



Письма

в

ЖУРНАЛ

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ

и

ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ

ФИЗИКИ



НАУКА

— 1727 —

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 119

Выпуск 11

10 июня 2024

*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.ru>

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

© Российская академия наук, 2024

© Редколлегия журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2024

Проверка модели “бегущей аксиальной массы” на данных по рассеянию мюонных нейтрино на ядрах в ближнем детекторе NOvA

И. Д. Какорин^{*1)}, В. А. Наумов^{*1)}, О. Б. Самойлов^{+*1)}

^{*}Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

⁺Институт ядерных исследований РАН, 117312 Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 апреля 2024 г.

После переработки 23 апреля 2024 г.

Принята к публикации 25 апреля 2024 г.

Феноменологическая модель с “бегущей аксиальной массой” (MAgun) была ранее предложена для расчета сечений квазиупругих взаимодействий нейтрино и антинейтрино с ядрами. Ее особенностью является простота имплементации в нейтринных генераторах, а значения всего лишь двух ее свободных параметров были получены из глобального фита экспериментальных данных по полным и дифференциальным сечениям квазиупругих взаимодействий (анти)нейтрино с различными ядерными мишенями. В данной статье представлено сравнение полного и дифференциальных сечений рассеяния мюонных нейтрино, измеренных в ближнем детекторе эксперимента NOvA с результатами симулирования, выполненного с помощью монте-карловского генератора нейтринных событий GENIE v.3.4.0, в котором предусмотрена возможность использования модели MAgun как одной из опций.

DOI: 10.31857/S1234567824110016, EDN: ZHIGKW

Введение. Детальное экспериментальное и теоретическое изучение сечений взаимодействия нейтрино с ядрами в широкой кинематической области необходимо для проверки Стандартной Модели (СМ) и инспирированной ею феноменологии, для многочисленных астрофизических приложений, а также для обработки и интерпретации экспериментов, изучающих свойства нейтрино за пределами СМ, в частности, экспериментов по нейтринным осцилляциям.

В современных ускорительных экспериментах с длинной базой и двумя детекторами – ближним и дальним (как, например, в NOvA [1] и T2K [2]) практикуется тонкая настройка модели взаимодействия на данные измерений ближнего детектора. Такая настройка, безусловно, необходима, но все же не позволяет полностью устранить неопределенности модели при ее экстраполяции на дальний детектор, в который нейтрино приходят лишь из малого телесного угла вблизи оси пучка и, следовательно, работающий с энергетическим спектром нейтрино, искаженным по сравнению со спектром в ближнем детекторе, даже если детекторы расположены соосно.

При совместном анализе нескольких экспериментов, индивидуальные настройки моделей взаимодействия тем более не работают по очевидным причинам. С другой стороны, планируемые экспери-

менты следующего поколения, такие как DUNE [3], T2HK [4], T2HKK [5], P2O [6], потребуют качественно, в разы увеличить точность расчета сечений. Современное состояние теории пока этого не позволяет. Поэтому на данном этапе для совместного анализа осцилляционных экспериментов представляется необходимым применение имеющихся универсальных (микроскопических и феноменологических) моделей, проверенных или отфитированных на возможно большем наборе данных независимых ускорительных экспериментов с разными мишенями в широком диапазоне энергий.

В работе проводится сравнение одной из таких феноменологических моделей [7–9], развитой для описания квазиупругого рассеяния нейтрино и антинейтрино на ядрах и имплементированной в монте-карловский генератор нейтринных событий GENIE [10], с недавно опубликованными результатами измерений взаимодействий мюонных нейтрино заряженным током в ближнем детекторе NOvA [1].

Данные эксперимента NOvA представлены в виде усредненных по спектру нейтрино инклюзивных сечений: двойного дифференциального $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$, дифференциального $d\sigma/dQ^2$, а также отношения полного сечения, $\sigma(E_\nu)$, к энергии нейтрино E_ν ; здесь T_μ – кинетическая энергия мюона, θ_μ – угол его вылета относительно направления импульса нейтрино и Q^2 – модуль квадрата 4-импульса переданного от нейтрино к мюону.

¹⁾e-mail: kakorin@jinr.ru; vnaumov@theor.jinr.ru; samoylov@jinr.ru

В расчете сечений необходимо аккуратно учесть элементный состав детектора и энергетический спектр пучка ν_μ . Поскольку этот спектр сравнительно широк, события в детекторе генерируются при взаимодействиях многих типов – от квазиупругого до глубоко неупругого. Все они, как и вторичные взаимодействия с ядром адронов, рождающихся в неупругих столкновениях, моделируются с помощью генератора GENIE v.3.4.0, без какой-либо настройки на данные NOvA. Также обсуждается сравнение с предсказаниями нескольких других популярных моделей.

1. Характеристики детектора и пучка NOvA. Ближний детектор (ND) является трековым калориметром с размерами $4 \times 4 \times 16$ м и активной массой 193 т, состоящим из вертикально и горизонтально ориентированных прямоугольных поливинилхлоридных ячеек с шириной 3.9 см, длиной 3.9 м и глубиной 6.6 см в направлении пучка, заполненных жидким сцинтиллятором – смесью из 95 % минерального масла и 5 % 1, 2, 4-триметилбензола с добавлением флуоресцентных светосмещающих добавок. В результате рабочий объем ND в массовых долях состоит из 67 % углерода, 16 % хлора, 11 % водорода, 3 % титана, 3 % кислорода и менее 1 % других элементов.

Укорительный комплекс NuMI (Neutrinos at Main Injector) лаборатории Ферми (США) в так называемой “нейтринной конфигурации” обеспечивает поток ν_μ с примесью 1.8 % $\bar{\nu}_\mu$ и 0.7 % $\nu_e + \bar{\nu}_e$ при $E_\nu = 1\text{--}5$ ГэВ. Нейтрино и антинейтрино рождаются в 650-метровом распадном канале из распадов пионов, каонов и вторичных мюонов. Пионы и каоны рождаются при столкновениях протонов с энергией 120 ГэВ из Главного Инжектора (протонного синхротрона) с графитовой мишенью и фокусируются парой магнитных горнов. Ближний детектор расположен под углом 14.6 мрад к направлению центральной оси пучка нейтрино. Спектр ν_μ имеет характерный узкий “пионный” пик при энергии $E_\nu \simeq 1.8$ ГэВ и широкий “каонный” пик при $E_\nu \simeq 12$ ГэВ. При $E_\nu = 20$ ГэВ интенсивность ν_μ уменьшается почти в 420 раз по сравнению с максимальным значением.

2. Моделирование. В генераторе GENIE v.3.4.0 столкновения (анти)нейтрино с ядрами разыгрываются независимо для каждого из каналов (квазиупругого, резонансного, глубоко неупругого, и т.д.) с использованием специализированных моделей и учетом их относительного вклада в суммарное число событий. Как правило, для каждого типа процессов в генераторе предусмотрено несколько взаимозаменяемых моделей, из которых строятся комплексные кон-

фигурации, так называемые СМС (Comprehensive Model Configurations).

Для симуляции квазиупругих событий мы использовали модель релятивистского Ферми-газа (РФГ) Смита–Моница [11] (с небольшим видоизменением [12] и уточненными значениями параметров РФГ – импульсов Ферми и энергий связи) с опцией “MARunAxialFormFactorModel”, подключающей эмпирическую модель с бегущей аксиальной массой (MARun). Данная модель была предложена для расчета сечений квазиупругих (CCQE) [7, 8] и квазиупруго-подобных (CCQE-like) [9] взаимодействий нейтрино и антинейтрино с ядрами, индуцированных заряженным током. Для этого в стандартной дипольной параметризации аксиального форм-фактора, $F_A(Q^2) = F_A(0)/(1 + Q^2/M_A^2)^2$, вместо постоянного параметра, – токовой аксиальной массы нуклона, M_A , предложено использовать зависящую от энергии нейтрино, “бегущую” аксиальную массу, которая в лаб. системе может быть параметризована простой зависимостью $M_A^{\text{run}} = M_0(1 + E_0/E_\nu)$. Здесь энергия E_ν , трактуется как лоренц-инвариант, $E_\nu = (s - M^2)/2M$, где M – масса нуклона, s – переменная Мандельштама, а универсальные (не зависящие от ядра-мишени) константы M_0 и E_0 находятся из глобального фита имеющимся (на 2013 г.) ускорительных данных по CCQE и CCQE-like взаимодействиям (анти)нейтрино с ядрами, включая прецизионные результаты экспериментов NOMAD [13] (полные сечения) и MiniBooNE [14, 15] (дважды дифференциальные сечения).

Найденные в [8, 9] значения параметров равны $M_0 = 1.008 \pm 0.025$ ГэВ, $E_0 = 331_{-54}^{+57}$ МэВ. Постоянную M_0 можно интерпретировать как токовую аксиальную массу, так как при высоких энергиях ($E_\nu \gg E_0$) с хорошей точностью можно пренебречь эффектами РФГ и считать, что рассеяние происходит на свободном нуклоне. Значение M_0 , действительно, согласуется в пределах ошибок с величиной $M_A^D = 1.003 \pm 0.083$ ГэВ, полученной из анализа данных на дейтериевых мишенях, в котором учитывались эффекты обменных мезонных токов (ОМТ) в приближении однопионного обмена в статическом пределе. Оно также согласуется с результатами предыдущих глобальных анализов [7, 12]. Кроме того, модель MARun вполне удовлетворительно описывает большой массив не вошедших в фит данных экспериментов T2K ND280 [16, 17] и MINERvA [18, 19] и MiniBooNE [14, 15, 20], где эффекты ОМТ эмпирически учитываются зависимостью M_A^{run} от энергии. Разумеется, модель не может претендовать на детальное описание данных в кинематических областях, в

которых вклад ОМТ доминирует (например, в данных по эксклюзивным и полуинклюзивным реакциям с регистрацией пары конечных нуклонов).

Для расчета нейтринорождения пионов использовалась модифицированная к особенностям генератора GENIE, “расширенная” модель Рейна–Сегал (РС) [21] – так называемая модель КЛН-БС (аббревиатура из начальных букв фамилий ее авторов [22, 23]). В этой модели была учтена поляризация и масса конечного заряженного лептона [22], а так же вклад пионного полюса в адронный аксиальный ток [23]. По ряду причин в текущей версии GENIE (как и в более ранних версиях) учтены не все аспекты КЛН-БС-модели. Наиболее важные модификации (часто это вынужденные упрощения) заключаются в следующем.

- Не учитывается интерференция между резонансами с одинаковыми спинами и орбитальными угловыми моментами конечного $N\pi$ состояния, что позволяет сравнительно просто включить в моделирование множественное рождение пионов и других легких мезонов. Учет этих процессов необходим для корректного описания нейтринных взаимодействий в кинематической области промежуточной между резонансной и глубоко неупругой.
- Нерезонансный механизм рождения пионов, используемый в моделях РС и КЛН-БС, заменен в GENIE более универсальным полуэмпирическим механизмом шивки в вышеупомянутой промежуточной кинематической области.
- Во избежание “двойного счета”, отрезаны нефизические “хвосты” резонансов в области их пересечения.

В данном расчете была сделана еще два существенных изменения.

- Для брейт-вигнеровских функций, аппроксимирующих форму резонансов не используется введенная в [21] перенормировка. Детальная аргументация в пользу такого упрощения изложена в работе [24].
- Для важного параметра модели, так называемой “резонансной” аксиальной массы, M_A^{RES} , мы использовали значение 1.18 ± 0.07 ГэВ, найденное из глобального фита данных по нейтринорождению одиночных пионов, полученных в экспериментах АНЛ, БНЛ, ФНАЛ и ЦЕРН с дейтериевыми и водородными пузырьковыми камерами [24]. Основными причинами отличия нового значения M_A^{RES} от используемого

в GENIE и в ряде других нейтринных генераторов значения “по умолчанию” 1.12 ± 0.06 ГэВ, полученного в предыдущем глобальном анализе [25] (включающем также данные на ядрах тяжелее дейтерия), являются усовершенствование процедуры фитирования, учет современных данных по параметрам нуклонных и барионных резонансов (масс, полных и парциальных ширин) [26], корректировка части данных АНЛ и БНЛ [27], а так же совместное фитирование M_A^{RES} и параметра f_{NRB} , задающего общий масштаб для нерезонансного нейтринорождения одиночных пионов.

Для генерации событий от остальных вкладов (глубоко неупругого, когерентного, дифракционного и т.д.) использовались те же модели, что и в наборе настроек модели GENIE CMC G18_10a [10].

3. Сравнение экспериментальных данных с результатами Монте-Карло симуляции. В расчетах мы использовали элементный состав мишени NOvA ND, обсуждавшийся выше, и энергетический спектр ν_μ с $E_\nu < 20$ ГэВ из [1], но с более детальным биннингом. Приведенные ниже двойные и одинарные дифференциальные сечения следует понимать как инклюзивные сечения, усредненные по энергетическому спектру. На рисунке 1 представлено сравнение измеренного дважды дифференциального инклюзивного сечения, $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$, с результатами Монте-Карло симулирования, выполненного в модели с “бегущей аксиальной массой”.

На рисунке 2 показаны аналогичные сравнения для дифференциального сечения $d\sigma/dQ^2$ и отношения полного сечения $\sigma(E_\nu)$ к энергии нейтрино. Гистограммы с разным типом штриховки показывают вклады трех основных процессов в инклюзивные сечения: квазиупругий (включая квазиупруго-подобный), резонансное рождение одиночных пионов и глубоко неупругий. Суммарное сечение включает эти и все остальные, относительно небольшие вклады, такие как множественное рождение легких мезонов, когерентное и дифракционное взаимодействия, рождение чарма. Эти вклады наиболее заметны при малых углах, $\cos\theta_\mu \gtrsim 0.98$. Для всех типов взаимодействий учитываются эффекты внутриядерного каскадирования и взаимодействия в конечном состоянии, включенные в GENIE v.3.4.0.

