полярной фазы перпендикулярно оси анизотропии аэрогеля, $\omega_{a\perp} \sim 2000$ Гц, отношение скоростей $\frac{c_{yl}^2}{c_{l1}^2} \sim 0.01$ и практически не зависит от давления. По аналогии со вторым звуком действительная часть в частоте данных колебаний возникает только при $T < T_{ca}$. Наличие в знаменателе выражения (19) малого множителя $\frac{c_{yl}^2}{c_{l1}^2}$ приводит к быстрому корневому росту частоты колебаний в интервале температур $1 - \frac{T}{T_{ca}} \sim 0.01$, с последующим выходом на постоянную частоту порядка 1700 Гц. Так как частота механической моды порядка 550 Гц, то пересечение мод и их взаимодействие существенно только в узкой области температур вблизи T_{ca} . Исходя из предположенных температурных зависимостей частот двух мод колебаний, следует, что с учетом взаимодействия механическая мода описывается выражением (17) при $T \gtrsim T_{ca}$ и выражением (18) при $T \lesssim T_{ca}$.

Результаты численной подгонки температурной зависимости частоты колебаний механической моды для трех давлений 7.1, 15.6 и 29.3 бар представлены на рис. 2. Так как скорость роста частоты с понижением температуры зависит от формы параметра порядка, окружающего аэрогель сверхтекучего состояния, то для единообразия мы ограничились рассмотрением случая, когда снаружи существует А-фаза, а также выбрали не слишком широкий интервал температур вблизи T_c , чтобы можно было отбросить нелинейные по $T - T_{ca}$ эффекты. В качестве зависимости сверхтекучей плотности полярной фазы от температуры использовалось выражение, справедливое в приближении Гинзбурга–Ландау:

$$\rho_s^\perp = \frac{(1 - \frac{T}{T_{ca}})}{\beta_{12345}} \frac{\rho_l}{(1 + \frac{T}{3})}, \quad (20)$$

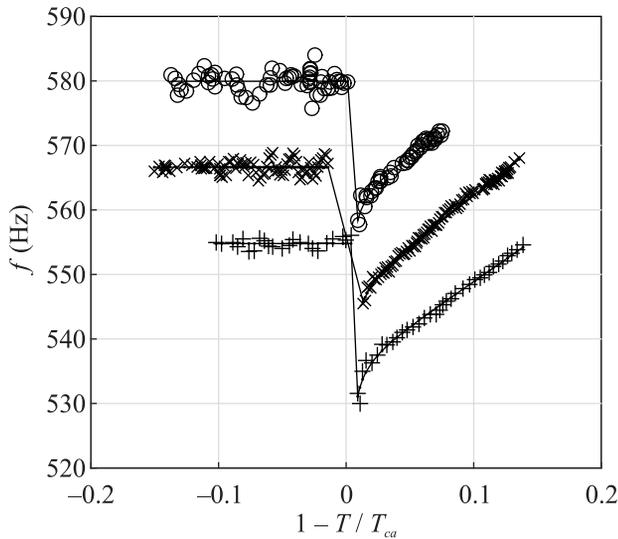


Рис. 2. Кружки, кресты, плюсы – зависимость от температуры частоты механической колебательной моды, наблюдаемой в эксперименте [12], для давлений 7.1, 15.6, 29.3 бар соответственно. Сплошные линии – подгонка теоретическими зависимостями (17), (18), в которых использовались выражения (16), (19). Зависимость $\rho_s^\pm(T)$ взята из (20), где использовались значения коэффициентов β_i чистого ^3He . Подгонка произведена для случая, когда снаружи аэрогеля существует А-фаза

где $\beta_{12345} = \beta_1 + \beta_2 + \beta_3 + \beta_4 + \beta_5$, β_i – коэффициенты разложения свободной энергии ^3He в теории Гинзбурга–Ландау, F_1^s – параметр Ландау фермижидкости. Все коэффициенты, которые входят в написанное выше выражение, зависят от давления и были взяты для чистого ^3He . Для всех трех давлений величина частоты взаимодействия двух мод ω_{12} оказалась равной примерно 80 Гц. Уменьшение величины частоты колебаний с ростом давления для области температур $T > T_{ca}$ полностью описывается увеличением плотности ^3He [12]. Коэффициент α' , который зависит от формы аэрогеля и обуславливает более быстрый рост частоты с понижением температуры, оказался равным 0.71, 0.86, 0.74 для давлений 7.1, 15.6, 29.3 бар соответственно. Некоторый разброс в значении данного коэффициента может быть связан с использованием значений коэффициентов β_i для чистого ^3He , которые в присутствии нематического аэрогеля могут иметь другую зависимость от давления. Помимо этого, рассмотренное приближение учитывает только линейные по $(1 - \frac{T}{T_{ca}})$ члены, что также может несколько ограничивать подгоночные значения коэффициентов. Аэрогель, который использовался в описанном выше эксперименте имел форму кубоида, поэтому отличие в большую сторо-

ну полученного коэффициента α' от теоретического значения 0.4, найденного для случая шара, вполне естественно.

4. Заключение. Физическая картина рассмотренного в статье эффекта достаточно проста: при движении аэрогеля в ^3He происходит обтекание нормальной компоненты жидкости вокруг него. Это создает разность давлений между концами аэрогеля, что приводит к протеканию сверхтекучей компоненты через аэрогель в направлении, противоположном направлению изначального движения (рис. 1). Возникающая при этом реактивная сила, действующая на аэрогель, направлена так, что приводит к дополнительному увеличению частоты колебаний системы. Другой отличительной чертой рассмотренной модели является то, что на границе аэрогеля возникает разность фаз между двумя сверхтекучими состояниями внутри и снаружи аэрогеля:

$$\varphi_s^{\text{out}} - \varphi_s^{\text{in}} = \frac{3}{2} \frac{1}{\gamma - 1} R \frac{\rho_s^{\text{in}}}{\rho_s^{\text{out}}} \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial t} n_i, \quad (21)$$

коэффициент $\frac{3}{2} \frac{1}{\gamma - 1}$ связан со сферической формой аэрогеля. Рассмотрим токи, которые втекают через элемент поверхности аэрогеля в точке А и вытекают через элемент поверхности в точке В (см. рис. 1). В силу симметрии задачи токи через данные поверхности одинаковы и равны: $|\frac{3}{2} \rho_s^{\text{in}} \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial t} n_i^A|$, а дополнительный набег фазы вдоль отрезка АВ из-за пересечения двух границ аэрогеля составляет $\delta\varphi_s^{AB} = -3 \frac{1}{\gamma - 1} R \frac{\rho_s^{\text{in}}}{\rho_s^{\text{out}}} \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial t} n_i^A$, n_i^A – внешняя нормаль к поверхности в точке А. Так как амплитуда параметра порядка наружной фазы в точках А и В одинакова, то можно сделать вывод, что сверхтекучий ток, протекающий через аэрогель между двумя данными точками, соответствует линейному режиму джозефсоновского тока, $j_s^{AB} \sim \Delta_A \Delta_B \delta\varphi_s^{AB} \sim \rho_s^{\text{out}} \delta\varphi_s^{AB}$, где $\Delta_{A,B}$ – амплитуды параметра порядка в соответствующих точках, $\rho_s \sim \Delta^2$. Сделанное утверждение о джозефсоновском характере протекания тока через границу аэрогеля верно, разумеется, только в пределе маленьких скоростей, когда разность фаз мала. Для аэрогеля с характерными размерами порядка 1 мм скорость движения должна быть много меньше 0.1 мм/с, что в принципе соответствует экспериментальным условиям [12]. Отметим также, что согласно результатам работы [13] для шарика аэрогеля макроскопических размеров разность фаз на границе аэрогеля определяется выражением:

$$\Delta\varphi_s = [(\mathbf{v}_s^{\text{out}} - \frac{\partial \mathbf{u}^{(0)}}{\partial t}) \cdot \mathbf{n}] \left(\int_{-\infty}^0 \frac{\rho_s(r) - \rho_s^{\text{out}}}{\rho_s(r)} dr + \right. \\ \left. + [(\mathbf{v}_s^{\text{in}} - \frac{\partial \mathbf{u}^{(0)}}{\partial t}) \cdot \mathbf{n}] \int_0^{+\infty} \frac{\rho_s(r) - \rho_s^{\text{in}}}{\rho_s(r)} dr \right). \quad (22)$$

Изменение сверхтекучей плотности на границе аэрогеля происходит на длине когерентности сверхтекучего $^3\text{He} - \xi(\tau)$, которая много меньше радиуса шарика. В связи с этим, для того, чтобы написанное выражение имело порядок $R \frac{\partial \mathbf{u}^{(0)}}{\partial t}$, что следует из выражения (21), сверхтекучая плотность $\rho_s(r)$ должна иметь особенность на границе аэрогеля. Данный факт опять указывает на случай слабой связи между двумя объемами с разными сверхтекучими состояниями. Таким образом, опосредованно по результатам рассмотренных в статье экспериментов можно также качественно судить о характере поведения параметра порядка на границе аэрогеля. Для более точного выяснения характера изменения параметра порядка на границе аэрогеля требуется микроскопическое описание в рамках теории Абрикосова–Горькова. В заключение отметим, что рассмотренная в работе полярная фаза относится к классу нетривиальных топологических фаз, на границе которых возможно существование топологически устойчивых краевых токовых состояний [17, 18]. Интересным представляется вопрос изучения взаимодействия данных токов с колебаниями системы, которое может стать существенным при достаточно низких температурах, когда объемная нормальная компонента плотности жидкости системы будет мала.

Автор признателен В. В. Дмитриеву, В. И. Марченко, А. А. Солдатову, И. А. Фомину и А. Н. Юдину за полезные комментарии и помощь.

1. E. V. Thuneberg, S.-K. Yip, M. Fogelstrom, and J. A. Sauls, Phys. Rev. Lett. **80**, 2861 (1998).
2. K. Aoyama and R. Ikeda, Phys. Rev. B **73**, 060504(R) (2006).
3. V. V. Dmitriev, A. A. Senin, A. A. Soldatov, and A. N. Yudin, Phys. Rev. Lett. **115**, 165304 (2015).
4. V. V. Dmitriev, M. S. Kutuzov, A. A. Soldatov, and A. N. Yudin, Phys. Rev. Lett. **127**, 265301 (2021).
5. И. А. Фомин, ЖЭТФ **154**, 1034 (2018).
6. P. Brussaard, S. N. Fisher, A. M. Guénault, A. J. Hale, and G. R. Pickett, J. Low Temp. Phys. **121**, 555 (2000).
7. P. Brussaard, S. N. Fisher, A. M. Guénault, A. J. Hale, N. Mulders, and G. R. Pickett, Phys. Rev. Lett. **86**, 4580 (2001).
8. D. I. Bradley, S. N. Fisher, A. M. Guénault, R. P. Haley, N. Mulders, O'Sullivan, G. R. Pickett, J. Roberts, and V. Tsepelin, Phys. Rev. Lett. **98**, 075302 (2007).
9. G. E. Volovik, J. Low Temp. Phys. **150**, 453 (2008).
10. V. E. Asadchikov, R. Sh. Askhadullin, V. V. Volkov, V. V. Dmitriev, N. K. Kitaeva, P. N. Martynov, A. A. Osipov, A. A. Senin, D. I. Chekrygina, A. A. Soldatov, and A. N. Yudin, JETP Lett. **101**, 556 (2015).
11. V. V. Dmitriev, M. S. Kutuzov, A. A. Soldatov, and A. N. Yudin, Phys. Rev. B **107**, 024507 (2023).
12. В. В. Дмитриев, М. С. Курузов, А. А. Солдатов, Е. В. Суровцев, А. Н. Юдин, Письма в ЖЭТФ **112**, 820 (2020).
13. Е. В. Суровцев, ЖЭТФ **160**, 553 (2021).
14. Е. В. Суровцев, Письма в ЖЭТФ **116**, 724 (2022).
15. Е. В. Суровцев, ЖЭТФ **162**, 917 (2022).
16. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Гидродинамика*, Наука, М. (2005).
17. T. T. Heikkilä and G. E. Volovik, JETP Lett. **93**, 59 (2011).
18. T. T. Heikkilä, N. B. Kopnin, and G. E. Volovik, JETP Lett. **94**, 252 (2013).

Экспериментальное исследование передаточной функции прототипа сверхпроводящего гаусс-нейрона

А. С. Ионин^{+,*}, Л. Н. Карелина⁺, Н. С. Шуравин⁺, М. С. Сидельников⁺, Ф. А. Разоренов^{+,*}, С. В. Егоров⁺,
В. В. Больгинов^{+,1)}

⁺Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черногловка, Россия

^{*}Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 3 октября 2023 г.

После переработки 19 октября 2023 г.

Принята к публикации 20 октября 2023 г.

В работе представлено первое измерение передаточной функции шунтированного двухконтактного интерферометра, ранее предложенного в качестве базового элемента сверхпроводящих нейронных сетей на основе радиальных базисных функций. Образец был реализован в виде многослойной тонкопленочной структуры над толстым сверхпроводящим экраном с индуктивной подачей входного сигнала и считыванием выходного. Обнаружено, что передаточная функция является суммой двух компонент: линейной и периодической куполообразной. Линейная компонента вызвана, по-видимому, непосредственной передачей входного магнитного потока в измерительную цепь. Форма нелинейной компоненты, являющейся выходным сигналом гаусс-нейрона, может быть приближенно описана функцией распределения Гаусса, либо, более точно, параметрической зависимостью, выведенной теоретически в предыдущих работах. Показано, что форма передаточной функции гаусс-нейрона может зависеть от выбора рабочей точки измерительной схемы, что благоприятствует разработке интегрированных нейронных сетей на основе реализованных элементов.

DOI: 10.31857/S123456782322010X, EDN: pifztk

1. Введение. Искусственные нейронные сети (ANN²⁾) являются мощным инструментом для оперативной обработки больших объемов неоднородных данных. Перспективным направлением развития нейронных сетей является переход к сверхпроводниковым технологиям, обладающим преимуществами высокой энергоэффективности и быстродействия. Недавно докладывалось о разработке нейроморфных вычислительных устройств (см., например, [1–5]) в рамках концепции быстрой одноквантовой логики (БОК или RSFQ [6]). Эта концепция предполагает кодирование информации в виде пикосекундных импульсов напряжения с частотой в десятки ГГц, что обеспечивает высокое быстродействие RSFQ-устройств [7, 8]. За прошедшие годы было разработано несколько подходов, позволяющих еще сильнее снизить энергопотребление RSFQ-устройств (см. обзор в [9]). В настоящее время различные группы разрабатывают RSFQ-элементы, способные эмулировать поведение биологических нейронов в различных жизненных ситуациях (см., например, [10–13]).