Результат симулирования хорошо описывает данные, представленные на рис. 1 при $0.50 < \cos\theta_\mu < 0.91$. Вне этой области модель систематически недооценивает данные: для бинов с $0.91 < \cos\theta_\mu < 0.99$ при сравнительно больших кинетических энергиях

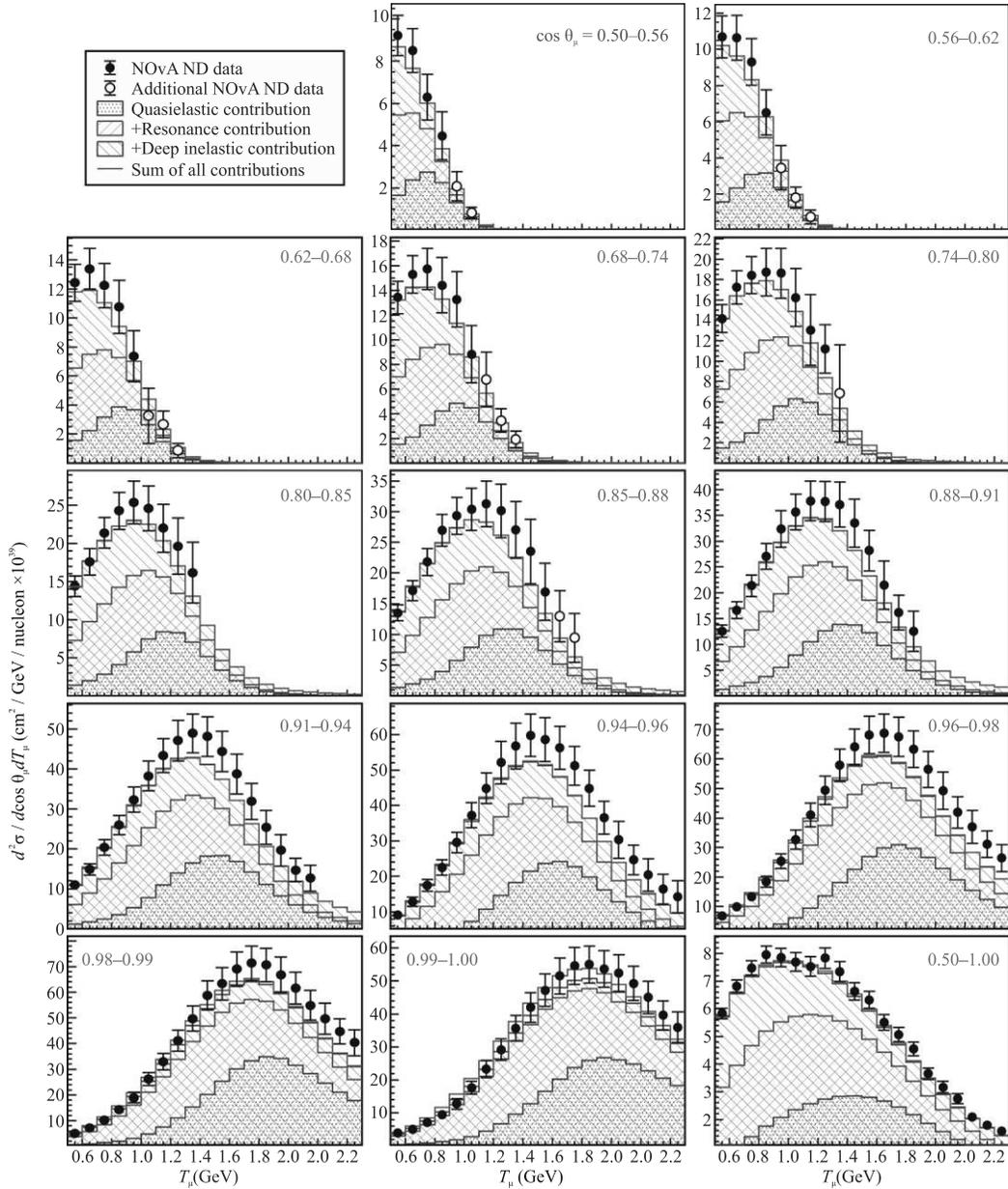


Рис. 1. (Цветной онлайн) Сравнение двойного дифференциального инклюзивного сечения рассеяния ν_μ на ядрах с заряженным током, $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$, измеренного в ближнем детекторе NOvA [1], с результатами моделирования, выполненного с помощью МК генератора нейтринных событий GENIE v.3.4.0 с опцией “бегущая аксиальная масса” (MAGU); подробности моделирования приведены в основном тексте. Гистограммами с разной штриховкой показаны квазиупругий, резонансный и глубоко неупругий вклады в суммарное сечение (см. легенду). Черными точками показаны экспериментальные данные (с полными ошибками), вошедшие в окончательный анализ NOvA, а белыми – дополнительные данные. Каждая панель отвечает указанному интервалу значений $\cos\theta_\mu$. На нижней правой панели показано сечение, полученное объединением всех угловых интервалов

мюона (т.е. правее пиков), а для бинов с $0.99 < \cos\theta_\mu < 1$ – при малых энергиях (т.е. левее пиков). Итоговое распределение, которое получается объединением всех угловых интервалов с $\cos\theta_\mu > 0,5$ (нижняя правая панель рис. 1), недооценивает экспериментальные данные примерно для трети бинов, но

расхождения не превышают одного стандартного отклонения.

В случае дифференциального сечения $d\sigma/dQ^2$ (см. рис. 2а), расчет хорошо согласуется с данными при всех значениях квадрата переданного 4-импульса, за исключением единственного (предпо-

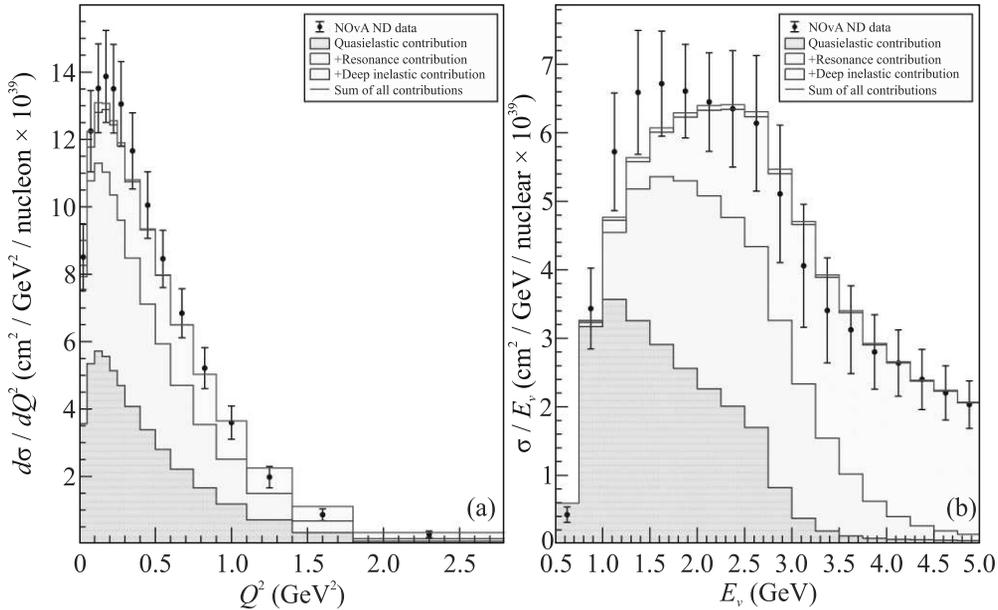


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сравнение дифференциального инклюзивного сечения рассеяния ν_μ на ядрах с заряженным током, $d\sigma/dQ^2$ (a) и отношения полного сечения $\sigma(E_\nu)$ к энергии нейтрино E_ν (b), измеренных в ближнем детекторе NOvA [1], с результатами моделирования, выполненного с помощью МК генератора GENIE v.3.4.0 с опцией MAgun; подробности моделирования приведены в основном тексте. Обозначения те же, что на рис. 1

следнего) бина. Расчет отношения $\sigma(E_\nu)/E_\nu$ согласуется с экспериментом во всем энергетическом диапазоне $0.5 \text{ ГэВ} < E_\nu < 5 \text{ ГэВ}$, за исключением трех бинов, в которых, однако, разногласия малы.

Для более объективного, количественного сравнения мы обсудим здесь результаты подробного анализа, учитывающего корреляции ошибок данных. В анализе мы также будем сравнивать расчеты, выполненные в работе [1] для ряда конкурентных моделей взаимодействия нейтрино с ядрами. Помимо базовой модели NOvA, так называемой “GENIE v2.12.2 – NOvA Tune” [28], основанной на версии GENIE v2.12.2 [29, 30], но существенно доработанной и настроенной для наилучшего согласия с данными NOvA ND [1], мы рассматриваем исходную (не адаптированную к данным NOvA) модель, инкорпорированную в генератор GENIE v2.12.2, и модель (СМС) N18-10j-02-11a, входящую в более позднюю версию GENIE v3.00.06 [31, 32]. Кроме этого, мы рассматриваем модели, включенные в нейтринные МК генераторы NEUT v5.4.0 [33–35] и NuWro [36, 37], а также в GiBUU [38, 39], – более общий инструмент симуляции адронных и электро-слабых реакций на ядрах. Все эти генераторы широко используются при планировании, обработке и интерпретации результатов экспериментов с ускорительными и атмосферными нейтрино. Их основные особенности и сравнительные характеристики можно найти в обзоре [40, 41].

Для сравнения расчетов с данными будем использовать три следующие величины:

$$\chi_{\text{diag}}^2 = \sum_i \frac{(E_i - T_i)^2}{\sigma_i^2}, \quad (1)$$

$$\chi_{\text{tot}}^2 = (\mathbf{E} - \mathbf{T})^T \mathbf{W}_{\text{tot}}^{-1} (\mathbf{E} - \mathbf{T}), \quad (2)$$

$$\chi_{\text{sh}}^2 = (\mathbf{E} - N\mathbf{T})^T \mathbf{W}_{\text{sh}}^{-1} (\mathbf{E} - N\mathbf{T}) + \frac{(N-1)^2}{\delta^2}. \quad (3)$$

Здесь \mathbf{E} and \mathbf{T} – векторы, составленные из усредненных по бину экспериментальных данных, E_i , и модельных предсказаний, T_i , соответственно; $\mathbf{W}_{\text{tot}} = ||W_{ij}||$ – полная ковариационная матрица, \mathbf{W}_{sh} – ковариационная матрица, относящаяся к форме (“шейпу”), т.е. зависимости данных от измеряемых кинематических переменных, и не учитывающая неопределенности общей нормировки данных; $\delta = 0.112$ – средняя относительная неопределенность общей нормировки бинов; $\sigma_i = \sqrt{W_{ii}}$ – полная ошибка измерения для i -го бина. Все данные взяты с публичного сайта NOvA [42].

Корреляционные матрицы, соответствующие ковариационным матрицам \mathbf{W}_{tot} и \mathbf{W}_{sh} для трех типов данных показаны на рис. 3, 4 и 5. Из этих рисунков видно, например, что большая часть данных каждого типа сильно коррелирована (см. панели (a) на рис. 3, 4 и 5), но после вычета из полной матрицы \mathbf{W}_{tot} ковариаций, обусловленных неопределенностями нормировок потока и сечений появляются обла-

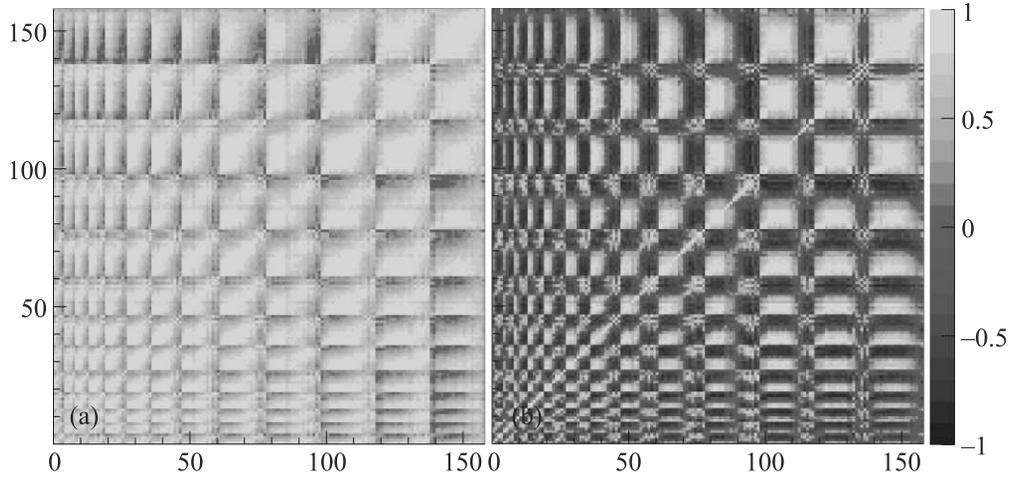


Рис. 3. (Цветной онлайн) Корреляционные матрицы, соответствующие ковариационным матрицам \mathbf{W}_{tot} (a) и \mathbf{W}_{sh} (b) для $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$. Нумерация бинов идет в направлении слева направо и сверху вниз по первым тринадцати панелям рис. 1. Цветовая шкала справа относится к обеим панелям

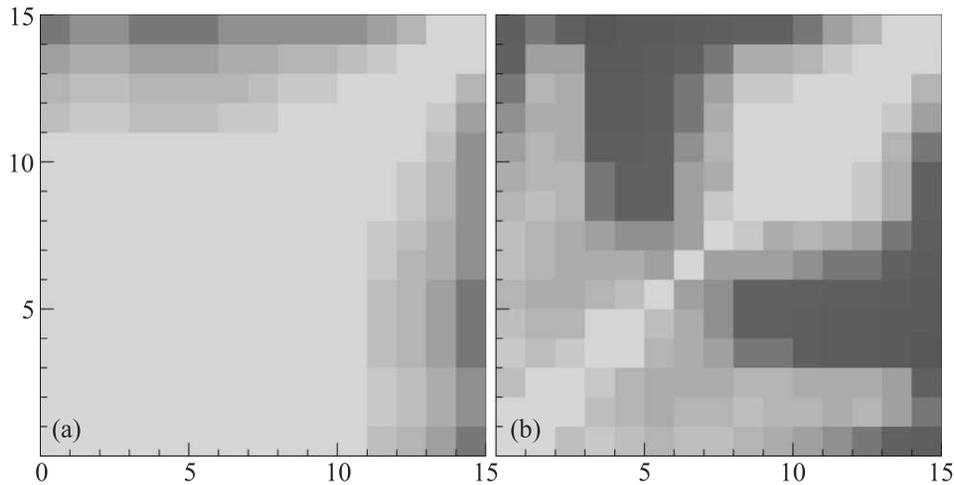


Рис. 4. (Цветной онлайн) Корреляционные матрицы, соответствующие ковариационным матрицам \mathbf{W}_{tot} (a) и \mathbf{W}_{sh} (b) для $d\sigma/dQ^2$. Бины нумеруются в направлении роста значений Q^2 на рис. 2а. Цветовая шкала та же, что на рис. 3

сти со слабой корреляцией и даже с сильной антикорреляцией (см. панели (b) на рис. 3, 4 и 5). Корреляционные коэффициенты и ковариации значительно варьируются в разных областях значений кинематических переменных T_μ , θ_μ , Q^2 и E_ν .

Нетривиальная структура корреляционных матриц показывает, что оценка качества описания данных с помощью χ_{diag}^2 была бы не просто слишком грубой, но часто приводящей к диаметрально противоположным выводам. Поэтому ниже мы приводим такие оценки лишь для иллюстрации важности учета корреляций. Отметим так же, что не имеет смысла сравнивать между собой приведенные ниже значения величин χ_{tot}^2 и χ_{sh}^2 , поскольку ковариационная матрица \mathbf{W}_{sh} не содержит доминирующих вкладов в

систематические ошибки и ковариации, а χ_{sh}^2 включает штрафной член. Сравнивать друг с другом следует лишь однотипные χ^2 -характеристики, рассчитанные для разных моделей взаимодействия.

Приведенная выше оценка величины δ (11.2%) получена как средневзвешенное значение по ошибкам всех бинов измеренного двойного дифференциального сечения. Доминирующим вкладом в значение δ является неопределенность потока нейтрино, достигающая $\pm 20\%$ при $E_\nu \lesssim 200$ МэВ, $\pm 15\%$ при $E_\nu \gtrsim 4$ ГэВ и равная в среднем $\pm 9.1\%$. Вклады от всех источников неопределенности нормировки практически 100-процентно коррелируют друг с другом и с остальными систематическими ошибками. Статистические ошибки, в среднем равные $\pm 1.6\%$,

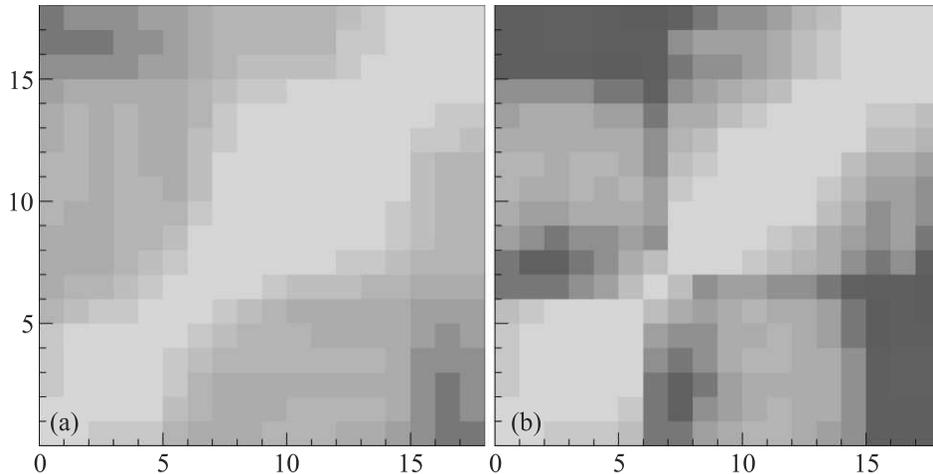


Рис. 5. (Цветной онлайн) Корреляционные матрицы, соответствующие ковариационным матрицам \mathbf{W}_{tot} (a) и \mathbf{W}_{sh} (b) для $\sigma(E_\nu)/E_\nu$. Бины нумеруются в направлении роста значений E_ν на рис. 2b. Цветовая шкала та же, что на рис. 3

очень слабо коррелируют с систематическим – средневзвешенный корреляционный коэффициент равен 0.0031 (ср. с 0.71 для усредненной полной систематической ошибки).

Нормировочный фактор N в (3) определяется из условия минимума $\partial\chi_{\text{sh}}^2/\partial N = 0$:

$$N = \frac{1 + \delta^2 \mathbf{T}^T \mathbf{W}_{\text{sh}}^{-1} \mathbf{E}}{1 + \delta^2 \mathbf{T}^T \mathbf{W}_{\text{sh}}^{-1} \mathbf{T}}. \quad (4)$$

Очевидно, $N \rightarrow 1$ при $\delta \rightarrow 0$. Зависимость N от δ ослабевает с ростом δ . Применительно к данным NOvA, зависимость N от δ становится несущественной при $\delta \gtrsim 9\%$. Учитывая этот факт, ниже мы используем оценку $\delta = 11.2\%$ также для анализа данных по $d\sigma/dQ^2$ и $\sigma(E_\nu)/E_\nu$.

В таблице 1 приведены значения нормировочного фактора (с полными ошибками) для трех типов данных и семи моделей, полученные стандартной нормировкой расчетов на площадь; именно такой способ нормировки был использован в работе [1]. Для сравнения в табл. 1 приведены так же ошибки нормировок, оцененные по диагональным значениям матрицы \mathbf{W}_{tot} , т.е. без учета корреляций. Видно, что пренебрежение корреляциями занижает реальные ошибки в 8.2 раза (!) для $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$ и в 3.3 раза для $d\sigma/dQ^2$ и $\sigma(E_\nu)/E_\nu$. Уже этот простой пример хорошо иллюстрирует определяющую роль корреляций при количественном сравнении модельных расчетов с данными NOvA.

Значения N , полученные нормировкой на площадь не являются оптимальными в том смысле, что не обеспечивают наилучшего описания данных по форме. Поэтому они могут (и, вообще говоря, должны) отличаться от соответствующих значений N ,

следующих из (4). Эти отличия хорошо видны из сравнения нормировок, представленных в табл. 1 и 2: в некоторых случаях разница не превышает 0.5%, но чаще достигает нескольких процентов (максимум – 8.8%). При этом разница всегда укладывается с запасом в полные ошибки, приведенные в табл. 1, так что два способа нормировки формально друг другу не противоречат.

На рисунке 6 показаны отношения усредненных по спектру нейтрино значений сечений $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$, рассчитанных в нескольких моделях нейтрино-ядерных взаимодействий, к соответствующим экспериментальным значениям. Результаты показаны в представлении линейного биннинга, как подробно поясняется в подписи к рис. 6. На панели (a) рис. 6 представлены отношения для абсолютных (неперенормированных) модельных предсказаний, а на панели (b) рис. 6 – для перенормированных, с нормировочными коэффициентами, даваемыми формулой (4), полученной минимизацией величины χ_{sh}^2 . Найденные значения нормировочных коэффициентов и трех χ^2 -характеристик приведены в табл. 2.

Данные, показанные на рис. 1 и 6 белыми кружками (14 бинов), имеют сравнительно большие статистические и систематические ошибки и исключены из официального анализа NOvA. Они не участвуют в расчете нормировок и значений χ^2 , приведенных в табл. 2 и показаны здесь, чтобы продемонстрировать, что модель MAgun этим данным не противоречит.

Как видно из рис. 6 и табл. 2, неперенормированные предсказания разных моделей не согласуются друг с другом. После перенормировок разногласия между моделями значительно уменьшаются, но тре-

Таблица 1. Значения нормировочных коэффициентов (с полными ошибками), требуемых при стандартной нормировке величин $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$, $d\sigma/dQ^2$ и $\sigma(E_\nu)/E_\nu$ на площадь, рассчитанные в семи моделях взаимодействия нейтрино с ядрами. Относительные ошибки нормировки для приведенных типов данных равны, соответственно, 9.76 %, 9.73 % и 12.5 %. При оценке этих ошибок использовались полные ковариационные матрицы \mathbf{W}_{tot} . Для сравнения, в квадратных скобках указаны полные абсолютные ошибки, полученные без учета корреляций. Соответствующие относительные ошибки равны 1.19 %, 2.94 % и 3.79 %

Модель	$d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$ (158 бинов)	$d\sigma/dQ^2$ (15 бинов)	$\sigma(E_\nu)/E_\nu$ (18 бинов)
GENIE 2.12.2	0.974 ± 0.095 [0.012]	0.942 ± 0.092 [0.028]	0.943 ± 0.117 [0.036]
GENIE 3.00.06	1.088 ± 0.106 [0.013]	1.126 ± 0.109 [0.033]	1.086 ± 0.135 [0.033]
NEUT 5.4.0	0.996 ± 0.097 [0.012]	0.987 ± 0.096 [0.029]	1.015 ± 0.126 [0.039]
GiBBU 2019	1.329 ± 0.130 [0.016]	1.279 ± 0.124 [0.038]	1.275 ± 0.159 [0.048]
NuWro 2019	1.145 ± 0.112 [0.014]	1.139 ± 0.111 [0.033]	1.143 ± 0.142 [0.043]
NOvA Tune	1.008 ± 0.098 [0.012]	0.977 ± 0.095 [0.029]	0.960 ± 0.120 [0.036]
MArun	1.069 ± 0.104 [0.013]	1.018 ± 0.099 [0.030]	1.011 ± 0.126 [0.038]

Таблица 2. Значения χ_{diag}^2 , χ_{tot}^2 , χ_{sh}^2 рассчитанные для $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$, $d\sigma/dQ^2$ и $\sigma(E_\nu)/E_\nu$, а также нормировочные множители N , найденные из минимизации χ_{sh}^2 , в семи моделях взаимодействия нейтрино с ядрами

Модель	$d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$ (158 бинов)				$d\sigma/dQ^2$ (15 бинов)				$\sigma(E_\nu)/E_\nu$ (18 бинов)			
	χ_{diag}^2	χ_{tot}^2	χ_{sh}^2	N	χ_{diag}^2	χ_{tot}^2	χ_{sh}^2	N	χ_{diag}^2	χ_{tot}^2	χ_{sh}^2	N
GENIE 2.12.2	463.0	1146	1094	0.979	38.8	540.4	495.6	0.979	6.8	23.7	20.0	0.948
GENIE 3.00.06	224.4	1501	1965	1.137	17.5	25.5	36.5	1.189	13.5	25.2	34.5	1.123
NEUT 5.4.0	390.0	1743	1848	1.026	7.2	108.2	107.3	1.039	5.8	17.1	16.5	1.010
GiBBU 2019	602.0	1225	2050	1.285	58.4	117.6	211.5	1.351	43.3	61.0	123.3	1.169
NuWro 2019	218.7	647.9	882.7	1.163	19.9	55.2	72.0	1.224	13.9	9.9	12.0	1.141
NOvA Tune	25.6	281.3	283.1	1.004	2.3	4.7	4.8	0.959	1.8	27.4	25.7	0.944
MArun	124.6	669.8	821.8	1.105	7.6	29.1	32.0	1.115	7.3	33.6	31.5	1.021

буемые для наилучшего согласия с данными значения нормировочных коэффициентов варьируются в широком диапазоне – от 0.98 (GENIE 2.12.2) до 1.29 (GiBBU 2019), т.е. в пределах примерно 2.7δ . Разумеется, ни одна из приведенных моделей не может конкурировать с моделью “NOvA Tune”, свободные параметры которой специально настроены на данные NOvA ND по $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$ и которая поэтому не требует дополнительной перенормировки. Тем не менее модели NuWro 2019 и MArun дают удовлетворительные (наименьшие после NOvA Tune) и близкие друг к другу значения χ_{diag}^2 , χ_{tot}^2 и χ_{sh}^2 . При этом для MArun требуется значительная, но согласующаяся с неопределенностью общей нормировки данных перенормировка, с коэффициентом $N \simeq 1.11 \simeq 1 + 0.94\delta$ (ср. с величиной $N \simeq 1.07 \simeq 1 + 0.62\delta$, требуемой при нормировке на площадь). Другими словами, модель MArun согласуется с измеренными значениями $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$ в пределах ошибок измерений, хотя для всех моделей, кроме NOvA Tune и (с оговорками) GiBBU 2019, наблюдается систематическое искажение предсказываемой зависимости сечения от энергии мюона. Для всех моделей, кроме NOvA Tune, степень этого искажения возрастает с увеличением $\cos\theta_\mu$.

На рисунке 7 для тех же моделей в представлении линейного биннинга показаны отношения расчетных перенормированных значений, усредненных по спектру дифференциального сечения $d\sigma/dQ^2$ (а) и наклона полного сечения $\sigma(E_\nu)/E_\nu$ (б) к соответствующим экспериментальным значениям, показанным на рис. 2. Нормировочные коэффициенты и все три χ^2 -характеристики представлены в табл. 2. Как видим, для $d\sigma/dQ^2$ и $\sigma(E_\nu)/E_\nu$ также имеет место большой разброс модельных предсказаний и требуемых для наилучшего описания данных значениях нормировочных коэффициентов: от 0.96 (NOvA Tune) до 1.35 (GiBBU 2019), т.е. в диапазоне $\sim 3.5\delta$, для $d\sigma/dQ^2$ и от 0.94 (NOvA Tune) до 1.17 (GiBBU 2019), т.е. в диапазоне $\sim 2\delta$, для $\sigma(E_\nu)/E_\nu$. Можно отметить, что настройка параметров модели NOvA Tune на данных по двойному дифференциальному сечению не избавляет от необходимости дополнительной, относительно небольшой перенормировки для описания данных по $d\sigma/dQ^2$ и $\sigma(E_\nu)/E_\nu$.

Модель MArun вполне конкурентна и здесь, хотя, как и для всех рассматриваемых моделей, кроме NOvA Tune, имеют место отклонения от наблюдаемых зависимостей сечений от Q^2 и E_ν . Для MArun разногласия с данными в большинстве находятся в

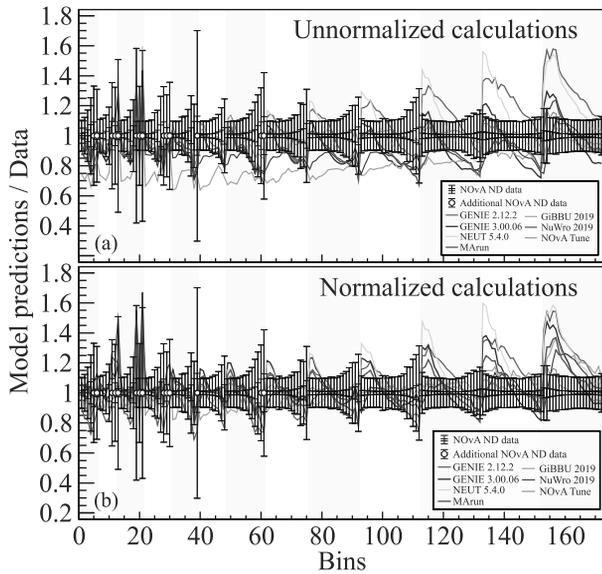


Рис. 6. (Цветной онлайн) Отношения расчетных (усредненных по спектру ν_μ) значений двойных дифференциальных сечений $d^2\sigma/d\cos\theta_\mu dT_\mu$ к измеренному в ближнем детекторе NOvA, представленные в зависимости от номера экспериментального бина; нумерация бинов идет в направлении слева направо и сверху вниз по первым тринадцати панелям рис. 1, а вертикальные полосы ограничивают диапазоны значений $\cos\theta_\mu$, указанные на этих панелях. В целях лучшей визуализации дискретные значения отношений для каждой из семи моделей соединены непрерывными линиями. Представлены результаты, соответствующие неперенормированным сечениям (a) и сечениям, перенормированным согласно процедуре, описанной в тексте (b). Показаны статистические и суммарные (статистические плюс систематические) ошибки измерений

пределах ошибок измерений. Отметим, что удаление из обработки данных рис. 7a) лишь одного последнего бина, определяющий вклад в который дает глубоко неупругое рассеяние и который слабо коррелирует с остальным набором данных (см. рис. 4), заметно улучшает описание зависимости $d\sigma/dQ^2$ от Q^2 , а именно, величина χ_{sh}^2/n (где n – число бинов) уменьшается с 2.1 до 1.6. Похожий, но меньший эффект имеет место и для данных по наклону полного сечения, $\sigma(E_\nu)/E_\nu$: удаление из набора данных рис. 7b) последних двух (трех) бинов, CCQE вклад в которые тоже слабо коррелирован и мал ($\lesssim 10\%$), приводит к уменьшению χ_{sh}^2/n с 1.75 до 1.56 (1.59). Эти примеры свидетельствуют о том, что модель MArun адекватно описывает CCQE и CCQE-like вклады в дифференциальное и полное сечения.