Начиная с 2013 г. разрабатывается семейство адиабатических логических элементов [14–16], в которых энерговыделение может быть уменьшено вплоть до фундаментального предела $kT \ln 2$ в пределе бесконечной длительности логической операции [17]. В цикле работ [18–27] было предложено несколько вариантов адиабатических базовых ячеек для создания сверхпроводниковых ANN. Разработанные ячейки представляют собой сверхпроводящие интерферометры, способные принимать и выдавать управляющий сигнал в виде магнитного потока, а также обладающие специальным видом передаточной функции. Например, на основе сверхпроводящего интерферометра, часть контура которого шунтирована дополнительной индуктивностью, может быть построена ячейка, реализующая сигмоидальную³⁾ передаточную функцию [18]. Такая ячейка (сигма-нейрон) необходима для создания сверхпроводящего персептрона, который является

¹⁾ e-mail: bolg@issp.ac.ru

²⁾ От англ. Artificial Neural Networks.

³⁾ Под сигмоидальной понимается класс гладких, монотонно возрастающих нелинейных функций, вид которых может описываться логистической функцией (вида $1/(1 + \exp(-kx))$), функцией гиперболического тангенса, функцией ошибок и др.

наиболее распространенным и разработанным типом нейронных сетей [28].

Для другого типа нейронных сетей (так называемых сетей радиальных базисных функций) передаточная функция нейрона должна быть близка к производной некоторой сигмоидальной зависимости. Таким свойством обладает, например, функция распределения Гаусса $\exp(-(x - x_c)^2/2\sigma^2)$, являющаяся производной функции ошибок. Гауссова передаточная функция может быть реализована для двухконтактного интерферометра, шунтированного дополнительной индуктивностью (см. рис. 1), который

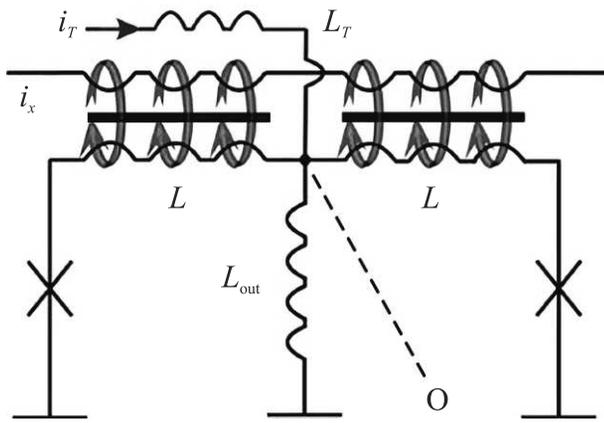


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическое изображение гаусс-нейрона, предложенного в статьях [18, 19]. Крестами обозначены контакты Джозефсона, волнистыми линиями – индуктивные элементы схемы. Обозначения индуктивностей нейрона приведены в соответствии с более поздними теоретическими работами (см., например, [26, 24])

далее будет называться гаусс-нейрон или G-нейрон [18, 19, 23, 24, 26]. В данной работе мы представляем первую практическую реализацию сверхпроводящего гаусс-нейрона и анализируем форму экспериментально измеренной передаточной функции.

2. Изготовление и устройство образца.

Сверхпроводящий гаусс-нейрон, схематически изображенный на рис. 1, может быть описан как совокупность трех “плеч”, имеющих общую точку соединения “O”, а другим концом подключенных к общему сверхпроводящему электроду (“земля”, “Gnd”). Правое и левое плечи могут быть названы “джозефсоновскими” или “приемными”, поскольку каждое из них содержит контакт Джозефсона (КД), а также индуктивный элемент L , принимающий входной сигнал (магнитный поток). Третье плечо (“выходное”) образуется элементом L_{out} , создающим выходной сигнал (магнитный поток) при проте-

кании тока I_{out} , величина которого определяется уравнениями состояния гаусс-нейрона. Совокупность приемных плеч образует двухконтактный интерферометр с индуктивностью контура $2L$ (“приемный контур”), а выходная индуктивность может рассматриваться как шунтирующая для любого джозефсоновского плеча. Совокупности выходного и одного из джозефсоновских плеч образуют частичные контуры гаусс-нейрона. В каждом из контуров должно выполняться условие баланса фаз, однако только два из них являются линейно независимыми.

Входной сигнал на рис. 1 задается током i_x , протекающим по контрольной линии (CL), индуктивно связанной с приемными элементами L . Еще одна сигнальная линия предназначена для пропускания тока i_T через индуктивность L_{out} с целью изменения начального потока через частичные контуры гаусс-нейрона. Заметим, что начальный поток, обозначаемый далее Φ_b ⁴⁾, имеет разный знак для частичных контуров нейрона и поэтому не влияет на полный поток через приемный контур. Отметим также, что задание и считывание входного и выходного сигналов через специально выделенные индуктивности определяет проектирование образца в виде тонкопленочной структуры, расположенной над толстым сверхпроводящим экраном. В этом случае магнитное поле каждого полоска с током локализуется в зазоре между полоском и экраном, не влияя, практически, на остальные индуктивные элементы [29].

Для изготовления образца был использован 8-стадийный технологический процесс, состоящий из следующих этапов: осаждение 3-слойной заготовки Nb – AlO_x – Nb; формирование геометрии контактов Джозефсона (мезы) в виде квадратов с размером стороны 14 мкм; формирование геометрии сверхпроводящего экрана в виде прямоугольника размером 220 × 290 мкм; формирование первого слоя изоляции SiO толщиной 330 нм; формирование “индуктивного” слоя ниобия толщиной 100 нм; формирование второго слоя изоляции толщиной 330 нм; формирование шунтирующих резисторов из сплава Cu₂Al толщиной 50 нм; формирование сверхпроводящего замыкания (“wiring”) толщиной 450 нм. Толщина сверхпроводящего экрана составляла 300 нм, что соответствует примерно 4 лондоновским длинам в сверхпроводящем ниобии [30]. Экран одновременно являлся нижним электродом туннельных КД схемы. Толщина верхнего электрода КД составляла 150 нм. На пятом этапе осаждался “промежуточный” слой ниобия (“индуктивный

⁴⁾От англ. “bias flux” (поток смещения).

слой”), в котором формировались индуктивные элементы нейрона при помощи фотолитографии и последующего плазмохимического травления. Второй слой SiO (этап 6) использовался для изоляции индуктивного слоя в местах наложения со сверхпроводящими линиями, изготовленными на последнем этапе. Изоляция края сверхпроводящего экрана производилась одновременно обоими слоями изоляции. Замыкание индуктивных и резистивных элементов на верхний электрод КД и/или сверхпроводящий экран производилась на последнем этапе технологического процесса. В этом случае большая толщина слоя ниобия позволяла сверхпроводящим линиям без разрыва пересекать края окон в слое изоляции большой толщины. Более подробное описание процедуры изготовления образца можно найти в статье [31].

На рисунке 2 приведена микрофотография изготовленного образца, а на рис. 3 – схема проведенного

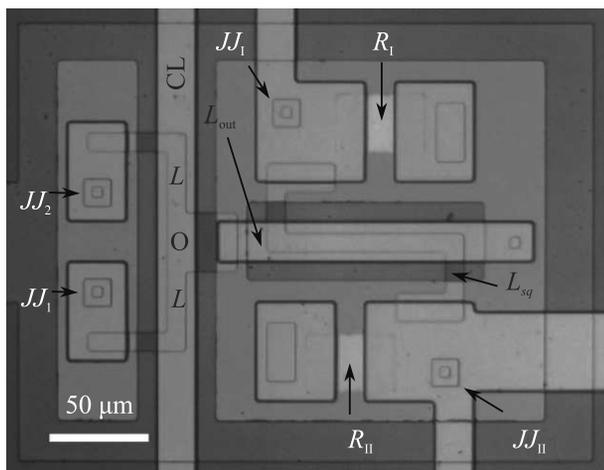


Рис. 2. (Цветной онлайн) Микрофотография изготовленного образца. Обозначения соответствуют рис. 3 (см. также определения в тексте)

эксперимента. Рассмотрение удобно начинать от общей точки гаусс-нейрона “O”, которая расширяется на рис. 2 в общую зону размером 10×30 мкм. Приемные плечи образца ответвляются в верхнем и нижнем направлениях и замыкаются на экран через контакты Джозефсона $JJ_{1,2}$ слева от контрольной линии CL. Выходная индуктивность L_{out} имеет прямоугольную форму, ответвляется вправо и замыкается на экран через окно размером 6×6 мкм в первом слое изоляции (этап 4). Начальные участки индуктивных элементов (включая зону O) были сформированы на пятом этапе и покрыты дополнительным слоем изоляции (этап 6). Однако полностью сформировать индуктивные элементы на 5-м этапе было невозможно

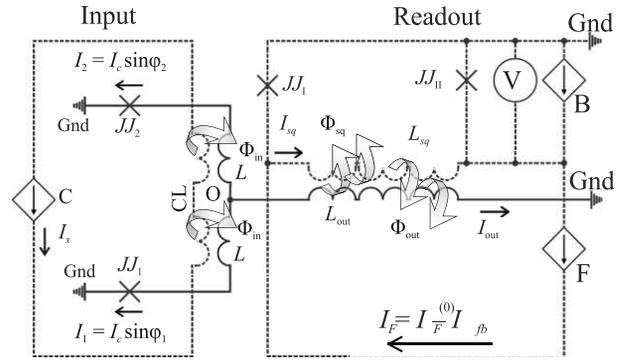


Рис. 3. (Цветной онлайн) Принципиальная схема проведенного эксперимента

из-за малой толщины слоя ниобия (100 нм) по сравнению с толщиной первого слоя изоляции (330 нм). Поэтому каждый индуктивный элемент содержит замыкающий участок шириной 30 мкм, изготовленный на 8 этапе технологического процесса, который способен пересекать края слоев изоляции за счет большой толщины (450 нм). Приемные плечи содержат участки наложения с контрольной линией (CL), одинаковые по размеру. Поэтому задание входного сигнала (магнитного потока) происходит одинаковым образом в каждый частичный контур образца. Сама контрольная линия (этап 8) имеет ширину 20 мкм и отделена от индуктивных элементов (этап 5) нейрона вторым слоем изоляции (этап 6).

Важным элементом схемы (см. рис. 3) является двухконтактный интерферометр (СКВИД⁵⁾), предназначенный для измерения выходного магнитного потока. Наличие такого элемента (отсутствует на рис. 1) подразумевалось, но не учитывалось в теоретических работах [18, 19, 23, 24, 26]. На рисунках 2, 3 этот интерферометр состоит из контактов Джозефсона JJ_I и JJ_{II} , а также индуктивного элемента L_{sq} . Последний элемент частично расположен под промежуточным участком выходной индуктивности нейрона, обеспечивая индуктивную связь между L_{sq} и L_{out} . Элемент L_{sq} формируется на пятом этапе с последующей изоляцией на этапе 6. Каждый контакт измерительного СКВИДа был шунтирован сопротивлением из слоя Cu_2Al толщиной 50 нм номиналом около 2 Ом для однозначности их вольт-амперных характеристик [32, 33].

Индуктивности элементов нейрона, входящие в качестве параметров в уравнения его состояния, могут быть оценены из простых соображений. Напри-

⁵⁾ Сверхпроводящий Квантовый Интерференционный Датчик.

мер, каждое из джозефсоновских плеч состоит из 9 квадратов, изготовленных на 5 и 8 этапах технологического процесса, 6 из которых являются прямыми и 3 поворотными. Используя формулу для индуктивности квадрата сверхпроводящей полосы над толстым сверхпроводящим экраном (см. [29], § 10), получаем $L_{\square}^{(5)} = \mu_0 d_m^{(5)} = 0.6$ пГн. Здесь $d_m^{(5)}$ – магнитная длина “индуктивного” слоя (в основном, изготовленного на пятом этапе), состоящая из двух лондонских длин $\lambda_L = 80$ нм для ниобия (см., например, [30]) и толщины первого слоя изоляции (4-й этап) $d_{\text{SiO}} = 330$ нм. В работе [31] хорошее согласие с экспериментом было получено при значении индуктивности поворотного квадрата $L_{\square}/2^6$). Таким образом, индуктивность джозефсоновского плеча составляет $L = 4.3$ пГн.

Выходная индуктивность L_{out} состоит из трех участков: начального, замыкающего и промежуточного, обеспечивающего индуктивную связь с измерительным СКВИДом. Начальный и замыкающий участки содержат в сумме 2 квадрата с индуктивностью $L_{\square}^{(5)}$, а промежуточный – шесть квадратов с индуктивностью $L_{\square}^{(8)} \approx 1$ пГн, изготовленных на 8 этапе технологического процесса. Промежуточный участок L_{out} отделен от сверхпроводящего экрана двойным слоем изоляции, что обеспечивает увеличенную оценку индуктивности на квадрат. Суммирование дает $L_{\text{out}} = 7.2$ пГн.

Коэффициент связи между L_{out} и L_{sq} на квадрат поверхности элемента L_{sq} можно оценить как $M_{\square}^{(58)} = L_{\square}^{(5)} w^{(5)}/w^{(8)}$, где $w^{(5,8)}$ – ширины полосковых линий, изготовленных на 5-м и 8-м этапах технологического процесса. Подстановка дает $M_{\square} = 0.3$ пГн, а взаимную индуктивность L_{out} к поворотному квадрату L_{sq} можно принять за половину от прямого (так же, как в работе [31]). Учитывая количество квадратов элемента L_{sq} в зоне индуктивной связи (8 прямых и 2 поворотных) получаем $M_{\text{out}} = 2.7$ пГн. Применяя данные рассуждения к зонам индуктивной связи контрольной линии и приемных контуров нейрона, содержащим по 3 прямым и 2 поворотных квадрата в индуктивном слое каждая, имеем оценку $M_{\text{in}} = 2.4$ пГн.

3. Эксперимент. Принципиальная схема проведенного эксперимента представлена на рис. 3. Она состоит из трех блоков: гаусс-нейрона (показан сплошными линиями), а также задающей (“Input”) и счи-

тывающей (“Readout”) схем (показаны штриховыми линиями). Предполагается наличие общего сверхпроводящего электрода “Gnd” (“Ground”), замыкающего контуры как гаусс-нейрона, так и измерительного СКВИДа. Ток I_x , создаваемый источником “С”, протекает по контрольной линии (“CL”) и создает входной сигнал (магнитный поток Φ_{in}) в каждый приемный контур нейрона. Это приводит к появлению тока I_{out} , магнитный поток которого Φ_{out} измеряется при помощи вспомогательного двухконтактного СКВИДа, состоящего из джозефсоновских переходов JJ_I и JJ_{II} , соединенных индуктивностью L_{sq} . Измерительный СКВИД находится в резистивном режиме, поскольку ток смещения, задаваемый источником “В”, слегка превышает максимальное критическое значение. Поэтому стабилизация напряжения U на СКВИДе позволяет поддерживать постоянным его критический ток, а значит и магнитный поток Φ_{sq} через него. Это осуществляется при помощи тока источника “F”, подключенного непосредственно к элементу L_{sq} для управления протекающим через него током I_{sq} . Выходным сигналом является разность I_{fb} начального $I_F^{(0)}$ и текущего I_F значения тока источника “F” (далее – “компенсирующий ток” или “ток обратной связи”). При стабилизированном напряжении U изменение I_{sq} происходит только за счет изменения тока I_F ⁷⁾:

$$I_{sq}^{(0)} - I_{sq} = I_{fb}, \quad (1)$$

и линейно зависит от выходного потока Φ_{out} (как показано ниже). Стабилизация напряжения осуществлялась при помощи специальной программы с точностью лучше 1 мкВ при шаге дискретизации I_{fb} в 0.1 мкА.