Закключение. Показано, что модель с бегущей аксиальной массой (MArun), предназначенная для

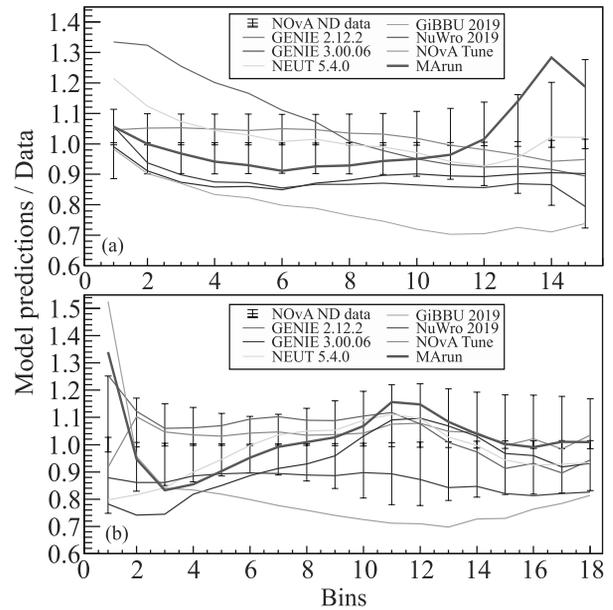


Рис. 7. (Цветной онлайн) Отношения расчетных неперенормированных значений $d\sigma/dQ^2$ (a) и $\sigma(E_\nu)/E_\nu$ (b) к измеренным, представленные в зависимости от номера экспериментального бина; бины нумеруются в направлении слева направо по рис. 2a и b, соответственно. С целью лучшей визуализации дискретные значения отношений для каждой из семи моделей соединены непрерывными линиями. Показаны статистические и суммарные ошибки измерений

описания квазиупругих и квазиупруго-подобных взаимодействий нейтрино с ядрами, при использовании в нейтринном генераторе GENIE, позволяющем учесть неупругие каналы и эффекты взаимодействия вторичных адронов с ядром, хорошо согласуется (без дополнительных модификаций и подгонок) с недавними результатами измерений эксперимента NOvA ND. Модель MArun, применительно к расчету инклюзивных сечений взаимодействия нейтрино с ядрами, является конкурентоспособной по сравнению с другими моделями, включенными в генераторы GENIE, NEUT, GiBBU, NuWro, и может использоваться наряду с ними при анализе осцилляционных данных в дальнем детекторе NOvA. Дополнительная тонкая настройка модели на данные NOvA ND и/или включение этих и других современных данных в расширенный глобальный фит позволит улучшить ее предсказательные возможности.

Отметим, что поскольку ОМТ учитываются в модели MArun не явно, а чисто эмпирически, за счет энергетической зависимости параметра M_A^{run} , представляет интерес проверить работоспособность MArun на данных по полунклюзивным сечениям, в кинематической области чувствительной к вкладу

обменных токов и, в частности, $2p2h$ процессов. Это позволит уточнить область применимости модели.

Авторы благодарят Леонидаса Алиага, Линду Крмонези и Джонатана Пэйли за обсуждения деталей анализа данных эксперимента NOvA и теоретических расчетов, а так же Константина Кузьмина и Александра Ольшевского за полезные комментарии.

Финансирование работы. Поддержано Министерством науки и высшего образования Российской Федерации в рамках программы финансирования крупных научных проектов национального проекта “Наука”, грант номер 075-15-2024-541.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. M. A. Acero, P. Adamson, L. Aliaga et al. (NOvA Collaboration), *Phys. Rev. D* **107**(5), 052011 (2023).
2. A. Cudd (on behalf of the T2K Collaboration), *Phys. Sci. Forum* **8**, 14 (2023).
3. V. Hewes, B. Abi, R. Acciarri et al. (DUNE Collaboration), *Instruments* **5**(4), 31 (2021).
4. K. Abe, H. Aihara, C. Andreopoulos et al. (Hyper-Kamiokande Proto-Collaboration), *PTEP* **2015**, 053C02 (2015).
5. K. Abe, R. Abe, S. H. Ahn et al. (Hyper-Kamiokande Proto-Collaboration), *PTEP* **2018**(6), 063C01 (2018).
6. A. V. Akhmedov, E. G. Anassontzis, G. Anton et al. (P2O Proto-Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **79**(9), 758 (2019).
7. K. S. Kuzmin, V. A. Naumov, and O. N. Petrova, *Phys. Part. Nucl.* **48**(6), 995 (2017).
8. I. D. Kakorin, K. S. Kuzmin, and V. A. Naumov, *Phys. Part. Nucl. Lett.* **17**(3), 265 (2020).
9. I. D. Kakorin, K. S. Kuzmin, and V. A. Naumov, *Eur. Phys. J. C* **81**(12), 1142, 2021.
10. L. Alvarez-Ruso, C. Andreopoulos, A. Ashkenazi et al. (GENIE Collaboration), *Eur. Phys. J. ST* **230**(24), 4449 (2021).
11. R. A. Smith and E. J. Moniz, *Nucl. Phys. B* **43**, 605 (1972; Erratum: *ibid.* **101**, 547 (1975)).
12. K. S. Kuzmin, V. V. Lyubushkin, and V. A. Naumov, *Eur. Phys. J. C* **54**, 517 (2008).
13. V. Lyubushkin, B. Popov, J. Kim et al. (NOMAD Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **63**, 355 (2009).
14. A. A. Aguilar-Arevalo, C. E. Anderson, A. O. Bazarko et al. (MiniBooNE Collaboration), *Phys. Rev. D* **81**(9), 092005 (2010).
15. A. A. Aguilar-Arevalo, B. C. Brown, L. Bugel et al. (MiniBooNE Collaboration), *Phys. Rev. D* **88**(3), 032001 (2013).
16. K. Abe, J. Amey, C. Andreopoulos et al. (T2K Collaboration), *Phys. Rev. D* **98**(3), 032003 (2018).
17. K. Abe, J. Amey, C. Andreopoulos et al. (T2K Collaboration), *Phys. Rev. D* **97**(1), 012001 (2018).
18. D. Ruterbories, K. Hurtado, J. Osta et al. (MINERvA Collaboration), *Phys. Rev. D* **99**(1), 012004 (2019).
19. C. E. Patrick, L. Aliaga, A. Bashyal et al. (MINERvA Collaboration), *Phys. Rev. D* **97**(5), 052002 (2018).
20. A. A. Aguilar-Arevalo, B. C. Brown, L. Bugel et al. (MiniBooNE Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **120**(14), 141802 (2018).
21. D. Rein and L. M. Sehgal, *Ann. Phys. (N.Y.)* **133**(1), 79 (1981).
22. K. S. Kuzmin, V. V. Lyubushkin, and V. A. Naumov, *Mod. Phys. Lett. A* **19**(38), 2815 (2004).
23. C. Berger and L. M. Sehgal, *Phys. Rev. D* **76**(11), 113004 (2007).
24. I. D. Kakorin and K. S. Kuzmin, *Phys. Rev. D* **104**(9), 093001 (2021).
25. K. S. Kuzmin, V. V. Lyubushkin, and V. A. Naumov, *Acta Phys. Polon. B* **37**(8), 2337 (2006).
26. R. L. Workman, V. D. Burkert, V. Crede, et al. (Particle Data Group), *PTEP* **2022**, 083C01 (2022).
27. P. Rodrigues, C. Wilkinson, and K. McFarland, *Eur. Phys. J. C* **76**(8), 474 (2016).
28. M. A. Acero, P. Adamson, G. Agam et al. (NOvA Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **80**(12), 1119 (2020).
29. C. Andreopoulos, A. Bell, D. Bhattacharya et al. (GENIE Collaboration), *Nucl. Instrum. Meth. A* **614**, 87 (2010).
30. C. Andreopoulos, C. Barry, S. Dytman, H. Gallagher, T. Golan, R. Hatcher, G. Perdue, and J. Yarba, arXiv:1510.05494 [hep-ph] (2015).
31. J. Tena-Vidal, C. Andreopoulos, A. Ashkenazi et al. (GENIE Collaboration), *Phys. Rev. D* **104**(7), 072009 (2021).
32. J. Tena-Vidal, C. Andreopoulos, C. Barry et al. (GENIE Collaboration), *Phys. Rev. D* **105**(1), 012009 (2022).
33. Y. Hayato, *Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.)* **112**(1–3), 171 (2002).
34. G. Mitsuka, *AIP Conf. Proc.* **981**, 262 (2008).
35. Y. Hayato, *Acta Phys. Polon. B* **40**(9), 2477 (2009).
36. T. Golan, J. T. Sobczyk, and J. Zmuda, *Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.)* **229–232**, 499 (2012).
37. T. Golan, C. Juszczak, and J. T. Sobczyk, *Phys. Rev. C* **86**(1), 015505 (2012).
38. O. Buss, T. Gaitanos, K. Gallmeister, H. van Hees, M. Kaskulov, O. Lalakulich, A. Larionov, T. Leitner, J. Weil, and U. Mosel, *Phys. Rept.* **512**, 1 (2012).
39. K. Gallmeister, U. Mosel, and J. Weil, *Phys. Rev. C* **94**(3), 035502 (2016).
40. U. Mosel, *J. Phys. G* **46**(11), 113001 (2019).

41. J. Campbell, M. M. Diefenthaler, T. J. Hobbs et al. (Initiative Group on Particles and Fields), *Event generators for high-energy physics experiments (Snowmass White Paper)*, in *Proceedings of the 2021 US Community Study on the Future of Particle Physics (Snowmass 2021)*, ed. by J. N. Butler, R. Sekhar Chivukula, and M. E. Peskin, APS Division of Particles and Fields, March 2022; arXiv:2203.11110 [hep-ph].
42. NOvA Collaboration, “Data releases,” 2024. URL: <https://novaexperiment.fnal.gov/data-releases/>, Accessed on April 2, 2024.

Double parton scattering versus jet quenching

S. P. Baranov⁺¹⁾, *A. V. Lipatov*^{*×1)}, *M. A. Malyshev*^{*×1)}, *A. M. Snigirev*^{*×1)}

⁺*P. N. Lebedev Institute of Physics, 119991 Moscow, Russia*

^{*}*Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, 119991 Moscow, Russia*

[×]*Joint Institute for Nuclear Research, 141980 Dubna, Russia*

Submitted 10 April 2024

Resubmitted 26 April 2024

Accepted 26 April 2024

DOI: 10.31857/S1234567824110028, EDN: RJVAIN

A huge number of intriguing and exquisite observations have been made with the Relativistic Heavy Ion Collider (RHIC) and the Large Hadron Collider (LHC). Many of them could have never been systematically studied at the accelerators of previous generation. In particular, hard multiparton interactions (MPI), including double parton scattering (DPS) are just among these interesting phenomena [1]. The DPS is actively discussed for proton-nucleus (p - A) and nucleus-nucleus (A - A) collisions as well, since its relative contribution increases, compared to naive scaling expectation. Unique new options emerge for further studies and measurements of momentum correlations. For nucleus-nucleus collisions, it opens yet a unique possibility to probe the collective properties of a new state of dense matter, the quark-gluon plasma (see, e.g., [2–4]) The experiments at RHIC and the LHC have provided clear evidence that the production of hadrons in A - A collisions goes through the formation of a fireball of hot and dense quark-gluon plasma. This follows from the observation of strong suppression of high- p_T particle spectra (the so-called jet quenching phenomenon expressed in the nuclear modification factor R_{AA}) and from the results of hydrodynamic simulations of A - A collisions.

The main purpose of this Letter is to bring reader's attention to an interesting possibility to probe the initial and final state effects in nucleus-nucleus collisions simultaneously, with a single measurement. This can be realised by introducing a novel observable, the double nuclear modification factor:

$$R_{AA}(ab) = R_{AA}(a) \cdot R_{AA}(b) \left[F + \frac{C - F}{K + 1} \right], \quad (1)$$

where K is the ratio of the cross sections of production of the ab state in single and double parton scattering of nucleons, the combinatorial factor C determines the

¹⁾e-mail: baranov@sci.lebedev.ru; lipatov@theory.sinp.msu.ru; malyshev@theory.sinp.msu.ru; snigirev@lav01.sinp.msu.ru

DPS cross section enhancement in A - A collisions compared to simple A^2 scaling of the nucleon cross section, and $F = \mathcal{O}(1)$ takes into account the correlations, which are induced by the fact that the both particles are produced in the same point.

A specific interplay between the effects of DPS and jet quenching can be illustrated in the simplest case when one of the two hard particles does not lose its energy when passing through a dense matter. To be more solid, we can employ available experimental results on the associated production of two hard particles. The needed K -factor can be extracted directly from experimental data without appealing to Monte Carlo simulations. As an example, consider the production of J/ψ mesons in association with a W boson. Relying on the measurements [5] performed by ATLAS collaboration, we obtain the K -factor as a function of the J/ψ transverse momentum as shown in Fig. 1.

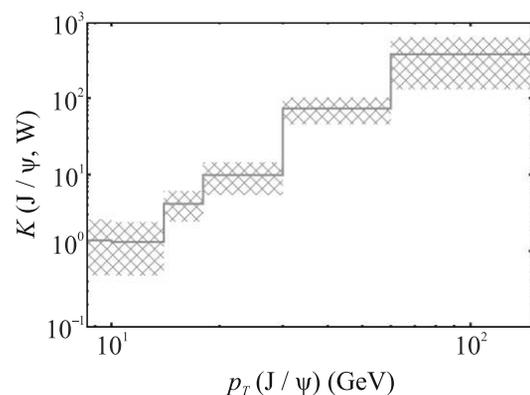


Fig. 1. (Color online) K -factor as a function of J/ψ transverse momentum. The bands show uncertainties in the cross section determination for $J/\psi + W$ production

Since the W boson passes through the nuclear matter without losing energy, our main theoretical prediction (1) reduces to

$$R_{AA}(J/\psi, W) = R_{AA}(J/\psi) \left[1 + \frac{C - 1}{K(J/\psi, W) + 1} \right]. \quad (2)$$

The combinatorial enhancement C does not depend on the process kinematics and the type of hard particles, but is mainly governed by the atomic number A . For the minimum bias Pb - Pb collisions this enhancement amounts to $C \sim 215$ [6]. The measured nuclear J/ψ modification factor at the LHC [7–9] amounts to $R_{AA}(J/\psi) \simeq 0.5$ at low transverse momenta ($p_T \simeq 2$ GeV/ c) and to $R_{AA}(J/\psi) \simeq 0.3$ over a wide interval of higher transverse momenta ($p_T > 5$ GeV/ c). The “measured” K -factor demonstrates strong dependence on the transverse momentum: it changes from ~ 1.4 at p_T lying in the interval [8.5–10] GeV/ c to ~ 374 at $p_T \in [60$ –150] GeV/ c . Thus we can expect that the production of J/ψ mesons in association with a W boson is not suppressed, but is enhanced in the region of moderate transverse momenta, contrary to unassociated (inclusive) J/ψ production. For $p_T \in [8.5$ –10] GeV/ c , we have

$$R_{AA}(J/\psi, W) \simeq 30$$

while $R_{AA}(J/\psi) \simeq 0.3$! In the region of high enough transverse momentum ($p_T > 60$ GeV/ c), the behavior of W -associated J/ψ production converges to the unassociated case: $R_{AA}(J/\psi, W) \simeq R_{AA}(J/\psi)$ since the ratio $(C - 1)/(K + 1)$ becomes small. This example clearly demonstrates the competition between the effects of DPS (initial state effect) and jet quenching (final state effect).

The associated production of D mesons and W bosons shows yet a more intriguing behavior. In this case, there is a notable difference [10, 11] between the opposite-sign and same-sign production cross sections, and the K -factor is significantly larger for WD configurations of the opposite sign than for configurations of the same sign. The sensitivity of this factor to the charge configurations takes place also for other processes with W bosons in the final state [12–14]. The energy loss is independent of the sign of D mesons: $R_{AA}(D^+) \simeq R_{AA}(D^-)$. It means that the double nuclear modification factor for the WD associate production will be notably larger for the same-sign configurations than for the opposite-sign ones:

$$R_{AA}(D^\pm, W^\mp) < R_{AA}(D^\pm, W^\pm)$$

at the same kinematics.

So, we come to the conclusion that measurements of the double nuclear modification factor potentially open a wide room for further studies of an interplay between

the effects of DPS and jet quenching, extending to various types of hard final state particles in a wide interval of their transverse momenta.

The authors thank A. I. Demianov, A. V. Kotikov and I. P. Lokhtin for useful discussions. A. M. Snigirev is grateful to D. d’Enterria for numerous fruitful discussions during previous work on double parton scattering problems.

Funding. The work described in Section II (Theoretical setup) is supported by the Russian Science Foundation, grant 22-22-00387. The calculation presented in Section III (Numerical examples) were obtained with the support of the Russian Science Foundation, grant 22-22-00119.

Conflict of interest. The authors of this work declare that they have no conflicts of interest.

This is an excerpt of the article “Double parton scattering versus jet quenching”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364024601064

1. G. M. Zinovjev and A. M. Snigirev, *Phys.-Uspekhi* **64**, 357 (2021).
2. *Proceedings of Quark Matter*, ed. by F. Antinori, A. Dainese, P. Giubellini, V. Greco, M. P. Lombardi, and E. Scomparin, Elsevier, Amsterdam (2018) [*Nucl. Phys. A* **982**, 1 (2019)].
3. *Proceedings of Quark Matter*, ed. by F. Liu, E. Wang, X.-N. Wang, N. Xu, and B.-W. Zhang, Elsevier, Amsterdam (2019) [*Nucl. Phys. A* **1005**, 122104 (2021)].
4. J. W. Harris and B. Muller, arXiv:2308.05743 [hep-ph].
5. M. Aaboud, G. Aad, B. Abbott et al. (ATLAS Collaboration), *JHEP* **01**, 095 (2020).
6. D. d’Enterria and A. M. Snigirev, *Phys. Lett. B* **727**, 157 (2013).
7. B. Abelev, J. Adam, D. Adamova et al. (ALICE Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **109**, 072301 (2012).
8. S. Acharya, D. Adamova, A. Adler et al. (ALICE Collaboration), *Phys. Lett. B* **805**, 135434 (2020).
9. A. M. Sirunyan, A. Tumasyan, W. Adam et al. (CMS Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **78**, 509 (2018).
10. S. P. Baranov, A. V. Lipatov, M. A. Malyshev, A. M. Snigirev, and N. P. Zotov, *Phys. Lett. B* **746**, 100 (2015).
11. S. P. Baranov, A. V. Lipatov, M. A. Malyshev, A. M. Snigirev, and N. P. Zotov, *Phys. Rev. D* **93**, 094013 (2016).
12. A. Kulesza and W. J. Stirling, *Phys. Lett. B* **475**, 168 (2000).
13. D. d’Enterria and A. M. Snigirev, *Phys. Lett. B* **718**, 1395 (2013).
14. Q.-H. Cao, Y. Liu, K.-P. Xie, and B. Yan, *Phys. Rev. D* **97**, 035013 (2018).

Refined TMD gluon density in a proton from the HERA and LHC data

A. V. Lipatov^{+*1)}, G. I. Lykasov*, M. A. Malyshev^{+×}

⁺Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, 119991 Moscow, Russia

*Joint Institute for Nuclear Research, 141980 Dubna, Russia

[×]Moscow Aviation Institute, 125993 Moscow, Russia

Submitted 15 April 2024

Resubmitted 26 April 2024

Accepted 26 April 2024

DOI: 10.31857/S123456782411003X, EDN: QZGQKH

It is well known that parton distribution functions in a proton (PDFs), $f_a(x, \mu^2)$ with $a = q$ or g , are an essential ingredient of any description of hard scattering at modern colliders energies. If only one scale is present in the process, $\mu \sim \sqrt{s} \gg \Lambda_{\text{QCD}}$, then the PDFs can be described in Quantum Chromodynamics (QCD) via the Dokshitzer–Gribov–Lipatov–Altarelli–Parisi (DGLAP) equations [1–4]. However, in case of a two-scale process, $\sqrt{s} \gg \mu \gg \Lambda_{\text{QCD}}$, the gluon dynamics can be described by the Balitsky–Fadin–Kuraev–Lipatov (BFKL) [5–7] or Catani–Ciafaloni–Fiorani–Marchesini (CCFM) [8–11] equations. It leads to Transverse Momentum Dependent (TMD, or unintegrated) gluon densities in a proton and k_T -factorization [12–15] approach. The TMD gluon densities can be calculated within some approaches, such as popular Kimber–Martin–Ryskin formalism [16–18], Parton Branching approach [19, 20] or obtained from the analytical or numerical solutions of BFKL-like QCD evolution equations. There are also investigations within the non-linear evolution in QCD. The CCFM equation, which resums large logarithmic terms proportional to $\alpha_s^n \ln^n 1/x$ and $\alpha_s^n \ln^n 1/(1-x)$ and therefore valid at both low and large x , has been applied [21, 22]. In our previous study [22] a more physically motivated expression for the input distribution (LLM gluon) was chosen:

$$f_g(x, \mathbf{k}_T^2) = \quad (1)$$

$$= c_g (1-x)^{b_g} \sum_{n=1}^3 c_n [R_0(x) |\mathbf{k}_T|]^n \exp(-R_0(x) |\mathbf{k}_T|),$$

where $R_0^2(x) = (x/x_0)^\lambda / Q_0^2$, $b_g = b_g(0) + (4C_A/\beta_0) \ln [\alpha_s(Q_0^2)/\alpha_s(\mathbf{k}_T^2)]$, $C_A = N_C$, $\beta_0 = 11 - 2N_f/3$ and $Q_0 = 2.2 \text{ GeV}$. Here b_g parameter is treated to be running at $\mathbf{k}_T^2 > Q_0^2$ only, whereas the fixed value $b_g = b_g(0)$ at $\mathbf{k}_T^2 \leq Q_0^2$ is used. This

expression is based on the description of the LHC data on soft hadron transverse momenta spectra in the framework of the modified soft quark gluon string model [23, 24] with taking into account gluon saturation effects important at small x and scales of about the order of saturation scale Q_s . Very recently it was shown [25] that some phenomenological parameters of the starting gluon density (1) need to be corrected in order to provide a good description of the low Q^2 data on proton structure function $F_2(x, Q^2)$ and reduced deep inelastic cross sections taken by H1 and ZEUS Collaborations. Simultaneous best fit to these HERA and LHC data on charged hadron production at small transverse momenta p_T in the mid-rapidity region leads to $c_1 = 5$, $c_2 = 3$, $c_3 = 2$, $x_0 = 1.3 \cdot 10^{-11}$ and $\lambda = 0.22$ [25]. Of course, other essential parameters, which cannot be determined from these data, have to be fitted from other measurements with taking into account the effects connected with the QCD evolution of gluon density. In the present Letter we continue the determination of phenomenological parameters (namely, $b_g(0)$ and c_g) with taking into account the effects of QCD evolution. Our procedure was based on a fit to a number of LHC and HERA data for processes sensitive to the gluon content of a proton at scale $\mu > Q_s$. The resulting fit quality ($\chi^2/d.o.f. = 1.773$) shows that the obtained gluon density does not contradict experimental data. We illustrate it additionally with latest HERA data on inclusive prompt photon photoproduction. Our results together with the ones [25] represent a self-consistent approach for the TMD gluon density in a proton valid in a wide kinematical region. The updated LLM gluon density supersedes previous version and can be used in different phenomenological applications for pp , $p\bar{p}$ and ep processes at modern and future colliders. It is available now in the TMDLIB library and Monte-Carlo event generator PEGASUS [26].

¹⁾e-mail: lipatov@theory.sinp.msu.ru

We thank S. P. Baranov, A. A. Prokhorov, and H. Jung for their interest, important comments and remarks. A. V. Lipatov would like to thank School of Physics and Astronomy, Sun Yat-sen University (Zhuhai, China) for warm hospitality.

Funding. This work was supported by ongoing institutional funding. No additional grants to carry out or direct this particular research were obtained.

Conflict of interest. The authors of this work declare that they have no conflicts of interest.

This is an excerpt of the article “Refined TMD gluon density in a proton from the HERA and LHC data”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364024601234

-
1. V. N. Gribov and L. N. Lipatov, *Sov. J. Nucl. Phys.* **15**, 438 (1972).
 2. L. N. Lipatov, *Sov. J. Nucl. Phys.* **20**, 94 (1975).
 3. G. Altarelli and G. Parisi, *Nucl. Phys. B* **126**, 298 (1977).
 4. Yu. L. Dokshitzer, *Sov. Phys. JETP* **46**, 641 (1977).
 5. E. A. Kuraev, L. N. Lipatov, and V. S. Fadin, *Sov. Phys. JETP* **44**, 443 (1976).
 6. E. A. Kuraev, L. N. Lipatov, and V. S. Fadin, *Sov. Phys. JETP* **45**, 199 (1977).
 7. I. I. Balitsky and L. N. Lipatov, *Sov. J. Nucl. Phys.* **28**, 822 (1978).
 8. M. Ciafaloni, *Nucl. Phys. B* **296**, 49 (1988).
 9. S. Catani, F. Fiorani, and G. Marchesini, *Phys. Lett. B* **234**, 339 (1990).
 10. S. Catani, F. Fiorani, and G. Marchesini, *Nucl. Phys. B* **336**, 18 (1990).
 11. G. Marchesini, *Nucl. Phys. B* **445**, 49 (1995).
 12. L. V. Gribov, E. M. Levin, and M. G. Ryskin, *Phys. Rep.* **100**, 1 (1983).
 13. E. M. Levin, M. G. Ryskin, Yu. M. Shabelsky, and A. G. Shuvaev, *Sov. J. Nucl. Phys.* **53**, 657 (1991).
 14. S. Catani, M. Ciafaloni, and F. Hautmann, *Nucl. Phys. B* **366**, 135 (1991).
 15. J. C. Collins and R. K. Ellis, *Nucl. Phys. B* **360**, 3 (1991).
 16. M. A. Kimber, A. D. Martin, and M. G. Ryskin, *Phys. Rev. D* **63**, 114027 (2001).
 17. A. D. Martin, M. G. Ryskin, and G. Watt, *Eur. Phys. J. C* **31**, 73 (2003).
 18. A. D. Martin, M. G. Ryskin, and G. Watt, *Eur. Phys. J. C* **66**, 163 (2010).
 19. F. Hautmann, H. Jung, A. Lelek, V. Radescu, and R. Zlebcik, *Phys. Lett. B* **772**, 446 (2017).
 20. F. Hautmann, H. Jung, A. Lelek, V. Radescu, and R. Zlebcik, *JHEP* **1801**, 070 (2018).
 21. F. Hautmann and H. Jung, *Nucl. Phys. B* **883**, 1 (2014).
 22. A. V. Lipatov, G. I. Lykasov, and M. A. Malyshev, *Phys. Rev. D* **107**, 014022 (2023).
 23. V. A. Bednyakov, G. I. Lykasov, and V. V. Lyubushkin, *Europhys. Lett.* **92**, 31001 (2010).
 24. V. A. Bednyakov, A. A. Grinyuk, G. I. Lykasov, and M. Poghosyan, *Int. J. Mod. Phys. A* **27**, 1250042 (2012).
 25. A. V. Lipatov, G. I. Lykasov, and M. A. Malyshev, *Phys. Lett. B* **848**, 138390 (2024).
 26. A. V. Lipatov, M. A. Malyshev, and S. P. Baranov, *Eur. Phys. J. C* **80**, 330 (2020).

Single-photon level quantum memory in an isotopically pure $^{143}\text{Nd}^{3+}:\text{Y}^7\text{LiF}_4$ crystal

R. A. Akhmedzhanov¹⁾, L. A. Gushchin, N. A. Nizov, V. A. Nizov, D. A. Sobgayda, I. V. Zelensky

Institute of Applied Physics of the Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

Submitted 11 April 2024

Resubmitted 24 April 2024

Accepted 24 April 2024

DOI: 10.31857/S1234567824110041, EDN: PFIGBB

1. Introduction. Quantum memory [1] is a key element for developing modern quantum technologies and most importantly long range quantum communication [2]. One of the more promising media for implementing quantum memory protocols are inorganic crystals doped with rare earth ions [3, 4]. They have several key advantages, including, most notably, their long coherence times [5]. There are different approaches to implementing quantum memory in such media, using, for example, electromagnetically induced transparency [6, 7], controlled and reversible inhomogeneous broadening (CRIB) [8, 9] or revival of silent echo (ROSE) [10, 11].

In the present paper we choose the atomic frequency comb (AFC) protocol [12] for implementing our quantum memory. This protocol relies on creating a periodic structure within the inhomogeneously broadened optical transition. When a pulse with a spectral width slightly lower than the structure width is sent into the media, it is absorbed (stored) [13] and reemitted (recalled) after a time inversely proportional to the structure period. There are variations of the protocol capable of increasing the storage time and performing on demand readout [12]. The AFC protocol offers high efficiency, large multimode capacity [14] and a relative ease of experimental implementation.

In order to realize the quantum memory we use an isotopically pure Y^7LiF_4 crystal (containing 99.7% of ^7Li) doped with Nd ions (containing 96.5% of $^{143}\text{Nd}^{3+}$) that is cooled down to cryogenic temperatures. Nd ions in this crystal have a relatively strong working transition with the wavelength of around 867 nm lying in the optical fiber transparency window. Optical transitions in isotopically pure host crystals have small inhomogeneous broadening (around 100 MHz for our crystal) and such crystals also demonstrate longer population relaxation and spin coherence times.

Previously we studied the properties of quantum memory in this media using classical bright pulses [15, 16]. The present work is dedicated to implementing a quantum memory at the single photon level. Going down to single photon level is essential for various applications in quantum information science that involve storage of entanglement, e.g. quantum repeaters [17, 18].

2. Experiment. We use the following experimental setup. A 5 mm long $^{143}\text{Nd}^{3+}:\text{Y}^7\text{LiF}_4$ crystal with the Nd dopant concentration of 0.005 at. %, cut along the c crystallographic axis, is placed into an optical cryostat cooling the sample down to around 4 K. A single frequency Ti:Sapphire laser is used to address one of the hyperfine components of the Nd ion $^4\text{I}_{9/2}(1) \rightarrow ^4\text{F}_{3/2}(1)$ transition (~ 867 nm wavelength). The crystal is placed so that the c axis is along the light propagation direction. In order to implement the comb burning sequence we use an acousto optical modulator.

One of the difficulties on the path towards implementing quantum memory at the single photon level is noise. The main source of noise is the fluorescence of the ion population on the upper levels that is excited during the comb burning sequence. The fluorescence decays with time, so one of the ways to reduce this noise is to introduce a delay between the creation of the AFC and sending the storage pulses [19]. The downside of this approach is that the comb degrades due to the ground state population relaxation and the memory efficiency decreases with time.

We measure this fluorescence and find that under our experimental conditions within 5 ms it decays to acceptable ~ 65 counts per second (2.5 times higher than the dark count rate). We also measure the dependence of the memory efficiency on the delay after the burning sequence. These measurements are performed in the “bright” pulse regime and they show that in 5 ms (we choose this delay for the further single photon level experiments) the efficiency decreases twofold from the initial value of around 13%.

¹⁾e-mail: rinat@ipfran.ru

In order to observe the memory at the single photon level we use a combination of an optical chopper and a shutter to protect the single photon detectors during the comb burning sequence. Afterwards these shutters are opened and we send a set of 100 short (duration of 20 ns) pulses separated by $10\ \mu\text{s}$ into the memory. Each pulse is weakened by filters so that it contains ~ 0.98 photons on average. At the delay of ~ 60 ns after the input pulse (corresponding to the 16 MHz comb period) we observe the echo signal (see Fig. 1). The efficiency at the single photon level is around 6.4 % which is comparable to the results observed with the classical “bright” pulses. The signal to noise ratio in our experiment is around 3 and mostly limited by the leftover fluorescence from the comb burning sequence.