Типичная экспериментальная кривая, показанная на рис. 4, представляет собой набор положительных куполообразных пиков с амплитудой около 10 мкА по компенсирующему току и периодом $T_x = 1.4$ мА по входному сигналу на фоне линейной зависимости с наклоном в 0.8% тока I_x . Нелинейная компонента качественно соответствует ожидаемой передаточной функции образца согласно результатам теоретических исследований (см., например, [18, 19]). Линейная компонента, по-видимому, вызвана с непосредственной передачей входного магнитного потока в измерительную цепь. Этот эффект наблюдался ранее в работе [31] при экспериментальном исследовании передаточ-

⁶⁾ Дополнительная проверка данного наблюдения будет проведена в наших следующих работах с помощью методов численного моделирования, использованных в [34, 35] для моделирования конструкции сигма-нейрона.

⁷⁾ Через элемент L_{sq} протекает ток источника F, а также доля тока питания (источник В), определяемая величиной Φ_{sq} [32, 33].

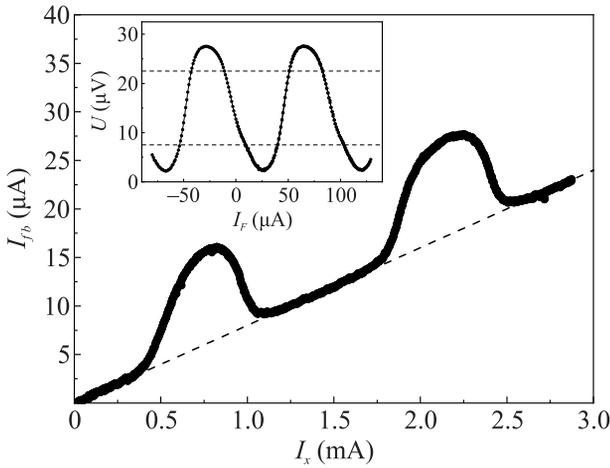


Рис. 4. Экспериментальная передаточная функция исследованного образца. Штриховой линией проиллюстрирована линейная компонента полученной зависимости. На вставке приведена вольт-потоковая характеристика измерительного СКВИДа. Пунктирные линии иллюстрируют допустимый диапазон стабилизируемого напряжения при измерении передаточной функции гаусс-нейрона (см. обсуждение в тексте)

ной функции сигма-нейрона. Причина связана с протеканием в экране кольцевых токов в качестве отклика на магнитное поле контрольной линии. Устранение линейной компоненты является предметом работ по совершенствованию конструкции гаусс-нейрона.

Форма нелинейной компоненты (полезный сигнал) близка к гауссовой, однако не совсем ей соответствует (см. рис. 5а). Нормированный полезный сигнал⁸⁾ имеет промежуточную форму между двумя гауссовыми зависимостями вида $\exp(-(x - x_d)^2/2\sigma^2)$ с разным значением σ^2 , аппроксимируемыми либо “купол” (верхняя (синяя) штриховая кривая на рис. 5а), либо “крылья” (нижняя (красная) штриховая кривая на рис. 5а) экспериментальной кривой. Здесь x – значение управляющего тока, нормированное на T_X , x_d – положение вершины купола в единицах T_X , а выходной сигнал нормирован на амплитуду купола. Дисперсия σ^2 равна 0.025 и 0.01 для “верхней” (синей) и “нижней” (красной) гауссовых кривых соответственно. Наилучшая аппроксимация всей кривой достигается при промежуточном значении дисперсии $\sigma^2 = 0.015$: среднеквадратичное отклонение в этом случае составляет около 5%.

⁸⁾ Для сравнения формы экспериментальной и расчетных кривых далее нелинейная компонента передаточной функции нормируется на свое максимальное значение, а управляющий ток – на период T_X .

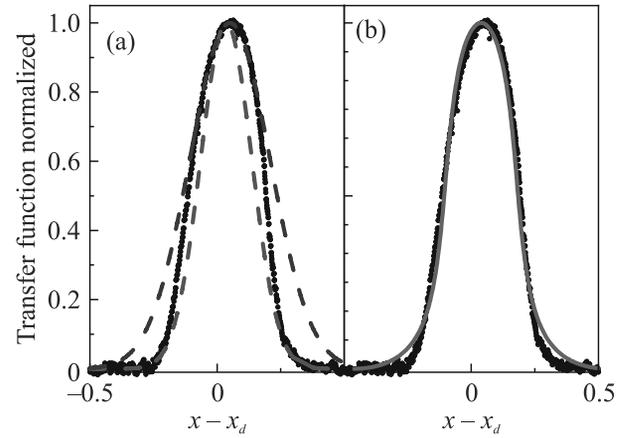


Рис. 5. (Цветной онлайн) Нелинейная компонента передаточной функции гаусс-нейрона (черные точки), аппроксимированная распределениями Гаусса с разным значением дисперсии (см. штриховые линии на панели (а)) и параметрической зависимостью (2)–(4) (см. зеленую линию на панели (б)). Координата $x = I_x/T_X$ представляет собой управляющий ток, нормированный на период передаточной функции, а x_d – положение купола передаточной функции. Вертикальная ось нормирована на амплитуду изменения нелинейной компоненты

Более правильным является описание формы передаточной функции гаусс-нейрона с помощью двух-параметрической зависимости вида [26]:

$$\dot{\theta} = \frac{\phi_b - \theta}{l + 2l_{\text{out}}} - \sin \theta \cos \psi \quad (2)$$

$$\dot{\psi} = -\frac{\phi_{\text{in}} + \psi}{l} - \sin \psi \cos \theta \quad (3)$$

$$\phi_{\text{out}} = \frac{2l_{\text{out}}}{l + 2l_{\text{out}}} (\theta - \phi_b). \quad (4)$$

Здесь ϕ_{in} и ϕ_{out} – нормированные входной и выходной магнитные потоки соответственно; l и l_{out} – нормированные индуктивности плеч интерферометра; $\theta = (\varphi_2 + \varphi_1)/2$ и $\psi = (\varphi_2 - \varphi_1)/2$ – полусумма и полуразность фаз на контактах Джозефсона $JJ_{1,2}$; ϕ_b – нормированный “поток смещения”. В уравнениях (2)–(4) используется естественная система единиц измерения индуктивностей и магнитного потока: индуктивности, обозначаемые строчными буквами, нормированы на джозефсоновскую индуктивность $L_J = \Phi_0/2\pi I_c$ (I_c – критический ток контактов Джозефсона); токи измеряются в единицах I_c ; а магнитные потоки – в единицах $\Phi_0/2\pi$. При численном решении ур. (2)–(4) производные по времени величин θ и ψ полагаются равными нулю в силу квазистационарного изменения входного сигнала. Действительно, при измерении передаточной функции

мы изменяли ток I_x (управляющий ток) от источника “С” скачкообразным образом на величину около 0.2% периода с интервалом времени более 1 с, что на много порядков меньше характерных скоростей джозефсоновских процессов⁹⁾. На рисунке 5b видно, что теоретическая кривая хорошо описывает экспериментальные результаты. Среднеквадратичное отклонение расчетной и экспериментальной кривых составляет около 3%.

Система ур. (2)–(4) содержит, фактически, всего два свободных параметра: джозефсоновскую индуктивность $L_J = 15$ пГн и поток смещения $\phi_b = 0.15\pi$. Первый параметр использовался для нормировки геометрических индуктивностей, оцененных в разделе 2, а ненулевое значение второго параметра, на первый взгляд, должно вызывать удивление. Действительно, в первых работах [18, 19] этот поток рассматривался как инструмент управления начальным состоянием гаусс-нейрона, а для создания ϕ_b предполагалось подавать в точку соединения О дополнительный ток i_T , который протекает до общего электрода (экрана) через выходную индуктивность (см. рис. 1). В работе [26] было показано, что величина ϕ_b влияет и на форму передаточной функции. При больших ϕ_b купол передаточной функции упирается и теряет идеальную форму, соответствующую распределению Гаусса. Именно этот эффект наблюдается на рис. 5, подтверждая наличие заметного потока смещения, хотя никакие дополнительные источники тока (см. схему рис. 1) к нейрону не подключались (см. схему рис. 3) и специальные контрольные линии [26] не использовались.

Появление потока смещения в нашем эксперименте, по-видимому, связано с влиянием процесса измерения на состояние образца (нейрона), поскольку датчик СКВИДа является единственным элементом, связанным непосредственно с выходной индуктивностью. Действительно, в силу индуктивной связи между L_{sq} и L_{out} магнитный поток в выходной индуктивности равен:

$$\phi_{out} = l_{out}i_{out} + m_{out}i_{sq}, \quad (5)$$

где i_{sq} – нормированный ток, протекающий по петле измерительного СКВИДа. При этом токи i_{out} и i_{sq} связаны условием постоянства магнитного потока ϕ_{sq} через измерительную систему:

$$\phi_{sq} = m_{out}i_{out} + l_{sq}i_{sq} = \text{const.} \quad (6)$$

Для максимальной точности измерений рабочую

⁹⁾Теория нестационарного состояния гаусс-нейрона рассматривалась в работах [25, 27]).

точку СКВИДа (т.е. стабилизируемый магнитный поток Φ_{sq}) необходимо выбирать отличным от нуля, точнее, в области большой производной $dU/d\Phi_{sq}$ вольт-поточковой характеристики¹⁰⁾ (см. вставку на рис. 4). Условие $\phi_{sq} \neq 0$ может быть обеспечено за счет несимметричной конструкции измерительного СКВИДа (см. рис. 3), приводящей к несимметричному протеканию тока питания I_b , а также за счет постоянной компоненты тока I_F , приводящей к смещению вольт-поточковой характеристики. Исключая ток i_{sq} из ур. (5) с помощью ур. (6), имеем:

$$\phi_{out} = l_{out} \left(1 - \frac{m_{out}^2}{l_{sq}l_{out}} \right) i_{out} + \frac{m_{out}}{l_{sq}} \phi_{sq}. \quad (7)$$

Первое слагаемое определяет линейную связь между выходным сигналом нейрона и током i_{out} , а второе представляет собой эффективный поток смещения. Исключая из ур. (5) ток i_{out} , можно продемонстрировать линейную связь выходного потока с током i_{fb} (с учетом ур. (1)):

$$\phi_{out} = \frac{l_{out}}{m_{out}} \phi_{sq} - \frac{l_{out}l_{sq}}{m_{out}} \left(1 - \frac{m_{out}^2}{l_{sq}l_{out}} \right) i_{sq}. \quad (8)$$

Возможность создания потока смещения путем выбора рабочей точки измерительной схемы является благоприятным обстоятельством для разработчиков сверхпроводниковых ANN на основе радиальных базисных функций. Действительно, измерительный СКВИД является неотъемлемой частью нейрона как логического элемента. Поэтому задание потока смещения через индуктивность L_{sq} не требует дополнительных усилий. Отсутствие необходимости в дополнительном токовом сигнале позволяет уменьшить количество подводных линий, энергопотребление и общие размеры нейрона. Как упоминалось в работе [31], миниатюризация индуктивных элементов по отношению к размерам экрана способна также подавить паразитную передачу входного сигнала в измерительную цепь. Совершенствование конструкции практического гаусс-нейрона и анализ его свойств будут предметом наших дальнейших работ на эту тему.

4. Заключение. Таким образом, в данной работе была опробована простейшая конструкция сверхпроводящего гаусс-нейрона, представляющего собой шунтированный двухконтактный интерферометр, изготовленный в виде тонкопленочной

¹⁰⁾Вольт-поточковая характеристика представляет собой зависимость напряжения на СКВИДе от тока источника “F” при постоянном токе смещения (источник “B”), превышающем максимальное критическое значение.

интерферометрической структуры над толстым сверхпроводящим экраном. Была измерена передаточная функция, представляющая собой сумму линейной и куполообразной компонент. Форма нелинейной компоненты может быть описана при помощи ранее полученных уравнений с учетом постоянного “потока смещения”, возникающего из-за воздействия процесса измерения выходного магнитного потока на состояние гаусс-нейрона. Последнее наблюдение благоприятно для разработки интегрированных нейронных сетей на основе реализованного интерферометрического элемента.

Экспериментальное исследование и анализ передаточной функции гаусс-нейрона (см. раздел 3) производились в ИФТТ РАН при поддержке гранта РНФ # 23-72-00053. Проектирование и изготовление образца (см. раздел 2) было выполнено в рамках производственной практики аспиранта МФТИ А. С. Ионина (МФТИ) и студента МФТИ Ф. А. Разоренова.

Авторы благодарны сотруднику ИФТТ РАН В. Н. Шилову за помощь в изготовлении образцов.

1. K. Ishida, I. Byun, I. Nagaoka, K. Fukumitsu, M. Tanaka, S. Kawakami, T. Tanimoto, T. Ono, J. Kim, and K. Inoue, *IEEE Micro* **41**(3), 19 (2021).
2. P. Crotty, D. Schult, and K. Segall, *Phys. Rev. E* **82**(1), 011914 (2010).
3. M. L. Schneider, C. A. Donnelly, S. E. Russek, B. Baek, M. R. Pufall, P. F. Hopkins, P. D. Dresselhaus, S. P. Benz, and W. H. Rippard, *Sci. Adv.* **4**(1), e1701329 (2018).
4. M. L. Schneider and K. Segall, *J. Appl. Phys.* **128**, 214903 (2020).
5. M. L. Schneider, C. A. Donnelly, and S. E. Russek, *J. Appl. Phys.* **124**, 161102 (2018).
6. K. K. Likharev and V. K. Semenov, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **1**(1), 3 (1991).
7. O. A. Mukhanov, V. K. Semenov, and K. K. Likharev, *IEEE Trans. Magn.* **23**, 759 (1987).
8. P. Bunyk, K. K. Likharev, and D. Zinoviev, *Int. J. High Speed Electron. Syst.* **11**, 257 (2001).
9. I. I. Soloviev, N. V. Klenov, S. V. Bakurskiy, M. Yu. Kupriyanov, A. L. Gudkov, and A. S. Sidorenko, *Beilstein J. Nanotechnol.* **8**, 2689 (2017).
10. A. E. Schegolev, N. V. Klenov, G. I. Gubochkin, M. Yu. Kupriyanov, and I. I. Soloviev, *Nanomaterials* **13**, 2101 (2023).
11. O. V. Skryabina, A. E. Schegolev, N. V. Klenov, S. V. Bakurskiy, A. G. Shishkin, S. V. Sotnichuk, K. S. Napolskii, I. A. Nazhestkin, I. I. Soloviev, M. Yu. Kupriyanov, and V. S. Stolyarov, *Nanomaterials* **12**, 1671 (2022).
12. V. Semenov, E. Golden, and S. Tolpygo, *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* **32**, 1-5 (2021).
13. V. Semenov, E. Golden, and S. Tolpygo, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **33**, 1 (2023).
14. N. Takeuchi, D. Ozawa, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, *Supercond. Sci. Technol.* **26**(3), 035010 (2013).
15. N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, *J. Appl. Phys.* **117**(17), 173912 (2015).
16. Q. Xu, Y. Yamanashi, C. L. Ayala, N. Takeuchi, T. Ortlepp, and N. Yoshikawa, *Design of an extremely energy-efficient hardware algorithm using adiabatic superconductor logic 2015, 15th International Superconductive Electronics Conference (ISEC)*, Nagoya, Japan (2015), p.1 (2015).
17. A. S. Sidorenko, S. V. Bakurskiy, Yu. Savva et al. (Collaboration), *International Journal of Circuits, Systems and Signal Processing* **17**, 177 (2023).
18. A. E. Schegolev, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, and M. V. Tereshonok, *Beilstein J. Nanotechnol.* **7**, 1397 (2016).
19. N. V. Klenov, A. E. Schegolev, I. I. Soloviev, S. V. Bakurskiy, and M. V. Tereshonok, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **28**(7), 1301006 (2018).
20. I. I. Soloviev, A. E. Schegolev, N. V. Klenov, S. V. Bakurskiy, M. Yu. Kupriyanov, M. V. Tereshonok, A. V. Shadrin, V. S. Stolyarov, and A. A. Golubov, *J. Appl. Phys.* **124**(15), 152113 (2018).
21. N. V. Klenov, A. V. Kuznetsov, A. E. Schegolev, I. I. Soloviev, S. V. Bakurskiy, M. Yu. Kupriyanov, and M. V. Tereshonok, *Low Temp. Phys.* **45**(7), 769 (2019).
22. S. Bakurskiy, M. Kupriyanov, N. V. Klenov, I. Soloviev, A. Schegolev, R. Morari, Yu. Khaydukov, and A. S. Sidorenko, *Beilstein J. Nanotechnol.* **11**, 1336 (2020).
23. A. E. Schegolev, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, A. L. Gudkov, and M. V. Tereshonok, *Nanobiotechnology Reports* **16**(6), 811 (2021).
24. A. Schegolev, N. Klenov, I. Soloviev, and M. Tereshonok, *Supercond. Sci. Technol.* **34**(1), 015006 (2021).
25. M. Bastrakova, A. Gorchavkina, A. Schegolev, N. Klenov, I. Soloviev, A. Satanin, and M. Tereshonok, *Symmetry* **13**(9), 1735 (2021).
26. A. E. Schegolev, N. V. Klenov, S. V. Bakurskiy, I. I. Soloviev, M. Yu. Kupriyanov, M. V. Tereshonok, and A. S. Sidorenko, *Beilstein J. Nanotechnol.* **13**, 444 (2022).
27. M. V. Bastrakova, D. S. Pashin, D. A. Rybin, A. E. Schegolev, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, A. A. Gorchavkina, and A. M. Satanin, *Beilstein J. Nanotechnol.* **13**, 653 (2022).
28. L. N. Kanal, *Encyclopedia of Computer Science*, John Wiley and Sons Ltd., Chichester, UK (2003), p. 1383.

29. В. В. Шмидт, *Введение в физику сверхпроводников*, 2-е изд., МЦНМО, М. (2000).
30. A. I. Gubin, K. S. Il'in, S. A. Vitusevich, M. Siegel, and N. Klein, *Phys. Rev. B* **72**, 064503 (2005).
31. А. С. Ионин, Н. С. Шуравин, Л. Н. Карелина, А. Н. Россоленко, М. С. Сидельников, С. В. Егоров, В. И. Чичков, М. В. Чичков, М. В. Жданова, А. Е. Щеголев, В. В. Больгинов, *ЖЭТФ* **164**(6(12)), 1 (2023).
32. А. Бароне, Дж. Паттерно, *Эффект Джозефсона*, Мир, М. (1984).
33. К. К. Лихарев, *Введение в динамику джозефсоновских переходов*, Наука, М. (1985).
34. С. В. Бакурский, Н. В. Кленов, М. Ю. Куприянов, И. И. Соловьев, М. М. Хапаев, *Журнал вычислительной математики и математической физики* **61**(5), 885 (2021).
35. М. М. Хапаев, М. Ю. Куприянов, *Дифференциальные уравнения* **58**(8), 1148 (2022).

Сенсор на нелинейной кинетической индуктивности¹⁾

Д. Ю. Водолазов²⁾

Институт физики микроструктур РАН, 603950 Н.-Новгород, Россия

Поступила в редакцию 6 октября 2023 г.

После переработки 20 октября 2023 г.

Принята к публикации 20 октября 2023 г.

Предложена концепция сенсора электромагнитного излучения (*nonlinear kinetic inductance sensor* – NKIS) на нелинейной кинетической индуктивности. Идея сенсора основана на расходимости кинетической индуктивности $L_k \sim dq/dI$ ($\hbar q$ – импульс сверхпроводящих электронов, I – сверхток) гибридного сверхпроводник/нормальный металл (SN) мостика при токе $I^* < I_{\text{dep}}$ (I_{dep} – ток распаривания гибрида) и температуре T^* много меньшей критической температуры гибрида T_c . Это позволяет получить большое изменение разности фаз $\delta\phi$ вдоль SN мостика в режиме заданного тока при $I \simeq I^*$ даже в случае малого роста электронной температуры. Возникновение $\delta\phi$ сопровождается изменением тока и магнитного потока через связанное сверхпроводящее кольцо, что может быть измерено с помощью сверхпроводящего квантового интерференционного прибора (СКВИДа). В некотором смысле предложенный сенсор является сверхпроводниковым аналогом сенсора на краю резистивного перехода (*transition edge sensor* – TES), чья работа основана на наличии большой производной dR/dT (R – сопротивление) вблизи критической температуры сверхпроводника T_c . Так как при $I \simeq I^*$ SN мостик находится в бесщелевом режиме, у него отсутствует нижняя граница для частоты детектируемого электромагнитного излучения. Расчеты показывают, что такой сенсор может работать в однофотонном режиме и детектировать одиночные фотоны с частотой $\nu \gtrsim 10$ ГГц. В работе обсуждается, что нетривиальная зависимость $I(q)$ SN мостика может быть также использована в детекторах непрерывного электромагнитного излучения, сенсорах тока и магнитного поля.

DOI: 10.31857/S1234567823220111, EDN: phbfua

1. Введение. Сверхпроводники в настоящее время широко используются как основной элемент детектора/сенсора электромагнитного излучения. Поглощенный фотон создает квазичастицы в сверхпроводнике или увеличивает их энергию и это изменяет его сверхпроводящие/транспортные свойства. Например, в детекторах на кинетической индуктивности (*kinetic inductance detector* – KID) [1] и сенсорах на краю резистивного перехода (*transition edge sensor* – TES) [2] возрастают кинетическая индуктивность и сопротивление, соответственно, работа миксера на туннельном переходе сверхпроводник-изолятор-сверхпроводник основана на изменении его сильно нелинейной вольт-амперной характеристики (ВАХ) [3], тогда как в сверхпроводниковых нано- и микрополосковых однофотонных детекторах (SSPD) токонесущий сверхпроводник переключается в резистивное/нормальное состояние после появления в нем горячего пятна (области с нагретыми электронами) в месте поглощения фотона [4].

В случае TES его высокая чувствительность связана с узким резистивным переходом сверхпроводника $R(T)$ вблизи критической температуры T_c и использовании сверхпроводящего квантового интерференционного прибора (СКВИДа) для измерения отклика детектора – и чем больше производная dR/dT , тем сильнее изменяется сопротивление и ток в сверхпроводнике в режиме заданного напряжения. Одним из преимуществ TES является то, что он работает в резистивном состоянии вблизи T_c и, следовательно, сверхпроводящая щель ϵ_g практически равна нулю, что означает отсутствие нижней границы, типичной для KID или SSPD, где энергия фотона $h\nu$ должна превысить $2\epsilon_g$. Кроме того, TES может работать в однофотонном режиме (в инфракрасном и более высокочастотном диапазонах) и разрешать энергию поглощенного фотона, что не может делать SSPD.

В нашей работе предлагается альтернативный сенсор со способностью разрешать энергию фотона, который, как и TES, основан на сильном изменении транспортных свойств при малом разогреве сверхпроводящего чувствительного элемента. По сравнению с TES, он работает в *сверхпроводящем* состоянии при $T \ll T_c$, но несмотря на это, сенсор имеет

¹⁾См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru

²⁾e-mail: vodolazov@ipmras.ru

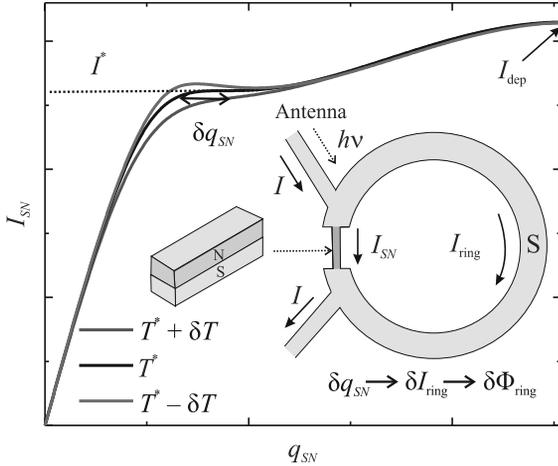


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема NKIS. NKIS состоит из SN мостика, который является частью сверхпроводящего кольца. С уменьшением температуры на зависимости сверхтока от импульса $I_{SN}(q_{SN})$ SN мостика появляется “плато” при $T = T^*$ и $I_{SN} = I^*$, что означает расходимость кинетической индуктивности $L_k \sim dq_{SN}/dI_{SN}$. При $I_{SN} \simeq I^*$ импульс меняется на $\sim \delta q$ с увеличением температуры электронов от $T = T^*$ до $T^* + \delta T$. Это приводит к изменению тока в сверхпроводящем кольце и магнитному потоку через него. Последнее может быть измерено с помощью СКВИДа. Предполагается, что SN мостик и кольцо являются частью антенны и фотон с энергией $h\nu <$ меньше удвоенной щели в сверхпроводящих электродах может быть поглощен только в SN мостике, где $\epsilon_g = 0$ при $I_{SN} \gtrsim I^*$

нулевую щель. Предложенный сенсор на нелинейной кинетической индуктивности (*nonlinear kinetic inductance sensor* – NKIS) состоит из смещенного током гибридного сверхпроводник–нормальный металл (SN) мостика, связанного со сверхпроводящим кольцом (см. рис. 1). SN мостик имеет уникальную зависимость сверхтока I_{SN} (здесь и далее имеется в виду абсолютное значение тока) от импульса $\hbar q_{SN}$. При $T = T^* \ll T_c$ на зависимости $I_{SN}(q_{SN})$ существует “плато” при $I_{SN} = I^*$, где кинетическая индуктивность $L_k = l_{SN} \hbar (dq_{SN}/dI_{SN}) / 2|e|$ расходится (l_{SN} – длина SN мостика). При $T > T^*$ “плато” трансформируется в часть $I_{SN}(q_{SN})$ с конечным наклоном и конечной L_k . Следовательно, можно получить большое изменение q_{SN} и разности фаз $\delta\phi$ в режиме заданного тока через SN мостик при $I_{SN} \simeq I^*$ и температуре подложки $T = T^*$ даже в случае небольшого увеличения температуры электронов. Рост q_{SN} приводит к увеличению тока в сверхпроводящем кольце и магнитного потока через него. Изменение последней величины может быть измерено с помощью СКВИДа. Предполагается, что SN мостик и кольцо

являются частью антенны, которая принимает фотон, и фотон может быть поглощен только в SN мостике, который находится в бесщелевом режиме при $I \gtrsim I^*$ и в остальной части сенсора $h\nu < 2\epsilon_g$.

По сравнению с TES, где большая производная dR/dT ведет к большому изменению тока, в NKIS большая производная dq_{SN}/dI_{SN} обеспечивает большое изменение I_{ring} . В то же время, в отличие от TES, предложенный сенсор работает в сверхпроводящем, бездиссипативном состоянии, и $dq_{SN}/dI_{SN} \rightarrow \infty$ при $I_{SN} = I^*$ и $T = T^*$, что потенциально может приводить к более высокой чувствительности, чем у TES. Так же, как и TES, предложенный сенсор не имеет нижней границы для частоты детектируемых фотонов, так как при токе $I_{SN} \gtrsim I^*$ сверхпроводящая щель равна нулю в SN мостике. Ниже будет показано, что NKIS может потенциально детектировать одиночные фотоны с частотой $\nu > 10\text{--}30$ ГГц при температуре подложки 15–150 мК.

2. Сенсор на нелинейной кинетической индуктивности. В данном разделе представлены результаты вычислений, которые демонстрируют возможность работы NKIS в однофотонном режиме. На рисунке 2а показана рассчитанная зависимость $I_{SN}(q_{SN})$ при различных температурах для SN мо-

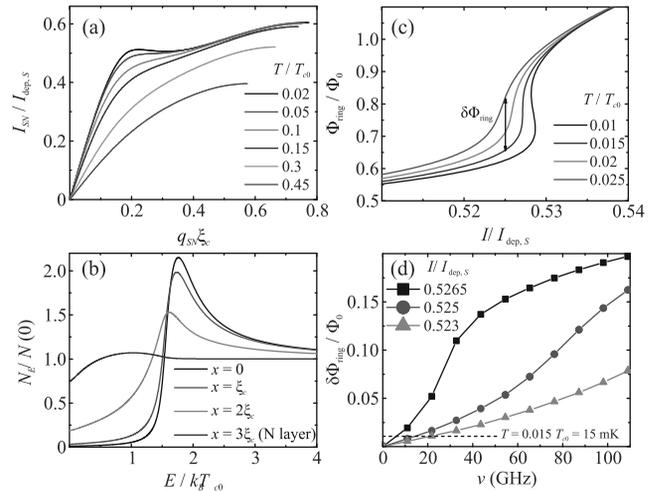


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость сверхтока от импульса (показана часть с $dI_{SN}/dq_{SN} > 0$) в SN мостике с параметрами: $D_N/D_S = 20$, $d_S = 3\xi_c$, $d_N = 1.5\xi_c$, $I^* \simeq 0.502I_{dep,S}$, $T^* \simeq 0.041T_{c0}$ при различных температурах и (б) – плотность состояний поперек мостика при $I_{SN} = 0.5I_{dep,S}$ и $T = 0.045T_{c0}$. (с) – Зависимость магнитного потока через сверхпроводящее кольцо от полного тока $I = I_{SN} + I_{ring}$ при различных температурах. (д) – Зависимость вариации магнитного потока (см. рис. 2с) от энергии фотона при различных токах

стика со следующими параметрами: толщины S и N слоев $d_S = 3\xi_c$, $d_N = 1.5\xi_c$ ($\xi_c = (\hbar D_S/k_B T_{c0})^{1/2}$), отношение коэффициентов диффузии $D_N/D_S = 20$, $\hbar q = \hbar(\nabla\varphi + 2\pi A/\Phi_0)$ – импульс куперовских пар (φ – фаза сверхпроводящего параметра порядка, A – векторный потенциал, Φ_0 – квант магнитного потока), T_{c0} – критическая температура и $I_{dep,S}$ – ток распаривания при $T = 0$ одиночного сверхпроводящего слоя. Для расчета полученных зависимостей было использовано одномерное уравнение Узаделя (уравнения и метод расчета представлены в дополнительных материалах). В модели учитывается зависимость сверхпроводящих свойств только по толщине SN мостика $d_S + d_N$ и предполагается отсутствие их зависимости по длине (предполагается, что $l_{SN} \gg w_{SN}$) и ширине ($w_{SN} < \Lambda$, Λ – Пирловская глубина проникновения магнитного поля) мостика.