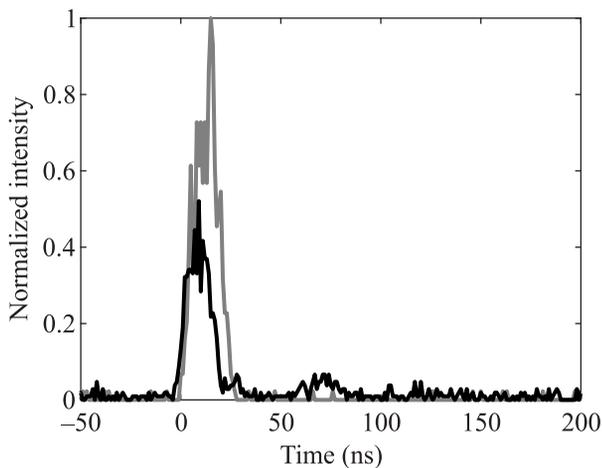


Fig. 1. Echo signal – black line. The grey line shows the input pulse

3. Conclusion. In an isotopically pure $^{143}\text{Nd}^{3+}:\text{Y}^7\text{LiF}_4$ crystal we demonstrate the possibility of creating a single photon level quantum memory based on the atomic frequency comb protocol. We perform storage and readout of the weakened laser pulses with the average photon number of around 1. The resulting efficiency of 6.4% is comparable to the memory efficiency for the “bright” pulses.

Funding. We are grateful for the support by the Center of Excellence “Center of Photonics” funded by The Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation, contract # 075-15-2022-316.

Conflict of interest. The authors of this work declare that they have no conflicts of interest.

This is an excerpt of the article “Single-photon level quantum memory in an isotopi-

cally pure $^{143}\text{Nd}^{3+}:\text{Y}^7\text{LiF}_4$ crystal”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364024601167

1. K. Heshami, D. G. England, P. C. Humphreys, P. J. Bustard, V. M. Acosta, J. Nunn, and B. J. Sussman, *J. Mod. Opt.* **63**, 20 (2016).
2. A. A. Kalachev, *Bull. Lebedev Phys. Inst.* **50**, S1312 (2023).
3. C. W. Thiel, T. Bottger, and R. L. Cone, *J. Lumin.* **131**, 353 (2011).
4. M. Guo, S. Liu, W. Sun, M. Ren, F. Wang, and M. Zhong, *Front. Phys.* **18**, 21303 (2023).
5. M. Zhong, M. P. Hedges, R. L. Ahlefeldt, J. G. Bartholomew, S. E. Beavan, S. M. Wittig, J. J. Longdell, and M. J. Sellars, *Nature* **517**, 177 (2015).
6. G. Heinze, C. Hubrich, and T. Halfmann, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 033601 (2013).
7. J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, and N. B. Manson, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 063601 (2005).
8. S. A. Moiseev, V. F. Tarasov, and B. S. Ham, *J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt.* **5**, S497 (2003).
9. M. Hedges, J. Longdell, Y. Li, and M. J. Sellars, *Nature* **465**, 1052 (2010).
10. V. Damon, M. Bonarota, A. Louchet-Chauvet, T. Chaneliere, and J.-L. Le Gouet, *New J. Phys.* **13**, 093031(2011).
11. M. M. Minnegaliev, K. I. Gerasimov, and S. A. Moiseev, *JETP Lett.* **117**, 865 (2023).
12. M. Afzelius, C. Simon, H. de Riedmatten, and N. Gisin, *Phys. Rev. A* **79**, 052329 (2009).
13. E. Z. Cruzeiro, A. Tiranov, J. Lavoie, A. Ferrier, P. Goldner, N. Gisin, and M. Afzelius, *New J. Phys.* **20**, 053013 (2018).
14. M. Bonarota, J.-L. Le Gouet, and T. Chaneliere, *New J. Phys.* **13**, 013013 (2011).
15. R. A. Akhmedzhanov, L. A. Gushchin, A. A. Kalachev, S. L. Korableva, D. A. Sobgayda, and I. V. Zelensky, *Laser Phys. Lett.* **13**, 015202 (2016).
16. R. A. Akhmedzhanov, L. A. Gushchin, A. A. Kalachev, N. A. Nizov, V. A. Nizov, D. A. Sobgayda, and I. V. Zelensky, *Laser Phys. Lett.* **13**, 115203 (2016).
17. H.-J. Briegel, W. Dur, J. I. Cirac, and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5932 (1998).
18. X. Liu, J. Hu, and Z.-F. Li, *Nature* **594**, 41 (2021).
19. I. Usmani, C. Clausen, F. Bussieres, N. Sangouard, M. Afzelius, and N. Gisin, *Nature Photon* **6**, 234 (2012).

Источники одиночных фотонов внутри пузырьков на гомо-интерфейсе слоев гексагонального нитрида бора

А. В. Грициенко^{+*1)}, М. В. Пугачев⁺, М. О. Аврамчиков^{+×}, А. Г. Витухновский^{+*}, А. Ю. Кунцевич^{+°}

⁺Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^{*}Московский физико-технический институт (государственный университет), 141700 Долгопрудный, Россия

[×]Российский университет дружбы народов, 117198 Москва, Россия

[°]Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 4 апреля 2024 г.

После переработки 27 апреля 2024 г.

Принята к публикации 29 апреля 2024 г.

Существует небольшое количество материалов, которые при комнатной температуре могут содержать источники одиночных фотонов – необходимые элементы квантовых коммуникаций. Одним из таких материалов является гексагональный нитрид бора. В данной работе исследуются механически собранные гомоструктуры из двух пластин нитрида бора. На интерфейсе между этими пластинами образуются микропузырьки из адсорбированных остатков молекул воды и углеродных соединений. После высокотемпературного отжига образцов в областях микропузырьков формируются стабильные однофотонные источники, излучающие в видимом и ближнем инфракрасном диапазонах при комнатной температуре. Обнаруженное явление открывает путь к созданию стабильных излучателей контролируемым образом с помощью сборки гомоструктур.

DOI: 10.31857/S1234567824110053, EDN: MULXXX

Введение. Источники в твердых телах, испускающие одиночные фотоны, могут являться элементами квантовой связи [1–3] и использоваться в микроскопии сверхвысокого разрешения [4]. Исследование таких одиночных источников в кристаллах также представляет интерес для лазерных приложений [5, 6] и сенсоров [1]. Основной характеристикой источника одиночных фотонов является их высокая “чистота”, которая определяется по величине корреляционной функции второго порядка при нулевой задержке. В дополнение к этому свойству, для различных приложений требуется, чтобы однофотонный источник обладал достаточной интенсивностью излучения, стабильной во времени работой [7, 8], а в некоторых случаях способен испускать фотоны, которые в высокой степени неразличимы друг от друга [2, 9]. Другим ключевым требованием является контролируемое формирование однофотонных излучателей на подложке для дальнейшего соединения их с оптическими элементами [10, 11].

Среди материалов, в которых могут содержаться стабильно работающие при комнатной температуре источники одиночных фотонов, выделяют алмаз

[12–14] и в последнее время гексагональный нитрид бора [15, 16]. Возникновение излучателей в гексагональном нитриде бора (hBN) и их использование как источников одиночных фотонов в последнее время активно обсуждается в литературе [17–19]. Установлено, что излучатели имеют различный спектральный состав, яркость и фотостабильность [20, 21].

Для квантовых приложений необходима планарная масштабируемая технология создания однофотонных источников света. Потенциал нитрида бора связан с хорошо отработанной технологией формирования больших слоев hBN методами химического осаждения из газовой фазы [22, 23] и сборкой этих слоев на различных подложках [24–26]. Также hBN интересен тем, что является единственным ван-дер Ваальсовым материалом, в котором однофотонные источники существуют при комнатной температуре [15]. Для формирования излучателей в hBN использовались различные способы обработки: лазерная абляция [27], воздействие электронным или ионным пучком [28–30], высокотемпературный отжиг [31], обработка в озоне [32], локальное воздействие зондом атомно-силового микроскопа [33], а также комбинации этих воздействий. При таком разнообразии методов формирования и раз-

¹⁾e-mail: grits_alex@rambler.ru

бросе свойств излучателей выделить ключевой фактор воздействия, необходимого для их формирования, – непростая задача.

На сегодняшний момент в литературе нет понимания атомной структуры большинства наблюдаемых излучателей в гексагональном нитриде бора. Ряд исследователей предполагают, что в формировании излучающих центров участвует углерод, атомы которого могут внедряться в кристаллическую структуру нитрида бора в процессе синтеза из углеродных примесей или прекурсоров [34, 35], либо напрямую в результате ионной имплантации [36].

В данной работе, для того чтобы установить роль углерода в формировании излучающих центров в гексагональном нитриде бора, мы воспользовались двумя простыми обстоятельствами: (i) в нормальных условиях на любой поверхности сорбируется слой воды и органических веществ [37, 38]; (ii) при приведении двух ван-дер Ваальсовых чешуек в контакт, происходит прилипание с эффектом самоочистки поверхности, при этом вода и другие вещества собираются в микропузырьки [39, 40].

Мы исследовали гомоструктуры из двух слоев нитрида бора, в которых самопроизвольно образуются микропузыри. Термическая обработка в кислородосодержащей среде полученных гомоструктур привела к образованию однофотонных излучателей непосредственно в областях, в которых сформировались пузырьки. Данные излучатели обладали высокой интенсивностью люминесценции, для которой не наблюдалась деградация в процессе оптических измерений. Спектральный отклик варьировался от излучателя к излучателю, и отдельные излучатели имели максимумы люминесценции в районе 550–750 нм. Наши результаты показывают, что формирование подобных излучателей связано с присутствием углеродных соединений и наличием локальных напряжений в нитриде бора.

Изготовление образцов. Чешуйки гексагонального нитрида бора были получены на полированных кремниевых пластинах методом стандартного механического отщепления при помощи скотча. Клейкая лента с кристаллом hBN прижималась к предварительно нагретой до температуры 85 °C подложке в течение 2 минут, после чего плавно отсоединялась со скоростью около 1 мм/с. В результате чешуйки hBN отрывались от клейкой ленты и оставались на подложке. Для удаления остатков клея, подложка обрабатывалась в кислородной плазме в течение 30 с при мощности – 50 мВт и давлении – $2 \cdot 10^{-1}$ мбар, а также промывалась ацетоном, изопропанолом и деионизированной

водой. Для позиционирования на образце использовалась система координатных меток, которая была заранее изготовлена на кремниевой пластине с помощью оптической литографии [41] и термического напыления титана.

Поиск подходящих чешуек hBN на подложке проводился визуально, с помощью оптического микроскопа. Отбирались чешуйки с латеральным размером несколько десятков микрометров однородного цвета без деформаций и трещин. Толщина чешуек предварительно оценивалась по цвету самой чешуйки: рассеянный цвет чешуйки зависит от ее толщины и может быть определен с точностью в несколько десятков нанометров [42]. Для более точной характеристики толщин hBN использовался атомно-силовой микроскоп (Solver Pro M, NT-MDT) в полуконтактной моде.

Сборка гомоструктур hBN была выполнена на самодельной установке с помощью метода сухого переноса [43]. Для этого использовался полимерный штамп из полидиметилсилоксана (PDMS) и полипропиленкарбоната (PPC). Чешуйка hBN переносилась на полимерный штамп при температуре 40 °C и опускалась со штампа на другую чешуйку hBN при 80 °C.

При сборке структур образуются пузырьки (см. рис. 1), которые формируются как в местах, где нижняя чешуйка имеет деформации, остаточные загрязнения и “вздутия”, так и в случайных местах. Образование пузырьков в случайных местах часто возникает при сборке гомо- и гетероструктур и наблюдалось неоднократно в литературе [44, 45]. Считается, что основным фактором, вызывающим формирование таких пузырьков, является скопление воздуха и воды между слоями, которые не смогли высвободиться через границы при сборке. После сборки подложка с гомоструктурами отжигалась в воздушной атмосфере при нормальном давлении и температуре 800 °C на протяжении одного часа.

Оптические измерения. Образцы с гомоструктурами hBN были исследованы на сканирующем конфокальном микроскопе, схема которого представлена на рис. 2. Люминесценция излучателей в hBN возбуждалась с помощью непрерывного твердотельного лазера с диодной накачкой (DPSS) и длиной волны 532 нм. Излучение от лазера фокусировалось с помощью микрообъектива (100X, NA = 0.95). Сигнал люминесценции от образца с помощью дихроичного зеркала проходил через точечную диафрагму (75 мкм) и затем регистрировался лавинным фотодиодом. Все измерения проводились при температуре около 24 °C.

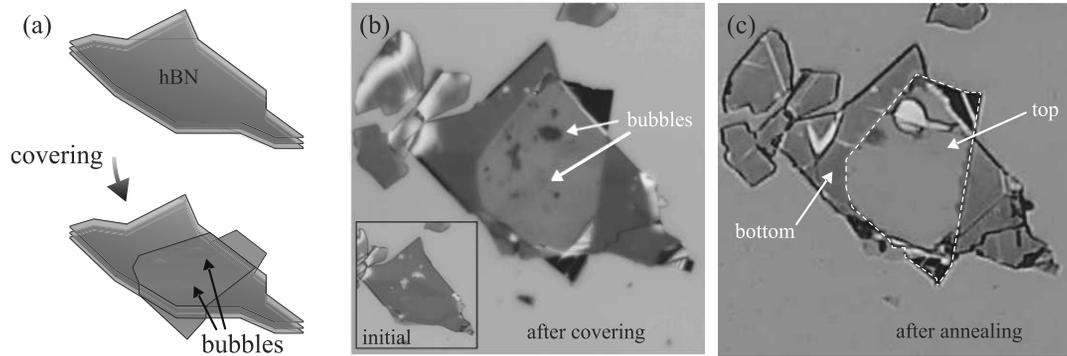


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Принципиальная схема сборки гомоструктур. Оптические фотографии: гомоструктура hBN/hBN до (b) и после (c) высокотемпературного отжига. Вставка на рисунке (b): нижняя чешуйка hBN до сборки

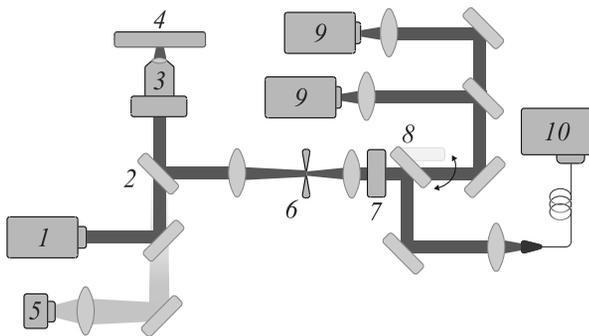


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сканирующий конфокальный микроскоп с интерферометром Хэнбри Брауна и Твисса: 1 – лазер накачки (532 нм); 2 – дихроическое зеркало; 3 – микрообъектив (100X, NA = 0.95) на пьезостоліке; 4 – столик с образцом; 5 – светодиод; 6 – точечная диафрагма; 7 – оптический интерференционный фильтр; 8 – поворотное зеркало; 9 – лавинные фотодиоды; 10 – волоконный спектрометр

Результаты и обсуждение. Сканирование областей с пузырями в гомоструктурах hBN выявило наличие ярко люминесцирующих пятен вдали от границ чешуек (рис. 3). Примечательно, что фотолюминесценция видна именно из областей, которые соответствуют микропузырям, как следует из изображения, полученного с помощью оптического профилометра (CHOTEST SuperView W1). Отметим, что до отжига данные области чешуек hBN не содержали аналогичных стабильных во времени излучающих пятен. Как ранее было сказано, образование пузырей при укладке чешуек hBN связано с наличием остатков воздуха, молекул воды и органики, которые оказываются зажатыми между двух отдельных чешуек. Наличие деформаций и напряжений в кристаллической структуре пластин hBN при последующем отжиге приводит к перераспределению молекул вдоль образца и накоплению их в отдельные полости. Характерные латеральные размеры образующихся по-

лостей составляли до 10 мкм, а толщина, как видно из рис. 3с, – около 2–6 нм, более крупные до 100 нм.