При температуре T^* на зависимости $I_{SN}(q_{SN})$ появляется “плато” при токе $I = I^*$. Оно возникает вследствие перехода от $I_{SN}(q_{SN})$, имеющей один максимум при больших T к зависимости, имеющей два максимума при низкой температуре. Второй максимум при малых q_{SN} возникает из-за возросшего вклада N слоя в общий сверхток (индуцированная вследствие эффекта близости сверхпроводимость в N слое становится “сильнее”), что также ведет и к увеличению наклона $I_{SN}(q_{SN})$ при малых q_{SN} и меньшей величине L_k . Так как N слой имеет более высокое значение коэффициента диффузии, распаривающий эффект сверхскорости (в уравнении Узаделя он описывается членом с $\hbar D_{S,N} q_{SN}^2$) больше в N слое, чем в S (заметим, что $q_{SN} = \text{const}$ по толщине SN мостика). Это ведет к подавлению сверхпроводимости в N слое при более малых q_{SN} , чем в S слое, и необходимости увеличить импульс чтобы сохранить величину сверхтока, что и приводит к появлению “плато”.

Рисунок 2b демонстрирует, что при $I_{SN} \sim I^*$ сверхпроводимость в SN мостике бесщелевая. Подробное обсуждение бесщелевого режима приводится в следующем разделе, здесь мы только отметим, что хотя щель равна нулю, однако в большей части S слоя плотность состояний много меньше, чем в нормальном состоянии при $E \lesssim k_B T_{c0}$. Для дальнейших расчетов мы используем эффективную “нормальную” толщину SN мостика $d_{\text{eff}} = d_N + \xi_c$, где плотность состояний близка к значению в нормальном состоянии $N(0)$.

Когда SN мостик является частью сверхпроводящего кольца, полный ток I состоит из I_{SN} и I_{ring} (см. рис. 1). В модели предполагается, что кольцо сделано из того же материала, что и S слой в SN мостике и дуга кольца имеет толщину d_S как S слой в мо-

стике, но ширина дуги много больше ширины мостика: $w_{\text{ring}} \gg w_{SN}$. Из-за малой толщины и ширины SN мостика и дуги кольца по сравнению с Λ можно пренебречь экранирующими эффектами и считать, что $q = \nabla\varphi \gg A$. Из условия $\oint \nabla\varphi dl = 0$ при интегрировании по кольцу и мостику (предполагаем, что внутри кольца нет флюксоида) найдем: $q_{\text{ring}} = q_{SN} l_{SN}/l_{\text{ring}}$. С этим соотношением и определением $\alpha = l_{SN} w_{\text{ring}}/l_{\text{ring}} w_{SN}$ можно написать выражение для полного тока:

$$I = I_{SN}(q_{SN}) + 1.55\alpha q_{SN} \xi_c I_{dep,S}, \quad (1)$$

где мы использовали линейную связь $I_{\text{ring}} \sim q_{\text{ring}} \xi_c$ (так как $q_{\text{ring}} \xi_c \ll 1$) и слабую температурную зависимость тока распаривания одиночного S слоя при $T \ll T_{c0}$.

С известной зависимостью $I_{SN}(q_{SN})$ и выражением для магнитного потока через кольцо $\Phi = L_G I_{\text{ring}}$ ($L_G = \mu_0 R(\ln(8R/r) - 2)$ – геометрическая индуктивность кольца, R – его радиус, $r \sim w_{\text{ring}}$ и μ_0 магнитная постоянная) была рассчитана зависимость $\Phi(I, T)$. Она показана на рис. 2c для различных температур и следующих параметров: $w_{SN} = 100$ нм, $l_{SN} = 1$ мкм, $w_{\text{ring}} = 12$ мкм, $l_{\text{ring}} = 2.4$ мм, $D_S = 0.5$ см²/с, $T_{c0} = 1$ К ($\xi_c = 19.5$ нм, $I_{dep,S} = 30.6$ мкА, $\alpha = 1/20$). Выбранные материальные параметры сверхпроводника типичны для гранулированного Al [5] и близки к параметрам других низкотемпературных сверхпроводников с большим удельным сопротивлением в нормальном состоянии типа TiN [6], PtSi [7] и Hf [8]. В качестве нормального металла для N слоя была выбрана медь.

Используя полученные результаты, нами была рассчитана способность NKIS детектировать одиночные фотоны (анализ также может быть сделан и для непрерывного потока фотонов, как это было сделано в [9]). На рисунке 2d показана зависимость изменения потока через кольцо $\delta\Phi$ от изменения электронной температуры в SN мостике после поглощения фотона с энергией $h\nu$. Можно связать δT с $h\nu$, используя закон сохранения энергии

$$\delta T = \frac{h\nu}{C_e V_{\text{eff}}}, \quad (2)$$

где $C_e = 2\pi^2 k_B^2 N(0) T_0/3$ – электронная теплоемкость, T_0 – температура подложки, $V_{\text{eff}} = l_{SN} w_{SN} d_{\text{eff}}$ – объем SN мостика, в котором плотность электронных состояний близка к своему значению в нормальном состоянии. Мы пренебрегли нагревом фононов из-за их малой теплоемкости и использовали значение $N(0) = 13$ эВ/нм³, соответствующее меди.

Важной характеристикой фотонного сенсора является отношение сигнал/шум \mathcal{S}/\mathcal{N} . Шум можно оценить как $\mathcal{N} = \delta\Phi_n\sqrt{\omega}$, где $\delta\Phi_n$ – чувствительность к потоку dc СКВИДа и $\sqrt{\omega}$ – его полоса частот [9]. С $\delta\Phi_n = 10^{-6}/\sqrt{\Gamma\text{ц}}$ (которое в 10 раз меньше значения, полученного в работе [10]), и $\omega = 1$ МГц получим $\mathcal{N} = 10^{-3}\Phi_0$. Следовательно, с величиной сигнала $\mathcal{S} = 10^{-2}\Phi_0$ отношение сигнал/шум составит $\mathcal{S}/\mathcal{N} = 10$.

На рисунке 2d уровень $\mathcal{S} = 10^{-2}\Phi_0$ обозначен пунктирной линией и наши результаты показывают, что сенсор способен детектировать одиночные фотоны с частотой $\nu \gtrsim 10$ ГГц при $T_0 = 15$ мК и токе $I \sim I^* \sim 0.526I_{\text{dep},S} \sim 15$ мкА.

NKIS также может быть использован для детектирования одиночных ТГц и субТГц фотонов. Из-за их значительно более высокой энергии нет необходимости использовать мК температуры и $T_{c0} = 1$ К. Заметим, что $V_{\text{eff}} \sim \xi_c \sim 1/\sqrt{T_{c0}}$ и $I_{\text{dep},S} \sim T_{c0}$ для сверхпроводника, чья толщина пропорциональна ξ_c . Следовательно наши результаты могут быть масштабированы – необходимо умножить $\delta\Phi/\Phi_0$ на рисунке 2d на $T_{c0}(\text{К})/1\text{К}$ и ν на $(T_{c0}(\text{К})/1\text{К})^{3/2}$. Например для сверхпроводника с $T_{c0} = 10$ К (NbN, NbTiN) поглощение фотона с $\nu = 300$ ГГц при $T_0 = 150$ мК приводит к изменению магнитного потока на $\sim 0.2\Phi_0$ тогда как 30 ГГц фотон изменяет магнитный поток на $\delta\Phi/\Phi_0 \sim 0.02$.

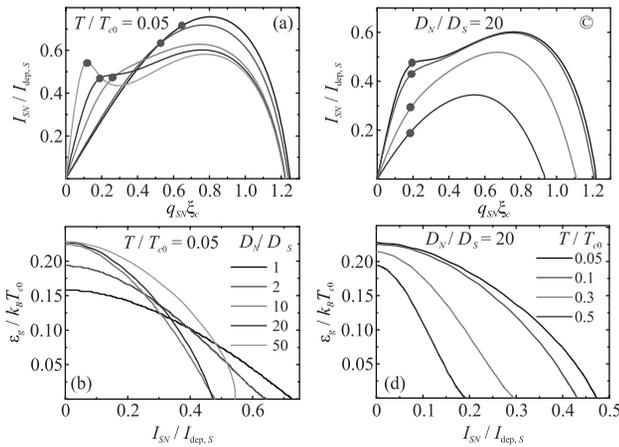


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость сверхтока от импульса и (б) – токовзависящая щель в SN мостике при $T = 0.05T_{c0}$ и различных отношениях D_N/D_S . Красные кружки указывают на ток I_q и импульс g_q , при которых щель обращается в ноль. Можно увидеть, что с ростом D_N это происходит при меньших q_{SN} . (с) – Зависимость сверхтока от импульса и (д) – токовзависящая щель в SN мостике при $D_N/D_S = 20$ и различных температурах. Толщины d_N и d_S такие же, как на рис. 2

После поглощения фотона электроны нагреваются на δT и затем охлаждаются за счет передачи энергии фононам на временном масштабе $\sim \tau_{ep}$. В предложенной системе не происходит охлаждение электронов за счет диффузии из-за большой энергетической щели на концах SN мостика, где он граничит со сверхпроводником с большой щелью $\epsilon_g = 1.76k_B T_{c0}$. При низких температурах $\tau_{ep} \sim 1/T^3$ и, например, для Ag оно может достигать $10^{-1} - 10^{-4}$ с в диапазоне температур 10–100 мК [9]. Можно ожидать примерно этих же времен и для Cu.

3. Контролируемая током щель. Обсудим теперь более подробно бесщелевой режим в SN мостике. В обычном сверхпроводнике в “грязном” пределе энергетическая щель конечна при $I = I_{\text{dep}}$, где она приблизительно равна $0.57k_B T_{c0} \sim \Delta_0/3$ [11] ($\Delta_0 \sim 1.76k_B T_{c0}$ – щель при нулевом токе). Однако в SN мостике щель обращается в ноль при токе $I_g < I_{\text{dep}}$, который отмечен красными кружками на рис. 3. Бесщелевое состояние в SN мостике возможно из-за большой разности между коэффициентами диффузии в N и S слоях. Как было обсуждено ранее, распаривающий эффект импульса в “грязном” сверхпроводнике описывается членом $\sim \hbar D q^2$ в уравнении Узаделя, и, когда $\hbar D q^2/2 \sim \Delta_0$, щель обращается в ноль в сверхпроводнике [11]. Приблизительно такой же критерий справедлив и для SN бислоя, что видно из рис. 3а, где с увеличением D_N щель становится нулевой при меньшем значении импульса q_{SN} .

В обычном сверхпроводнике условие $\hbar D q^2/2 \sim \Delta_0$ достигается на неустойчивой, в режиме заданного тока, части зависимости $I(q)$, где $dI/dq < 0$ и сверхпроводящий параметр порядка быстро уменьшается с ростом q . В SN бислое бесщелевое состояние является устойчивым из-за наличия S слоя, имеющего значительно меньший коэффициент диффузии и меньшее распаривающее влияние q .

4. “Плато” при различных параметрах SN мостика. Как показано ниже, “плато” существует в широком диапазоне параметров SN мостика. С увеличением d_S (при тех же значениях d_N и D_N/D_S) температура T^* , ширина “плато” и отношение I^*/I_{dep} уменьшаются (см. рис. 4а). Также существует минимальная критическая толщина d_S (например, она приблизительно равна $2.3\xi_c$ при $d_N = 1.5\xi_c$ и $D_N/D_S = 50$), ниже которой “плато” не существует при любой температуре. Рисунок 4б показывает, что необходимо иметь большое отношение $D_N/D_S \gtrsim 20$ для реализации режима с “плато” (в принципе оно существует и при $D_N/D_S = 15$, но в этом случае $I^* \simeq I_{\text{dep}}$, что делает непрактичным его использование). Другим способом контро-

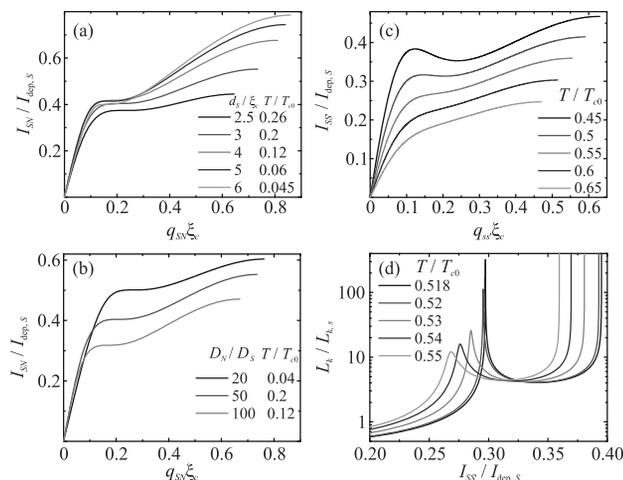


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость сверхтока от импульса при различных d_S , фиксированных $d_N = 1.5\xi_c$, $D_N/D_S = 50$ и температуре T , близкой к T^* . (б) – Зависимость $I_{SN}(q_S)$ при различных D_N/D_S , фиксированных $d_N = 1.5\xi_c$, $d_S = 3\xi_c$ и температуре T , близкой к T^* . (с) – Зависимость $I_{SS'}(q_{SS'})$ для SS' мостика при различных температурах и $D_{S'}/D_S = 50$, $d_N = 2\xi_c$, $d_S = 4\xi_c$, $T_{c,S'} = 0.15T_{c0}$. (д) – Зависимость кинетической индуктивности SS' мостика от тока при различных температурах, близких к T^* ($L_{k,S}$ – кинетическая индуктивность одиночного S слоя при $T = 0$)

лизовать T^* является изменение толщины N слоя и прозрачности SN интерфейса для прохождения через него электронов. Например, увеличение d_N или уменьшение прозрачности сдвигает T^* в низкие температуры, так как в этом случае наведенная в N слое сверхпроводимость становится “слабее” и необходимо уменьшить температуру, чтобы ее усилить.

“Плато” на $I(q)$ может также существовать в бислое, состоящим из двух сверхпроводников, имеющих разные критические температуры – см. рис. 4с. В этой системе также реализуется бесцелевой режим при $I < I_{\text{деп}}$ и зависимость $I_{SS'}(q_{SS'})$ чувствительна к малым изменениям температуры. Высокая чувствительность к температуре хорошо видна на рис. 4д, где показана зависимость $L_k(I_{SS'})$ при разных T вблизи T^* . С уменьшением температуры пик появляется на зависимости $L_k(I_{SS'})$, который становится резким при $T = T^*$ и $I_{SS'} = I^*$.