С помощью измерений на спектрометре (Optosky ATR 6500) были получены спектры ФЛ отдельных пятен на образце. На рисунке 4а представлены спектры для областей, обозначенных на рис. 3b и d как P1 и P2. Данные области в дальнейшем будем обозначать как излучатели P1 и P2. Для излучателя P1 присутствует набор линий в диапазоне от 550 до 800 нм. При этом в спектре у P2 присутствуют линии на длинах волн 597 и 644 нм, которые совпадают с отдельными линиями излучателя P1. Ширина линии на полувысоте для P2 достигает 4 нм на длине волны 597 нм, а для P1 – до 10 нм на длине волны 644 нм. Также во всей области наложения двух чешуек hBN видна слабая люминесценция с широким спектром излучения (рис. 4а, серая кривая).

Для того чтобы выяснить, какова интенсивность люминесценции отдельного излучателя, была измерена кривая насыщения для P1 (рис. 4b). Экспериментально полученная зависимость интенсивности излучения на длине волны 644 нм от мощности накачки $I(P)$ была аппроксимирована выражением

$$I(P) = I_{\infty} \frac{P}{P_{\text{sat}} + P} + bP, \quad (1)$$

где I_{∞} – интенсивность насыщения излучения при $P \rightarrow \infty$, P_{sat} – мощность насыщения, b – коэффициент, отвечающий за вклад фонового излучения. Зависимость интенсивности люминесценции от мощности лазерной накачки была измерена с использованием дополнительного полосового фильтра с шириной пропускания 20 нм и центром на 650 нм. Скорректированные значения интенсивности излучения без вклада фонового излучения для P1 отдельно представлены синей кривой, а вклад фонового излучения – серой кривой (рис. 4b). Как следует из рис. 4b,

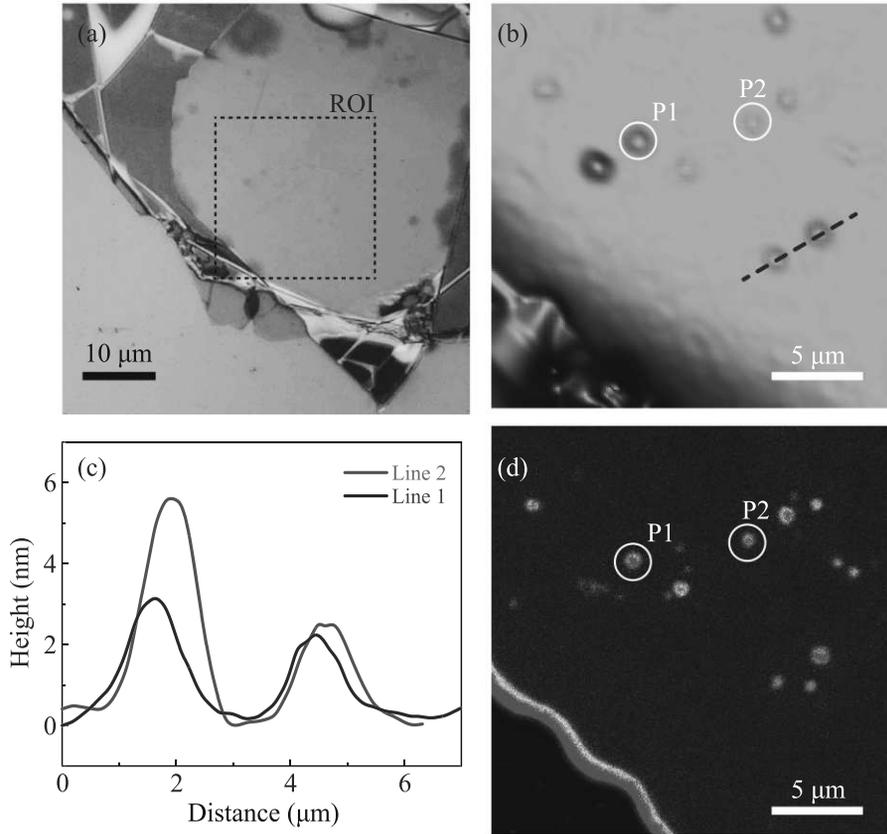


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Оптическая фотография гомоструктуры hBN. Квадратом обозначена область исследования (*region of interest*, ROI). (b) – Карта сканирования оптическим профилометром области, обозначенной ROI на рисунке (a). (c) – Высотные профили сканирования пузырей. Кривой Line 2 соответствует область, обозначенная на рисунке (b) пунктирной линией. (d) – Люминесцентная карта сканирования на конфокальном микроскопе области, обозначенной ROI на рисунке (a). Кружками на рисунках (b) и (d) обозначены области, которые проявляют однофотонную статистику

вклад фонового излучения значителен, особенно при мощности накачки больше 0.5 мВт. Из полученных данных для P1 интенсивность насыщения составляет $I = 10^5$ отсчетов в секунду. Данная величина сопоставима с интенсивностями люминесценции различных излучателей на основе центров в алмазах и ранее исследованных излучателей в нитриде бора [46, 47].

Для определения фотонной статистики излучателей использовалась интерференционная схема Хэнбери Брауна и Твисса (ХБТ) с двумя детекторами, как описано в работе [48]. С помощью интерферометра ХБТ измерялась автокорреляционная функция второго порядка $g^{(2)}(\tau)$. На рисунках 4с и d представлены корреляционные функции с учетом вклада фонового излучения ($g_{\text{софт}}^{(2)}(\tau)$) согласно выражению [49, 50]:

$$g_{\text{софт}}^{(2)}(\tau) = \frac{g_{\text{exp}}^{(2)}(\tau) - (1 - \rho^2)}{\rho^2}, \quad (2)$$

где $g_{\text{exp}}^{(2)}(\tau)$ – экспериментально измеренная автокорреляционная функция второго порядка, при этом

значение $\rho = S/(S + B)$, где S и B – интенсивности люминесценции излучателя и фона. Значения S и B были получены из измерения кривой насыщения. Таким образом, при мощности накачки 0.3 мВт (плотность мощности ~ 0.2 МВт/см²) значение ρ составило 0.755. Полученные скорректированные функции $g^{(2)}(\tau)$ были аппроксимированы в модели с использованием трех уровней энергий [51]:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - C_0 e^{\frac{|\tau|}{\tau_0}} + C_1 e^{\frac{|\tau|}{\tau_1}}, \quad (3)$$

где τ_0 и τ_1 – времена релаксации функции $g^{(2)}(\tau)$, ассоциированные с временем жизни возбужденного и метастабильного уровней, C_0 и C_1 – амплитуды. Из рисунков 4с и d видно, что излучатели демонстрируют провал функции $g^{(2)}(\tau = 0)$ меньше 0.5 при нулевой временной задержке. Таким образом, можно говорить, что данные излучатели P1 и P2 проявляют свойства однофотонного излучателя.

При этом в спектре ФЛ видно, что для отдельных излучателей может присутствовать несколько спек-

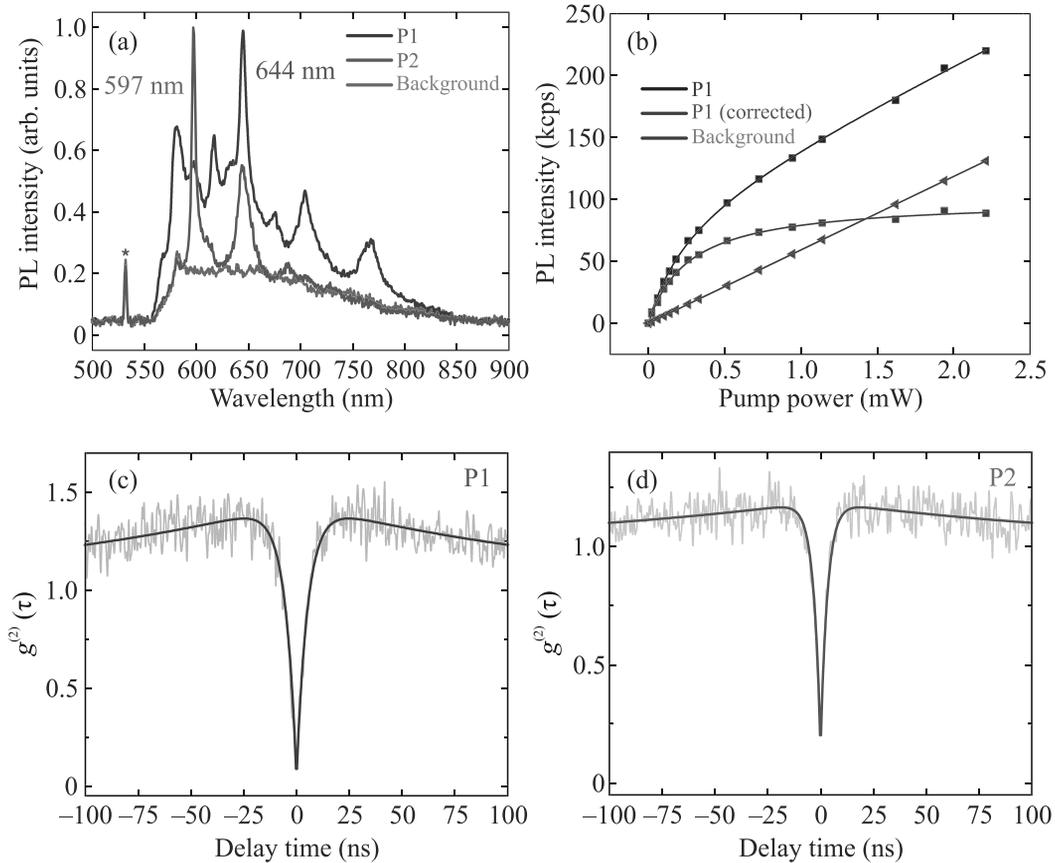


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Спектры ФЛ излучателей из областей P1 и P2, обозначенных на рис. 2d. Звездочкой отмечена линия остаточного излучения лазерной накачки 532 нм. (б) – Зависимость интенсивности ФЛ излучателя P1 (фиолетовые квадраты, без коррекции) от мощности лазерной накачки. Кривая насыщения с учетом фонового излучения представлена синими квадратами и вклад фонового излучения – серыми треугольниками. Сплошными прямыми приведены аппроксимирующие зависимости согласно модели, описанной в тексте. Интенсивность излучения выражена в килоотсчетах в секунду (кcps). Значения параметров аппроксимации для синей зависимости составляют $I_{\infty} = (100 \pm 1) \cdot 10^3$ отсчетов в секунду и $P_{\text{sat}} = 270 \pm 10$ мкВт. (с), (d) – Автокорреляционные функции второго порядка для излучателей P1 (644 нм) и P2 (597 нм) с учетом фонового излучения. Значения провала $g^{(2)}(0)$ функции вблизи нулевой временной задержки и времени релаксации τ_0 в результате аппроксимации экспериментальных данных составляют $g^{(2)}(0) = 0.04 \pm 0.04$ и $\tau_0 = 5.3 \pm 0.2$ нс для (с); $g^{(2)}(0) = 0.14 \pm 0.04$ и $\tau_0 = 3.3 \pm 0.2$ нс для (d). Для излучателя P1 использовался полосовой фильтр 650 нм, а для P2 – 590 нм

тральных линий в диапазоне от 570 до 800 нм. Наличие нескольких линий может говорить о разных явлениях. С одной стороны, серия спектральных линий может быть связана со скоплением ярких и фотостабильных излучателей в одной малой области, ограниченной диаметром 0.5 мкм. С другой стороны, люминесценция может быть связана с излучением органических молекул на поверхности hBN [52, 53]. Возможен механизм люминесценции аналогичный излучению донор-акцепторных пар, обнаруженный ранее [54–56].

Времена релаксации возбужденных состояний выявленных излучателей, в том числе и на разных длинах волн, лежат в диапазоне 2–5 нс. При этом из-

за присутствия фонового излучения в кривых затухания встречается компонента с более коротким временем, лежащим в диапазоне 0.3–0.5 нс.

Дополнительно было проведено сравнение спектров излучения вблизи крупных пузырей и вдали от пузырей на чешуйке hBN (рис. 5). Для области чешуйки hBN без пузырей, видна характерная линия комбинационного рассеяния кристаллической структуры hBN ($\sim 1365 \text{ см}^{-1}$). Данная линия соответствует высокочастотной моде E_{2g} и связана со смещениями атомов бора и азота в противоположных направлениях в каждой плоскости hBN [57, 58]. В то же время, спектр комбинационного рассеяния для случая вблизи границы пузыря демонстрирует наличие

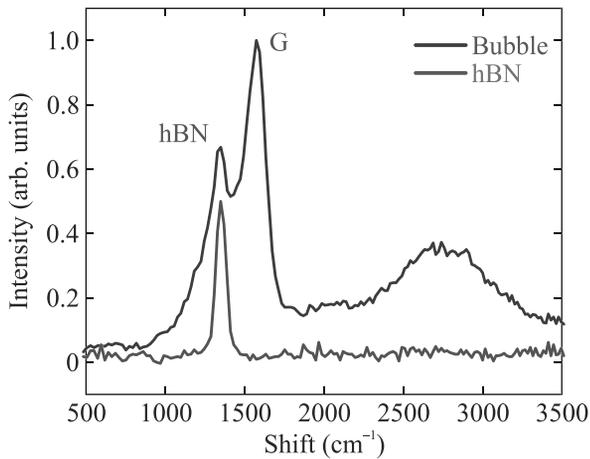


Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектры комбинационного рассеяния из различных областей чешуйки hBN. Синяя кривая получена из области вблизи границы микропузыря

дополнительного максимума ($\sim 1580 \text{ cm}^{-1}$), который близок к комбинационному рассеянию графита (G – пик), а также аморфного углерода и графена [59, 60]. Это рассеяние отвечает за колебания sp^2 -связанных атомов углерода в одной плоскости [61]. Мы полагаем, что данная особенность связана с наличием остатков углеродных соединений в промежутках между пластинами hBN при сборке гомоструктур. Данные углеродные соединения могут приводить к появлению наблюдаемого в эксперименте фонового излучения с временем высвечивания менее 0.5 нс в кривых затухания и с широкой спектральной полосой люминесценции [62, 63].

В процессе высокотемпературного отжига углеродные соединения могут разлагаться на различные простейшие элементы, в том числе и углерод. Отдельные атомы углерода при высокой температуре могут встраиваться в кристаллическую решетку hBN, образуя излучающие дефекты [64, 65]. Вероятность этого внедрения, по-видимому, связана как с объемом углеродного вещества, находящегося в контакте с поверхностью hBN, так и с наличием локальных деформаций, например, в местах образования пузырей.

В связи с полученными данными, является перспективным контролируемое создание излучателей в hBN при использовании структурированных подложек для потенциального формирования пузырей между слоями hBN в заданных местах [66, 67].