5. Обсуждение. Пик на зависимости $L_k(I)$ был недавно обнаружен для сверхпроводящей полоски MoN(40 нм)/Cu(40 нм) ($d_S = d_N \simeq 6\xi_c$, $T_{c0} \simeq 7.8\text{K}$) [12]. С уменьшением температуры ширина пика уменьшалась, тогда как его высота увеличивалась, что согласуется с предсказанием, следующим из модели Узаделя. В этом эксперименте критиче-

ский ток был меньше, чем ток распаривания (наиболее вероятно из-за влияния краевых дефектов) так как не была обнаружена расходимость L_k при $I = I_c$. Толщина SN бислоя была оптимизирована для наблюдения сверхпроводимости с конечным импульсом в достаточно малых магнитных полях и узкий пик должен был появиться при $T \simeq 0.025T_{c0} \simeq 200\text{mK}$, как следует из модели Узаделя, что значительно меньше, чем минимальная достигнутая в эксперименте температура $T = 2.7\text{K}$.

Различные схемы детектирования одиночных микроволновых фотонов, основанные на разогреве сверхпроводника малого размера, были предложены ранее. Дизайн, схожий с изображенным на рис. 1, но с SNS джозефсоновским контактом (ДК) вместо SN мостика обсуждался в работе [9]. Авторы предложили использовать сильную температурную зависимость критического тока длинного ДК и, по их оценкам, такой прибор способен детектировать ТГц фотоны. В сверхпроводящем замкнутом контуре с двумя SNS контактами нагрев одного ДК фотоном приводит к импульсу напряжения (когда магнитный поток через контур близок к $\Phi_0/2$), и это является идеей другой реализации однофотонного терагерцового детектора [13]. В работе [14] была предложена более сложная схема с двумя связанными сверхпроводниковыми контурами (один с магнитным потоком $\sim \Phi_0/2$, другой с $\Phi = 0$) и двумя (коротким и длинным) SNS контактами. Предполагается, что микроволновой фотон поглощается в длинном контакте и это приводит к заметному изменению квазичастичного тока через туннельный контакт, присоединенного к короткому ДК – для этого прибора была предсказана способность детектировать фотоны в частотном диапазоне 10 ГГц–10 ТГц. В работе [15] изменение импеданса SN мостика, помещенного в конце сверхпроводниковой копланарной линии служит сигналом, что микроволновой фотон был поглощен там (заметим, что эта реализация не требует приложения тока к мостику).

По сравнению с работами [9, 13, 14] наша система имеет более простой дизайн и не требует использования SNS контакта. Как и для системы из [15], возможно менять параметры SN мостика (ширину, длину, толщину N слоя) для согласования NKIS с $50\ \Omega$ микроволновым импедансом копланарной линии, при необходимости. Из-за схожести с TES возможно использовать опыт и методы, развитые для этого прибора. По сравнению с TES преимуществом NKIS является его работа в сверхпроводящем состоянии. Но более важным является то, что есть ток и темпе-

ратура, когда $dI_{SN}/dq_{SN} \rightarrow 0$ и $dq_{SN}/dI_{SN} \sim L_k \rightarrow \infty$ при $I = I^* < I_{\text{деп}}$. Данное свойство является следствием “фазового” перехода при понижении температуры от зависимости $I(q)$, имеющей один максимум, к $I(q)$, имеющей два максимума, и появления экстремума при малых q , возле которого dI/dq меняет знак.

В реальности пик на зависимости $L_k(I)$ будет уширен за счет тепловых/токовых флуктуаций, локальных вариаций толщины/ширины и материальных параметров (локальной T_c , удельного сопротивления и т.п.) SN мостика, которые также ответственны за уширение резистивного перехода в TES. Однако в отличие от резистивного перехода, где всегда $dR/dT > 0$ и зависимость $R(T)$ является обратимой для зависимости $I(q)$, при $T < T^*$ характерно наличие области с $dq/dI < 0$ возле I^* (см. рис. 1). Последнее приводит к гистерезису $L_k(I)$ при токах, близких к I^* . Если выбрать температуру немного ниже T^* , рост электронной температуры приводит к скачку L_k и $\delta\phi$, что достаточно просто заметить. Однако после охлаждения электронов SN мостик не вернется в начальное состояние, что является неудобным для детектирования следующего фотона. В этом случае флуктуации могут помочь вернуться в начальное состояние, при этом изменение $\delta\phi$ останется большим. В некотором смысле ситуация аналогична ВАХ сверхпроводящих мостиков. Обычно при $T \sim T_c$ ВАХ являются плавными и обратимыми, тогда как при $T \ll T_c$ они являются гистерезисными с резким скачком при $I = I_c$. При промежуточной температуре происходит переход от одной зависимости к другой, когда ВАХ остается еще обратимой, но с большой производной dV/dI при $I \simeq I_c$. Мы ожидаем похожего эффекта вблизи T^* , но для зависимости $q(I)$ и dq/dI возле I^* .

Хотя в работе основной акцент сделан на способности NKIS детектировать одиночные микроволновые фотоны, предложенный сенсор может работать как и TES (болومتر на горячих электронах) в режиме непрерывного потока фотонов. В этом случае для нахождения изменения температуры электронов δT необходимо решить уравнение на баланс разогрева SN мостика за счет поглощенного электромагнитного излучения и его остывания вследствие взаимодействия электронов с фононами. Заметим, что для этого рода приложения нет необходимости использовать СКВИД для считывания сигнала. Как и в KID, можно использовать копланарный волновод с емкостно связанным сверхпроводником, содержащим смещенный ток SN мостик. При $I = I^*$ и температуре подложки $T = T^*$ кинетическая индуктивность SN

мостика значительно меняется при увеличении электронной температуры (см. эволюцию $L_k(I)$ с температурой на рис. 4d). Благодаря бесщелевой сверхпроводимости добротность такого резонатора должна быть мала по сравнению с KID, что означает уширение резонанса, но это можно компенсировать экстремально большим (если сравнивать с KID) изменением L_k .

Расходимость L_k при $I \rightarrow I^*$ может быть также использована в сенсорах магнитного поля и тока. Действительно, даже малое отклонение тока от I^* ведет к большому изменению L_k при температуре близкой к T^* – см. рис. 4d. Это свойство может быть использовано в параметрическом повышающем преобразователе на кинетической индуктивности (*kinetic inductance parametric up-converter*) [16] для усиления малых токов в TES вместо СКВИДа и магнетометре на кинетической индуктивности [17] для измерения экранирующих токов, вызванных магнитным полем.

Работа поддержана НЦМУ “Центр фотоники” при финансировании Министерством науки и высшего образования РФ, соглашение 075-15-2022-316.

1. J. Zmuidzinas, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **3**, 169 (2012).
2. K. Irwin and G. Hilton, *Transition-Edge Sensors*, in: *Cryogenic Particle Detection. Topics in Applied Physics*, ed. by C. Enss, Springer, Berlin, Heidelberg (2005), v. 99, p. 63.
3. K.H. Gundlach and M. Schicke, *Supercond. Sci. Technol.* **13**, R171 (2000).
4. C.M. Natarajan, M.G. Tanner, and R.H. Hadfeld, *Supercond. Sci. Technol.* **25**, 063001 (2012).
5. F. Levy-Bertrand, T. Klein, T. Grenet, O. Dupre, A. Benoit, A. Bideaud, O. Bourrion, M. Calvo, A. Catalano, A. Gomez, J. Goupy, L. Grunhaupt, U.v. Luepke, N. Maleeva, F. Valenti, I.M. Pop, and A. Monfardini, *Phys. Rev. B* **99**, 094506 (2019).
6. H.G. Leduc, B. Bumble, P.K. Day, B. Ho Eom, J. Gao, S. Golwala, B.A. Mazin, S. McHugh, A. Merrill, D.C. Moore, O. Noroozian, A.D. Turner, and J. Zmuidzinas, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 102509 (2010).
7. P. Szypryt, B.A. Mazin, G. Ulbricht, B. Bumble, S.R. Meeker, C. Bockstiegel, and A.B. Walter, *Appl. Phys. Lett.* **109**, 151102 (2016).
8. G. Coiffard, M. Daal, N. Zobrist, N. Swimmer, S. Steiger, B. Bumble and B.A. Mazin, *Supercond. Sci. Technol.* **33**, 07LT02 (2020).
9. F. Giazotto, T.T. Heikkila, G.P. Pepe, P. Helisto, A. Luukanen, and J.P. Pekola, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 162507 (2008).
10. M. Kiviranta, J.S. Penttila, L. Gronberg, J. Hassel, A. Virtanen, and H. Seppa, *Supercond. Sci. Technol.* **17**, S285 (2004).

11. K. Maki, *Progr. Theoret. Phys. (Kyoto)* **29**, 333 (1963).
12. M. Yu. Levichev, I. Yu. Pashenkin, N.S. Gusev, and D. Yu. Vodolazov, *Phys. Rev. B* **108**, 094517 (2023).
13. P. Solinas, F. Giazotto, and G. P. Pepe, *Phys. Rev. Appl.* **10**, 024015 (2018).
14. F. Paolucci, *Phys. Rev. Appl.* **20**, 014003 (2023).
15. V. Lubsanov, V. Gurtovoi, A. Semenov, E. Glushkov, V. Antonov, and O. Astafiev, *Supercond. Sci. Technol.* **35**, 105013 (2022).
16. A. Kher, P.K. Day, B.H. Eom, J. Zmuidzinas and H. G. Leduc, *J. Low Temp. Phys.* **184**, 480 (2016).
17. J. Luomahaara, V. Vesterinen, L. Groenberg, and J. Hassel, *Nat. Commun.* **5**, 4872 (2014).

Пространственная модель организации хроматина в ядре биологической клетки по данным малоуглового рассеяния

Е. Г. Яшина^{+*1)}, Е. Ю. Варфоломеева⁺, Р. А. Пантина⁺, В. Ю. Байрамуков⁺, Р. А. Ковалев⁺,
Н. Д. Федорова⁺, К. А. Пшеничный⁺, Ю. Е. Горшкова[×], С. В. Григорьев^{+*}

⁺Петербургский институт ядерной физики,
Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 188300 Гатчина, Россия

^{*}Санкт-Петербургский государственный университет, 198504 С.-Петербург, Россия

[×]Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

Поступила в редакцию 15 мая 2023 г.
После переработки 17 октября 2023 г.
Принята к публикации 17 октября 2023 г.

Представлены результаты малоуглового рассеяния нейтронов и рентгеновского излучения на ядрах HeLa с нормальной и подавленной транскрипционной активностью. Данные малоуглового рассеяния нейтронов демонстрируют наличие бифрактальной структуры внутри ядра. На масштабах от размера ядра до нескольких сотен нанометров наблюдается структура логарифмического фрактала, а на меньших масштабах, вплоть до нуклеосомной организации – структура объемного фрактала. Данные малоуглового рассеяния рентгеновского излучения показывают, что наличие структуры объемного фрактала коррелирует с транскрипционной активностью клетки. Принимая во внимание успех описания хроматина моделью складчатой глобулы (результаты данных метода Hi-C), мы предлагаем сценарий формирования бифрактальной структуры внутри ядра. Внутри плотнотапакованного закрытого хроматина находится система транспортных каналов (логарифмический фрактал), а активный хроматин локализуется вблизи или внутри транспортных каналов и, в результате транскрипционной активности, образует объемнофрактальные структуры. Таким образом, структура логарифмического фрактала обеспечивает равномерное рассредоточение пустот на разных масштабах, потенциально необходимое для осуществления транскрипции и транспорта веществ внутри ядра, в то время как структура объемного фрактала является следствием транскрипционной активности клетки.

DOI: 10.31857/S1234567823220123, EDN: pftlyr

Вопрос о том, каким образом невероятно длинная макромолекула ДНК уложена в относительно компактном ядре биологической клетки является одной из фундаментальных проблем биологии. На сегодняшний момент хорошо известны первые два уровня компактизации хроматина. Первый из них – нуклеосомный – на этом уровне двуспиральная нить ДНК, толщиной 2 нм, а длиной несколько метров, наматывается на 8 гистоновых белков, образуя 10 нм нуклеосому. Этот уровень компактизации иногда называют “бусины на нитке”, где бусины – это нуклеосомы, а нитка – это ДНК. Благодаря первому, нуклеосомному, уровню упаковки, линейные размеры ДНК компактизируются в 6–7 раз. Считается, что второй уровень организации хроматина – 30 нм фибриллы: нуклеосомы плотно прилегая друг к другу, образуют спираль диаметром 30 нанометров (рис. 1). Однако, ряд структурных и визуализирующих исследова-

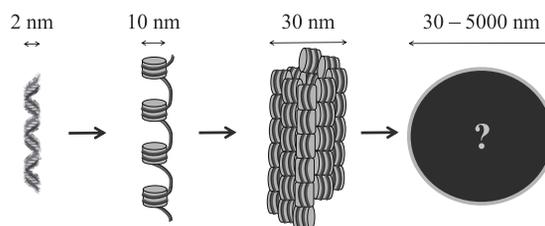


Рис. 1. (Цветной онлайн) Первые два этапа организации хроматина: молекула ДНК наматывается на гистоновые белки, образуя нуклеосомы, которые формируют 30 нм фибриллу

ований показывают, что в клетке в основном наблюдаются неравномерно свернутые 10 нм, а не 30 нм фибриллы [1–3].

Таким образом, на первых двух уровнях организации хроматина ДНК компактизована в десятки раз, и вопрос укладки ДНК сводится к вопросу укладки хроматиновой фибриллы, являющейся комплексом ДНК и связанных с ней гистоновых бел-

¹⁾e-mail: yashina_91@inbox.ru

ков. Хотя длина фибриллы получается меньше длины ДНК в десятки раз, т.е. порядка сантиметра, она все же достаточно велика по сравнению с диаметром ядра, который составляет всего несколько микрометров. Для того, чтобы представить себе проблему укладки хроматиновой фибриллы, полезно увеличить все масштабы в миллион раз, тогда ситуация будет аналогична необходимости упаковать около ста километров обычной веревки сантиметровой толщины в грузовик и распаковать веревку из грузовика, не запутав ее [4]. Кроме того, физическая топология хроматина и экспрессия генов тесно связаны: изменение фрактальной размерности структуры хроматина на нанометровом масштабе влияет на активацию транскрипционных генов [5]. Таким образом, фрактальная организация хроматина играет важную роль в экспрессии генов и эпигенетической репрессии.

На сегодняшний день наиболее популярным методом исследования генома является метод захвата конформации хромосом Hi-C [4, 6, 7]. С помощью этого метода было показано, что хроматин делится на два полногеномных компартмента: “открытый” хроматин образует компартмент А, “закрытый” хроматин – компартмент В. Компартмент В плотно упакован, а взаимодействующие гены проявляют большую тенденцию к близкой пространственной локализации, иными словами, гены чаще всего взаимодействуют с соседними генами. В то время как компартмент А упакован менее плотно, а находящиеся в нем гены могут взаимодействовать друг с другом вне зависимости от их близости на нуклеотидной последовательности ДНК. Кроме того, в отличие от компартмента В, в котором упакованы редко считываемые гены, в компартменте А находятся активно транскрибируемые гены, для которых необходима большая доступность для осуществления экспрессии генов и сборок молекулярных машин [6].

Наиболее популярной моделью для описания крупномасштабной упаковки ДНК является модель складчатой (фрактальной) глобулы, предложенная Гроссбергом в конце XX в. [8, 9]. Согласно этой модели нить ДНК, подобно кривой Гильберта (Пеано), полностью заполняет трехмерное пространство без самопересечений, а ее размерность равна $D_F = 3$ [4, 6–11]. Модель складчатой глобулы является хорошим приближением для описания “закрытого” хроматина (компартмента В), массовая доля которого превалирует в ядре. Однако, эта модель не описывает структуру “открытого” хроматина (компартмента А) [6]. С точки зрения малоуглового рассеяния складчатая глобула неотличима от любого другого однородно заполненного объек-

та, воспроизводящего его форму. Следовательно, малоугловое рассеяние на складчатой глобуле должно представлять классический случай рассеяния на нефрактальных трехмерных неоднородностях [12, 13]. В действительности эксперименты по малоугловому рассеянию нейтронов на хроматине уверенно демонстрируют наличие бифрактальной структуры на всех масштабах от нанометров до микрометров [13–19], что не укладывается в модель складчатой глобулы и требует ее доработки. Для описания экспериментальных данных малоуглового рассеяния нейтронов мы предположили, что структура хроматина в компартментах А и В различна, и если компартмент В описывается кривой полностью заполняющей пространство (плотный, неактивный, закрытый хроматин), то компартмент А представляет собой фрактальную систему разномасштабных полостей, связанных сетью транспортной инфраструктуры, в которой функционирует открытый активный хроматин. На малых масштабах система характеризуется объемным фракталом, а на больших – логарифмическим фракталом.

Эксперименты по МУРН (малоугловое рассеяние нейтронов), Ультра МУРН и Спин-Эхо МУРН на разных типах ядер: куриных эритроцитов [13–16], HeLa [13, 17, 18] и крысиных лимфоцитов [19], показали, что наднуклеосомная организация хроматина представляет собой двухуровневую фрактальную структуру. Во всех исследованных ядрах организация хроматина на масштабах от размера ядра до нескольких сотен нанометров имеет структуру логарифмического фрактала, а на меньших масштабах, вплоть до нуклеосомной организации (~ 10 нм) – структуру объемного фрактала.

В отличие от крысиных лимфоцитов и куриных эритроцитов, клеточная линия HeLa обладает высокой транскрипционной активностью. На рисунке 2 представлены результаты экспериментов по малоугловому и ультрамалоугловому рассеянию нейтронов, полученных на ядрах HeLa, проведенных на установках KWS-2 и KWS-3 (MLZ, Германия Гархинг) в диапазоне переданных импульсов $[10^{-3} - 1]$ нм⁻¹. Интенсивность рассеяния нейтронов в диапазоне переданных импульсов $[10^{-3} - 4 \cdot 10^{-2}]$ нм⁻¹ описывается степенной функцией с учетом конечного размера рассеивателя $I(Q) \sim (1 + (Q\xi)^2)^{-\nu/2}$ со степенью $\nu = 3.08 \pm 0.002$ и корреляционной длиной $\xi = 6500 \pm 100$ нм. Интенсивность малоуглового рассеяния нейтронов, соответствующая хроматину в диапазоне переданных импульсов $[4 \cdot 10^{-2} - 7 \cdot 10^{-1}]$ нм⁻¹, описывается степенной функцией $I(Q) \sim Q^{-\nu}$ со степенью $\nu = 2.55 \pm 0.01$. На кривой рассеяния наблюдается

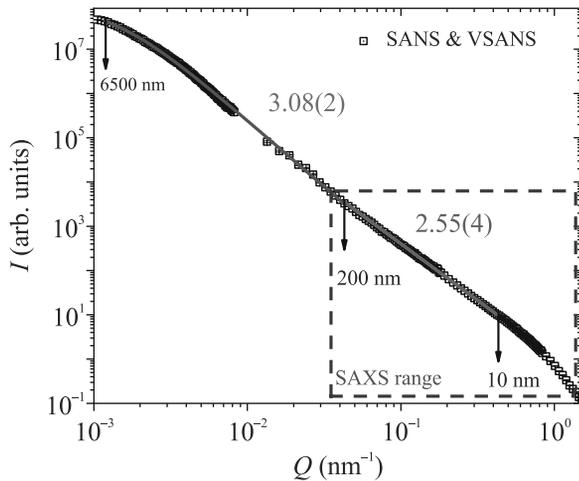


Рис. 2. (Цветной онлайн) Интенсивность малоуглового рассеяния нейтронов на ядрах HeLa, помещенных в тяжелую воду, измеренная на установках KWS-2 и KWS-3 (MLZ, Германия, Гархинг). Выделенная пунктиром область соответствует диапазону переданных импульсов, доступному в эксперименте по малоугловому рассеянию рентгеновского излучения

четкая точка перегиба между двумя фрактальными уровнями, соответствующая $Q = 4 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$. Мелкомасштабный фрактальный уровень организации хроматина описывается моделью объемного фрактала, в то время как крупномасштабный фрактальный уровень описывается моделью логарифмического фрактала.

Для того, чтобы определить связь транскрипционной активности клетки с изменением структуры хроматина были исследованы три образца ядер HeLa на установке малоуглового рассеяния рентгеновского (МУРР) излучения XEUSS 3.0 (ОИЯИ, Россия, Дубна). Контрольный образец ядер, на котором проводились эксперименты по МУРН, был получен при выделении ядер из клеток, культивированных в нормальных условиях, которые проявляли типичную для этих клеток транскрипционную активность. Второй образец был получен при выделении ядер из клеток, культивированных в условиях дефицита питательной среды, за счет чего транскрипционная активность клеток была занижена из-за отсутствия “строительного материала” для осуществления транскрипции. Третий образец ядер был получен при выделении ядер из клеток, культивированных с добавлением ингибитора транскрипции Актиномицина Д, за счет чего транскрипционная активность клеток была подавлена. Получение всех трех образцов проводили по одной схеме, подробно описанной в работах [17, 18].

Измеренная прежде кривая малоуглового рассеяния нейтронов на контрольном образце в тяжелой воде (рис. 2) совпадает с кривой рассеяния рентгеновского излучения (рис. 3) в диапазоне переданных им-

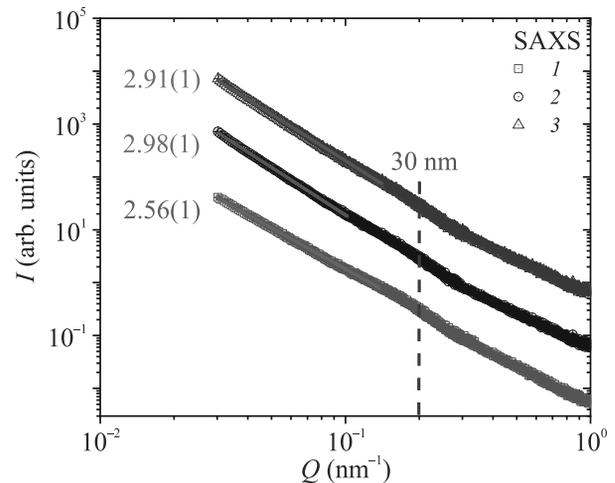


Рис. 3. (Цветной онлайн) 1 – (красные открытые квадраты) – Интенсивность малоуглового рассеяния рентгеновского излучения для референсных ядер HeLa, помещенных в тяжелую воду. 2 – (черные открытые круги) – Интенсивность малоуглового рассеяния рентгеновского излучения для ядер HeLa, культивированных в условиях дефицита питательной среды, помещенных в тяжелую воду. 3 (синие открытые треугольники) – Интенсивность малоуглового рассеяния рентгеновского излучения для референсных ядер HeLa, культивированных с добавлением ингибитора транскрипции Актиномицином Д, помещенных в тяжелую воду

пульсов $[3 \cdot 10^{-2} - 1] \text{ nm}^{-1}$. В этой области переданных импульсов наблюдается структура объемного фрактала $\nu = 2.56 \pm 0.01$. Точка перегиба и перехода в крупномасштабный фрактальный уровень из рентгеновских данных невозможно определить, поскольку она находится на границе разрешающей способности прибора. Однако, из нейтронных данных она определена и равна $Q_c = 0.04 \text{ nm}^{-1}$. С другой стороны, кривые рассеяния на образцах с подавленной транскрипционной активностью демонстрируют закон рассеяния близкий к кубическому, что соответствует структуре логарифмического фрактала в трехмерном пространстве. Как показано на рис. 3, для образца ядер клеток, культивированных в условиях дефицита питательной среды наблюдается степенной закон рассеяния с показателем $\nu = 2.98 \pm 0.01$ в диапазоне переданных импульсов $[3 \cdot 10^{-2} - 10^{-1}] \text{ nm}^{-1}$, а для образца ядер клеток, культивированных с добавлением ингибитора транскрипции Актиномицина Д (рис. 3) наблюдается степенной закон рассеяния с показате-

лем $\nu = 2.91 \pm 0.01$ в диапазоне переданных импульсов $[3 \cdot 10^{-2} - 1.5 \cdot 10^{-1}] \text{ нм}^{-1}$. Таким образом, можно сделать вывод о том, что наличие структуры объемного фрактала на масштабе $[3 \cdot 10^{-2} - 10^{-1}] \text{ нм}^{-1}$ связано с транскрипционной активностью клетки, а структура логарифмического фрактала связана с ее отсутствием.

В классификации малоуглового рассеяния на фрактальных объектах [12] модель логарифмического фрактала описывает иерархическую структуру, которая характеризуется логарифмической мерой и формируется согласно принципу сохранения объема при изменении масштаба. Экспериментально структура логарифмического фрактала наблюдается как кубический закон в интенсивности малоуглового рассеяния в зависимости от модуля переданного импульса. На рисунке 4 показан принцип построения этого

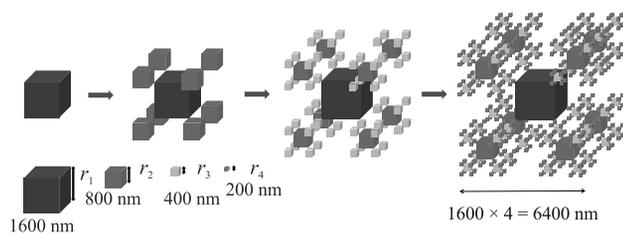


Рис. 4. (Цветной онлайн) Построение первых 4 поколений логарифмического фрактала, основанного на принципе сохранения объема при масштабировании

фрактала до четвертой итерации: к вершинам куба объемом V добавляются 8 одинаковых кубов поменьше объемом V_1 , а сумма их объемов равна объему исходного куба $\sum V_1 = V$; на следующей итерации к вершинам каждого из добавленных в предыдущей итерации куба добавляются еще по 8 кубов поменьше объемом V_2 , а сумма их объемов равна сумме объемов кубов, добавленных на предыдущей итерации, а также объему исходного куба $\sum V_2 = \sum V_1 = V$ и т.д. В ядрах некоторых клеток число итераций доходит до 4 или 5.

В отличие от модели логарифмического фрактала, модель объемного фрактала соответствует однородной самоподобной классической фрактальной структуре, характеризующейся хаусдорфовой размерностью D_F [20, 21] и наблюдается в эксперименте, как убывающая степенная зависимость интенсивности малоуглового рассеяния от вектора рассеяния с показателем $2 < \nu < 3$ ($\nu = D_F$).

В качестве модели для описания объемнофрактальной структуры, наблюдаемой в малоугловом рассеянии, можно выбрать кривую Коха (рис. 5а). Процесс построения классической кривой Коха заключается следующем: берется единичный отрезок,

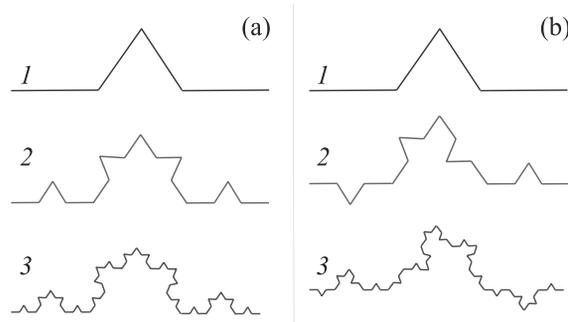


Рис. 5. (Цветной онлайн) Построение первых 3 поколений фрактала Снежинка Коха: (а) – геометрически регулярного фрактала Снежинка Коха; (б) – стохастического фрактала Снежинка Коха со случайной ориентацией сторон треугольника, на которые заменяется средний сегмент отрезка

разделяется на три равные части и средний сегмент заменяется двумя сторонами равностороннего треугольника длины $1/3$. В результате образуется ломаная, состоящая из четырех звеньев длины $1/3$. На следующем шаге повторяем операцию для каждого из четырех получившихся звеньев (рис. 5а) и т.д. . . Если в процесс замены среднего сегмента на две стороны треугольника добавить фактор случайности, то кривая Коха приобретет менее регулярный стохастический вид, однако, сохранит свои фрактальные свойства [22] (рис. 5б).

Гипотеза о механизме формирования бифрактальной структуры активного хроматина заключается в следующем: структура логарифмического фрактала образуется из пустот, которые формируют незаполненное хроматином пространство, потенциально необходимое для транспорта веществ внутри ядра и транскрипционной активности клетки. Далее, когда начинается транскрипция, ДНК выпетливается в пустоты логарифмического фрактала или вблизи его границ, образуя объемнофрактальную структуру вследствие суперскрученности ДНК, что в свою очередь облегчает диффузию веществ и, как следствие, сборку молекулярных машин и белково-нуклеиновых комплексов. Таким образом, структура логарифмического фрактала обеспечивает равномерное рассредоточение пустот на разных масштабах, потенциально необходимое для осуществления транскрипции и транспорта веществ внутри ядра, в то время как структура объемного фрактала является следствием транскрипционной активности клетки. Сосуществование в ядре вышеописанных структур схематично изображено на рис. 6.

Построенная таким образом бифрактальная конструкция является еще одним шагом на пути созда-

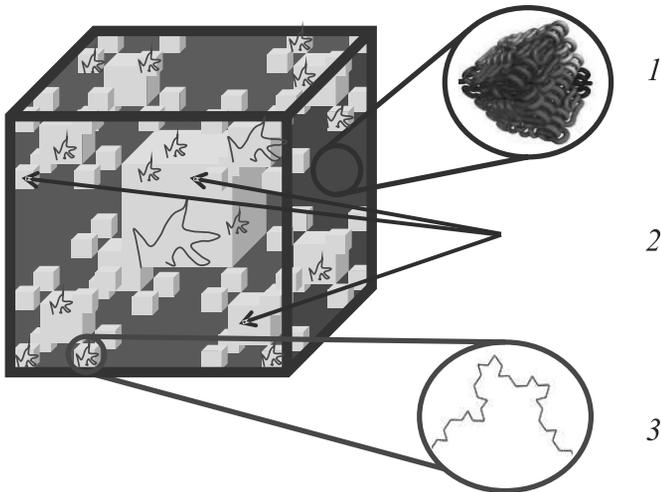


Рис. 6. (Цветной онлайн) Пространственная модель организации хроматина, согласно которой внутри плотнозапакованного транскрипционно-неактивного (“закрытого”) хроматина – 1, упакованного по принципу трехмерной кривой Пеано, находится система полостей – 2, формирующая структуру транспортных каналов по принципу логарифмического фрактала, а транскрипционно-активный (“открытый”) хроматин – 3 образует объемнофрактальные структуры внутри транспортных каналов или вблизи их границ

ния модели организации хроматина в ядре биологической клетки. Отметим, что структура логарифмического фрактала является универсальной для большинства типов ядер и образуется из системы полостей, которые формируют систему транспортных каналов, необходимую для метаболизма и инфраструктуры внутри ядра, а также формирует собой пространство, потенциально необходимое для осуществления биологических функций ДНК, таких как транскрипция. Эта система полостей-каналов логарифмического фрактала находится внутри плотнозапакованной ДНК по принципу фрактальной глобулы и заполнена активным хроматином. Необходимость существования в ядре системы каналов была высказана в работе [23]. Предполагалось, что ядерный матрикс представляет собой систему каналов, по которым осуществляется транспорт мРНК из ядра в цитоплазму и транспорт различных цитоплазматических продуктов к местам их утилизации в ядре. Наличие транспортных каналов в хроматине для облегченной диффузии РНК, белков и других клеточных компонентов была теоретически обоснована в работе [24]. В работах [25, 26, 27] были получены свидетельства того, что новосинтезированная РНК не просто диффундирует от места ее синтеза во всех возможных направлениях, но следует по определенным путям (каналам).

Таким образом, наблюдаемая в экспериментах по малоугловому рассеянию нейтронов и рентгеновского излучения, структура логарифмического фрактала обеспечивает равномерное по всему пространству ядра рассредоточение полостей на разных масштабах, потенциально необходимых для обеспечения быстрого и эффективного транспорта и возможности осуществления биологической функции в любом месте ядра. Как показано выше, транскрипционная активность хроматина скоррелирована и, возможно, определяет появление, размер и размерность объемного фрактала.

В заключение, стоит отметить, что структура логарифмического фрактала представляет собой незаполненную хроматином систему полостей, необходимую для метаболизма и инфраструктуры внутри ядра, а также формирует собой пространство, потенциально необходимое для осуществления биологических функций ДНК, таких как транскрипция. Предположительно, такая транспортная система каналов заполнена нуклеоплазмой и сформирована гидродинамическими силами, возникающими из-за разности токов на границе раздела фаз.

Далее, когда и если начинается транскрипционная активность, ДНК выпетливается в пустоты логарифмического фрактала и там начинается сборка молекулярных машин и белково-нуклеиновых комплексов, и тем самым, в пустотах логарифмического фрактала активный хроматин образует структуру объемного фрактала, в котором происходит облегченная диффузия для осуществления транскрипции. Предположительно, возникновение объемнофрактальных структур является следствием механизмов суперскрученности ДНК, которая появляется в следствии транскрипции [28]. Транскрипционно активный хроматин демонстрирует большую физическую жесткость, по сравнению с неактивным хроматином, являясь при этом менее плотным [29]. Также, принимая во внимание, что хроматин не является статичным, т. е. в нем постоянно происходит та или иная динамика, логично предположить, что наиболее часто считываемые гены локализуются либо внутри полостей-каналов логарифмического фрактала, либо вблизи его границы в запакованном состоянии внутри фрактальной глобулы. Структура каналов-полостей логарифмического фрактала является местом локализации активного хроматина. В работе [13, 17] было показано, что структура логарифмического фрактала обладает очень разветвленной поверхностью и, как следствие, большой площадью поверхности. В связи с этим, в плотнозапакованном хроматине вблизи поверхности полостей-каналов мо-

жет локализоваться большое количество генов, которые способны быстро распаковаться в пространство полости логарифмического фрактала. Таким образом, структура логарифмического фрактала обеспечивает равномерное рассредоточение пустот-каналов на разных масштабах, потенциально необходимых для обеспечения транспортной инфраструктуры ядра и пространства для биологической активности ДНК, в то время как структура объемного фрактала является следствием транскрипционной активности клетки.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 20-12-00188).

Авторы выражают благодарность нейтронному центру MLZ за предоставление пучкового времени на установках KWS-2 и KWS-3, и А. Радulesку (A. Radulescu) и В. Пипича (V. Pipich) за помощь в проведении эксперимента. Также авторы благодарны Объединенному институту ядерных исследований за предоставление пучкового времени на малоугловой установке рентгеновского излучения XEUSS 3.0, и Ю. Горшковой и Г. Копице за помощь в проведении эксперимента.

1. Ya. Joti, T. Hikima, Y. Nishino, F. Kamada, S. Hihara, H. Takata, T. Ishikawa, and K. Maeshima, *Nucleus* **3**, 404 (2012).
2. Y. Takizawa and H. Kurumizaka, *Biochimica et Biophysica Acta (BBA)-Gene Regulatory Mechanisms* **1865**, 194851 (2022).
3. K. Maeshima, S. Ide, and M. Babokhov, *Curr. Opin. Cell Biol.* **58**, 95 (2019).
4. J.D. Halverson, J. Smrek, K. Kremer, and A.Y. Grosberg, *Rep. Prog. Phys.* **77**(2), 022601 (2014).
5. L.M. Almossalha, A. Tiwari, P.T. Ruhoff, Y. Stypula-Cyrus, L. Cherkezyan, H. Matsuda, M.A. Dela Cruz, J.E. Chandler, C. White, C. Maneval, H. Subramanian, I. Szleifer, H.K. Roy, and V. Backman, *Sci. Rep.* **7**, 41061 (2017).
6. E. Lieberman-Aiden, N.L. Van Berkum, L. Williams et al. (Collaboration), *Science* **326**(5950), 289 (2009).
7. L.A. Mirny, *Chromosome research* **19**, 37 (2011).
8. A.Y. Grosberg, S.K. Nechaev, and E.I. Shakhnovich, *Journal de physique* **49**(12), 2095 (1988).
9. A. Grosberg, Y. Rabin, S. Havlin, and A. Neer, *Europhysics Letters* **23**(5), 373 (1993).
10. J.D. Halverson, W.B. Lee, G.S. Grest, A.Y. Grosberg, and K. Kremer, *J. Chem. Phys.* **134**(20), 204904 (2011).
11. M.V. Imakaev, K.M. Tchourine, S.K. Nechaev, and L.A. Mirny, *Soft matter* **11**(4), 665 (2015).
12. Е. Г. Яшина, С. В. Григорьев, *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования* **9**, 5 (2017).
13. Е. Г. Яшина, С. В. Григорьев, *ЖЭТФ* **156**(3), 540 (2019).
14. D.V. Lebedev, M.V. Filatov, A.I. Kuklin, A.K. Islamov, E. Kentzinger, R. Pantina, B.P. Toperverg, and V.V. Isaev-Ivanov, *FEBS Lett.* **579**(6), 1465 (2005).
15. E.G. Iashina, E.V. Velichko, M.V. Filatov, W.G. Bouwman, C.P. Duif, A. Brulet, and S.V. Grigoriev, *Phys. Rev. E* **96**(1), 012411 (2017).
16. S.V. Grigoriev, E.G. Iashina, V.Yu. Bairamukov, V. Pipich, A. Radulescu, M.V. Filatov, R.A. Pantina, and E.Yu. Varfolomeeva, *Phys. Rev. E* **102**, 032415 (2020).
17. E.G. Iashina, M.V. Filatov, R.A. Pantina, E.Yu. Varfolomeeva, W.G. Bouwman, Ch.P. Duif, D. Honecker, V. Pipich, and S.V. Grigoriev, *J. Appl. Cryst.* **52**, 844 (2019).
18. S.V. Grigoriev, E.G. Iashina, B. Wu, V. Pipich, Ch. Lang, A. Radulescu, V.Yu. Bairamukov, M.V. Filatov, R.A. Pantina, and E.Yu. Varfolomeeva, *Phys. Rev. E* **104**, 044404 (2021).
19. E.G. Iashina, E.Yu. Varfolomeeva, R.A. Pantina, V.Yu. Bairamukov, R.A. Kovalev, N.D. Fedorova, V. Pipich, A. Radulescu, and S.V. Grigoriev, *Phys. Rev. E* **104**, 064409 (2021).
20. B. Mandelbrot, *The Fractal Geometry of Nature*, Freeman, N.Y. (1983).
21. J. Feder, *Fractals*, Plenum, N.Y. (1998).
22. A.V. Ilatovskiy, D.V. Lebedev, M.V. Filatov, M.G. Petukhov, and V.V. Isaev-Ivanov, *J. Phys.: Conf. Ser.* **351**(1), 012007 (2012).
23. S.V. Razin and I.I. Gromova, *BioEssays* **17**(5), 443 (1995).
24. T. Cremer, M. Cremer, B. Hubner, A. Silahtaroglu, M. Hendzel, C. Lanctôt, and H. Strickfaden, *BioEssays* **42**(2), 1900132 (2020).
25. Y. Xing, C.V. Johnson, P.R. Dobner, and J.B. Lawrence, *Science* **259**(5099), 1326 (1993).
26. M. Mazzocca, T. Fillot, A. Loffreda, D. Gnani, and D. Mazza, *Biochem. Soc. Trans.* **49**(3), 1121 (2021).
27. M. Mazzocca, E. Colombo, A. Callegari, and D. Mazza, *Current Opinion in Structural Biology* **71**, 239 (2021).
28. P. Chatterjee, N. Goldenfeld, and S. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **127**(2)1, 218101 (2021).
29. V.Yu. Bairamukov, M.V. Filatov, R.A. Kovalev, N.D. Fedorova, R.A. Pantina, A.V. Ankudinov, E.G. Iashina, S.V. Grigoriev, and E.Yu. Varfolomeeva, *Biochim. Biophys. Acta Gen. Subj.* **1866**(12), 130234 (2022).

Содержание

Том 118, выпуск 9

Поля, частицы, ядра

- Горин А.М., Евдокимов С.В., Зайцев А.А., Изучеев В.И., Полищук Б.В., Романишин К.А., Рыкалин В.И., Садовский С.А., Харлов Ю.В., Шангараев А.А. Поиск резонансов в спектре масс двухфотонных событий, образующихся в π^+ - A -взаимодействиях, в эксперименте Гиперон-М на ускорительном комплексе У-70 629

Оптика, лазерная физика

- Astafiev A.A., Shakhov A.M., Nadtochenko V.A. Size-dependent one- and two-photon fluorescence of acetonitrile-derived carbon dots 637

- Бабунц Р.А., Успенская Ю.А., Бундакова А.П., Мамин Г.В., Мохов Е.Н., Баранов П.Г. Идентификация оптически активных квартетных спиновых центров на основе вакансии кремния в SiC, перспективных для квантовых технологий 639

- Гаврилов С.С., Ипатов Н.Н., Кулаковский В.Д. Спиновый хаос экситонных поляритонов в магнитном поле 649

Конденсированное состояние

- Лакунов И.С., Егоров С.В., Муханова Е.Д., Батов И.Е., Голикова Т.Е., Рязанов В.В. Неравновесные явления в планарных мезоскопических джозефсоновских SNS структурах на основе сверхпроводящего Nb 656

- Мазанникова М.А., Коротин Дм.М., Анисимов В.И., Оганов А.Р., Новоселов Д.Ю. Эволюция электронной структуры и транспортных свойств Ca_2N при изменении размерности электронного подпространства под давлением 664

- Галактионов А.В., Заикин А.Д. Джозефсоновская динамика при высоких прозрачностях: пределы заданного тока и заданного напряжения 671

- Морозова М.А., Матвеев О.В., Птащенко А.С., Садовников А.В., Никитов С.А. Особенности брэгговских резонансов в магнетном кристалле с двумя периодами 677

- Устюжанина С.В., Кистанов А.А. Первопринципные исследования адсорбции Li и Na на поверхности монослоя MgCl_2 683

- Гобелко И.Е., Рожков А.В., Дресвянкин Д.Н. Переход металл-диэлектрик и другие электронные свойства двухслойного AB-графена на ферромагнитной подложке 689

- Таланов М.В., Жукова Е.С., Некрасов Б.М., Савинов М., Козлов В.И., Горшунов Б.П., Буш А.А. Природа диэлектрической релаксации в монокристаллах $\text{SrTiO}_3:\text{Mn}$ 697

Pavlov N.S., Shein I.R., Pervakov K.S., Pudalov V.M., Nekrasov I.A. Anatomy of the band structure of the newest apparent near-ambient superconductor $\text{LuH}_{3-x}\text{N}_x$	707
--	-----

Содержание
Том 118, выпуск 10
Поля, частицы, ядра

Belavin A., Eremin B., Parkhomenko S. Review on special geometry and mirror symmetry for Calabi–Yau manifolds (Mini-review) 711

Мельников А.А., Сеничев Ю.В., Аксентьев А.Е., Колокольчиков С.Д. Природа спиновой декогеренции поляризованного пучка легких ядер в накопительном кольце для поиска ЭДМ 713

Arsenyev N.N., Severyukhin A.P., Nazmitdinov R.G. Spreading widths of giant monopole resonance in the lead region: Random matrix approach 721

Abdulov N.A., Chen X., Kotikov A.V., Lipatov A.V. Linearly polarized gluon density in the rescaling model 723

Плазма, гидро- и газодинамика

Бахарева О.А., Сергеев В.Ю., Шаров И.А. Влияние облака вторичной плазмы на испарение макрочастиц в установках с магнитным удержанием 725

Конденсированное состояние

Pchelkina Z.V., Komleva E.V., Irkhin V.Yu., Long Y., Streltsov S.V. Rattling phonon modes in quadruple perovskites 733

Гаврилюк А.Г., Троян И.А., Стружкин В.В., Трунов Д.Н., Аксенов С.Н., Миронович А.А., Иванова А.Г., Любутин И.С. Синтез и сверхпроводящие свойства некоторых фаз полигидридов железа при высоких давлениях 735

Катков В.Л., Осипов В.А. Температурная зависимость запрещенной зоны полностью фторированных/гидрированных углеродных нанотрубок: роль одномерных цепочек 748

Суровцев Е.В. Возбуждение джозефсоновских токов колебаниями аэрогеля в сверхтекучем ^3He 754

Ионин А.С., Карелина Л.Н., Шуравин Н.С., Сидельников М.С., Разоренов Ф.А., Егоров С.В., Больгинов В.В. Экспериментальное исследование передаточной функции прототипа сверхпроводящего гаусс-нейрона 761

Водолазов Д.Ю. Сенсор на нелинейной кинетической индуктивности 769

Биофизика

Яшина Е.Г., Варфоломеева Е.Ю., Пантина Р.А., Байрамуков В.Ю., Ковалев Р.А., Федорова Н.Д., Пшеничный К.А., Горшкова Ю.Е., Григорьев С.В. Пространственная модель организации хроматина в ядре биологической клетки по данным малоуглового рассеяния 776