Закключение. Обнаружены фотостабильные излучатели в гомоструктурах на основе двух сложенных пластин hBN, которые создавались с помощью разработанной технологии сухой сборки. Выявлен-

ные излучатели локализуются внутри микропузырей и вызваны наличием остатков углеродных соединений, а их люминесценция активируется в результате высокотемпературного отжига. Данные излучатели испускают одиночные фотоны, что подтверждается наличием провала автокорреляционной функции второго порядка меньше 0.5 при нулевой временной задержке. Отдельные излучатели имеют ширину линий на полувысоте до 4 нм, а в насыщении могут достигать интенсивности излучения порядка 10^5 фотонов в секунду. Для квантовых технологий необходимо детерминированное расположение источников одиночных фотонов, функционирующих при комнатной температуре, что может быть достигнуто за счет обнаруженного в данной работе формирования излучающих пузырей при использовании структурированных подложек.

Авторы благодарят Н. С. Курочкина (Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН) за полезные обсуждения. Изготовление образцов осуществлялось на оборудовании Центра коллективного пользования Физического института им. П. Н. Лебедева РАН.

Финансирование. Работа была поддержана грантом Российского научного фонда (проект # 22-19-00324).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. A. Arzhanov, A. Savostianov, K. Magaryan, K. Karimullin, and A. Naumov, *Photonics Russia* **16**, 96 (2022)
2. М. Рахлин, К. Беляев, Г. Клишко, И. Седова, М. Кулагина, Ю. Задиранов, С. Трошков, Ю. Гусева, Я. Терентьев, С. Иванов, *Письма в ЖЭТФ* **109**, 147 (2019).
3. Е. Попов, В. Решетов, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 846 (2020).
4. И. Ерёмчев, М. Еремчев, А. Наумов, *Успехи физических наук* **189**, 312 (2019).
5. В. Дресвянский, С. Бойченко, С. Зилов, А. Ракевич, А. Войтович, Е. Мартынович, *Известия Российской академии наук. Серия физическая* **80**, 97 (2016).
6. В. Дресвянский, А. Ищенко, Е. Мартынович, С. Мурзин, А. Черных, В. Паперный, *Известия Российской академии наук. Серия физическая*, **86**, 1374 (2022).
7. C. Morrison, R. Pousa, F. Graffitti, Z. Koong, P. Barrow, N. Stoltz, D. Bouwmeester, J. Jeffers, D. Oi, and B. Gerardot, *Nat. Commun.* **14**, 3573 (2023).
8. A. Al-Juboori, H. Zeng, M. Nguyen, X. Ai, A. Laucht, A. Solntsev, M. Toth, R. Malaney, and I. Aharonovich, *Advanced Quantum Technologies* **6**, 2300038 (2023).

9. А. Галимов, М. Рахлин, Г. Климов, Ю. Задиранов, Ю. Гусева, С. Трошков, Т. Шубина, А. Торопов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 248 (2021).
10. А. Витухновский, Р. Звагельский, Д. Колымагин, А. Писаренко, Д. Чубич, *Известия Российской академии наук. Серия физическая* **84**, 927 (2020).
11. A. Vitukhnovsky, D. Kolymagin, A. Gritsienko, I. Dushkin, A. Pisarenko, A. Prokhodtsov, M. Danilkin, and G. Prutskov, *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **87**, 87 (2023).
12. Е. Екимов, М. Кондрин, *Успехи физических наук* **187**, 577 (2017).
13. A. Romshin, O. Kudryavtsev, E. Ekimov, A. Shkarin, D. Rattenbacher, M. Rakhlin, A. Toropov, and I. Vlasov, *JETP Lett.* **112**, 13 (2020).
14. A. Romshin, A. Gritsienko, A. Ilin, R. Bagramov, S. Filonenko, A. Vitukhnovsky, and I. Vlasov, *St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics* **16**, 193 (2023).
15. S. Vasconcellos, D. Wigger, U. Wurstbauer, A. Holleitner, R. Bratschitsch, and T. Kuhn, *Phys. Status Solidi (b)* **259**, 2100566 (2022).
16. Ю. Петров, О. Гогина, О. Вывенко, *Журнал технической физики* **92**, 52778 (2022).
17. J. Caldwell, I. Aharonovich, G. Cassabois, J. Edgar, B. Gil, and D. Basov, *Nat. Rev. Mater.* **4**, 552 (2019).
18. A. Sajid, M. Ford, and J. Reimers, *Rep. Prog. Phys.* **83**, 044501 (2020).
19. A. Shaik and P. Palla, *Sci. Rep.* **11**, 12285 (2021).
20. S. Castelletto, F. Inam, S. Sato, and A. Boretti, *Beilstein J. Nanotechnol.* **11**, 740 (2020).
21. I. Aharonovich, J. Tétienne, and M. Toth, *Nano Lett.* **22**, 9227 (2022).
22. Y. Shi, C. Hamsen, X. Jia, K. Kim, A. Reina, M. Hofmann, A. Hsu, K. Zhang, H. Li, and Z. Juang, *Nano Lett.* **10**, 4134 (2010).
23. S. Liu, R. He, L. Xue, J. Li, B. Liu, and J. Edgar, *Chem. Mater.* **30**, 6222 (2018).
24. M. Yankowitz, Q. Ma, P. Jarillo-Herrero, and B. LeRoy, *Nat. Rev. Phys.* **1**, 112 (2019).
25. T. Iwasaki, K. Endo, E. Watanabe, D. Tsuya, Y. Morita, S. Nakaharai, Y. Noguchi, Y. Wakayama, K. Watanabe, and T. Taniguchi, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 8533 (2020).
26. I. Juma, G. Kim, D. Jariwala, and S. Behura, *IScience* **24**, 103374 (2021).
27. L. Gan, D. Zhang, R. Zhang, Q. Zhang, H. Sun, Y. Li, and C. Ning, *ACS Nano* **16**, 14254 (2022).
28. J. Ziegler, R. Klaiß, A. Blaikie, D. Miller, V. Horowitz, and B. Alemán, *Nano Lett.* **19**, 2121 (2019).
29. C. Fournier, A. Plaud, S. Roux, A. Pierret, M. Rosticher, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Buil, X. Quélin, and J. Barjon, *Nat. Commun.* **12**, 3779 (2021).
30. G. Liu, X. Wu, P. Jing, Z. Cheng, D. Zhan, Y. Bao, J. Yan, H. Xu, L. Zhang, and B. Li, *Adv. Opt. Mater.* **12**, 2302083 (2023).
31. Y. Chen, C. Li, S. White, M. Nonahal, Z. Xu, K. Watanabe, T. Taniguchi, M. Toth, T. Tran, and I. Aharonovich, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13**, 47283 (2021).
32. C. Li, Z. Xu, N. Mendelson, M. Kianinia, M. Toth, and I. Aharonovich, *Nanophotonics* **8**, 2049 (2019).
33. X. Xu, Z. Martin, D. Sychev, A. Lagutchev, Y. Chen, T. Taniguchi, K. Watanabe, V. Shalaev, and A. Boltasseva, *Nano Lett.* **21**, 8182 (2021).
34. X. Du, J. Li, J. Lin, and H. Jiang, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 021110 (2015).
35. H. Liu, N. Mendelson, I. Abidi, S. Li, Z. Liu, Y. Cai, K. Zhang, J. You, M. Tamtaji, and H. Wong, *ArXiv Preprint ArXiv:2110.04780* (2021).
36. N. Mendelson, D. Chugh, J. Reimers, T. Cheng, A. Gottscholl, H. Long, C. Mellor, A. Zettl, V. Dyakonov, and P. Beton, *Nat. Mater.* **20**, 321 (2021).
37. J. Albar, V. Korolkov, M. Baldoni, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Besley, and P. Beton, *J. Phys. Chem. C* **122**, 27575 (2018).
38. N. Ronceray, Y. You, E. Glushkov, M. Lihter, B. Rehl, T. Chen, G. Nam, F. Borza, K. Watanabe, and T. Taniguchi, *Nat. Mater.* **22**, 1236 (2023).
39. E. Khestanova, F. Guinea, L. Fumagalli, A. Geim, and I. Grigorieva, *Nat. Commun.* **7**, 12587 (2016).
40. S. Wakolbinger, F. Geisenhof, F. Winterer, S. Palmer, J. Crimmann, K. Watanabe, T. Taniguchi, F. Trixler, and R. Weitz, *2D Mater.* **7**, 035002 (2020).
41. M. Pugačev, A. Duleba, A. Galiullin, and A. Kuntsevich, *Micromachines* **12**, 850 (2021).
42. D. Golla, K. Chattrakun, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. LeRoy, and A. Sandhu, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 161906 (2013).
43. S. Martanov, N. Zhurbina, M. Pugačev, A. Duleba, M. Akmaev, V. Belykh, and A. Kuntsevich, *Nanomaterials* **10**, 2305 (2020).
44. E. Blundo, A. Surrente, D. Spirito, G. Pettinari, T. Yildirim, C. Chavarin, L. Baldassarre, M. Felici, and A. Polimeni, *Nano Lett.* **22**, 1525 (2022).
45. H. Lee, S. Sarkar, K. Reidy, A. Kumar, J. Klein, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. LeBeau, F. Ross, and S. Gradecak, *Nat. Commun.* **13**, 5000 (2022).
46. S. Lukishova and L. Bissell, *Quantum Photonics: Pioneering Advances and Emerging Applications* **217**, 103 (2019).
47. M. Dastidar, I. Thekkooden, P. Nayak, and V. Bhallamudi, *Nanoscale* **14**, 5289 (2022).
48. A. Gritsienko, A. Duleba, M. Pugačev, N. Kurochkin, I. Vlasov, A. Vitukhnovsky, and A. Kuntsevich, *Nanomaterials* **12**, 4495 (2022).
49. R. Brouri, A. Beveratos, J. Poizat, and P. Grangier, *Opt. Lett.* **25**, 1294 (2000).

50. R. Fishman, R. Patel, D. Hopper, T. Huang, and L. Bassett, *PRX Quantum* **4**, 010202 (2023).
51. A. Gritsienko, A. Matveev, N. Kurochkin, G. Voskanyan, D. Shcherbakov, D. Shtansky, and A. Vitukhnovsky, *ACS Applied Nano Materials*, **5**, 10462 (2022).
52. R. Smit, A. Tebyani, J. Hameury, S. Molen, and M. Orrit, *Nat. Commun.* **14**, 7960 (2023).
53. M. Neumann, X. Wei, L. Morales-Inostroza, S. Song, S. Lee, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Götzinger, and Y. Lee, *ACS Nano* **17**, 11679 (2023).
54. Q. Tan, J. Lai, X. Liu, D. Guo, Y. Xue, X. Dou, B. Sun, H. Deng, P. Tan, and I. Aharonovich, *Nano Lett.* **22**, 1331 (2022).
55. G. Melani, J. Guerrero-Felipe, A. Valencia, J. Krumland, C. Cocchi, and M. Iannuzzi, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **24**, 16671 (2022).
56. D. Pasternak, A. Romshin, R. Bagramov, A. Galimov, A. Toropov, D. Kalashnikov, V. Leong, A. Satanin, O. Kudryavtsev, and A. Chernev, *ArXiv Preprint ArXiv:2310.18822* (2023).
57. R. Geick, C. Perry, and G. Rupprecht, *Phys. Rev.* **146**, 543 (1966).
58. T. Kuzuba, K. Era, T. Ishii, and T. Sato, *Solid State Commun.* **25**, 863 (1978).
59. D. Tallant, T. Friedmann, N. Missert, M. Siegal, and J. Sullivan, *MRS Online Proceedings Library* **498**, 37 (1997).
60. S. Reich and C. Thomsen, *Philosophical Transactions of The Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical And Engineering Sciences* **362**, 2271 (2004).
61. А. Зиятдинов, *Вестник Дальневосточного отделения Российской академии наук* **214**, 27 (2020).
62. M. Berberan-Santos, A. Fedorov, J. Conde, C. Godet, T. Heitz, and J. Bouree, *Chem. Phys. Lett.* **319**, 113 (2000).
63. S. Sarkar, D. Gandla, Y. Venkatesh, P. Bangal, S. Ghosh, Y. Yang, and S. Misra, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 21278 (2016).
64. M. Onodera, M. Isayama, T. Taniguchi, K. Watanabe, S. Masubuchi, R. Moriya, T. Haga, Y. Fujimoto, S. Saito, and T. Machida, *Carbon* **167** 785 (2020).
65. Y. Gong, G. Shi, Z. Zhang, W. Zhou, J. Jung, W. Gao, L. Ma, Y. Yang, S. Yang, and G. You, *Nat. Commun.* **5**, 3193 (2014).
66. E. Yanev, T. Darlington, S. Ladyzhets, M. Strasbourg, C. Trovatiello, S. Liu, D. Rhodes, K. Hall, A. Sinha, and N. Borys, *Nat. Commun.* **15**, 1543 (2024).
67. H. Cheng and Y. Lu, *Microfluidics and Nanofluidics* **17**, 855 (2014).

Особенности нейтрализации быстрых протонов в углеводородном пеллетном облаке

О. А. Бахарева¹⁾, В. Ю. Сергеев, И. А. Шаров

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, 195251 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 12 апреля 2024 г.

После переработки 24 апреля 2024 г.

Принята к публикации 26 апреля 2024 г.

Для измерения высокоэнергетичной части функции распределения ионов по энергии в горячей плазме с помощью РСХ (Pellet Charge eXchange) диагностики необходимо знать зависимость от энергии E доли быстрых ионов $F_0(E)$ нейтрализующихся при пересечении пеллетного облака. С использованием экспериментальных и расчетных данных об испарении полистироловых макрочастиц в гелиотроне LHD проведен расчет $F_0(E)$ для протонов в углеводородном облаке в диапазоне энергий 50–1000 кэВ и при питч-углах $\geq 70^\circ$. При энергиях в диапазоне 50–200 кэВ необходимым становится учет ослабления потока нейтрализовавшихся протонов при многократных пересечениях облака. Потери энергии протонами вдоль траектории ограничивают снизу возможный диапазон РСХ измерений $E > 100$ кэВ. Необходимость контроля ионизационного состава и структуры облака ограничивает локализацию области обзора детектора нейтральных атомов в пределах ± 30 мм от положения макрочастицы вдоль магнитного поля. Это обуславливает необходимость совмещения оси инжекции с осью наблюдения NPA (Neutral Particle Analyser) для оптимальной геометрии РСХ измерений при использовании полистироловых макрочастиц.

DOI: 10.31857/S1234567824110065, EDN: LTJPBU

1. Введение. РСХ (Pellet Charge eXchange) диагностика является активным методом, позволяющим измерять распределение по энергии быстрых ионов: альфа-частиц, изотопов водорода при дополнительном нагреве с использованием ионно-циклотронного резонанса ICRH и/или пучками нейтральных атомов NBI [1, 2]. Мишенью для нейтрализации быстрых ионов фоновой плазмы с целью их последующей регистрации анализатором нейтральных частиц NPA (Neutral Particle Analyser) служит плотное нейтрально-плазменное облако вблизи испаряющейся макрочастицы из материала с малым зарядом ядра.

Доля нейтрализовавшихся на пеллетном облаке быстрых ионов $F_0(E)$ является важнейшим параметром диагностики. Она зависит от энергии ионов и пройденной ими интегральной толщины облака $S_{ncl} = \int n_{cl}(l)dl$, где $n_{cl}(l)$ – концентрации тяжелых частиц в облаке вдоль траектории l движения быстрой частицы. При реализации РСХ-диагностики до настоящего времени предполагалось, что: 1) применима “однопроходная” модель, т.е. в видимой детектором NPA части облака каждая из падающих на облако быстрых частиц проходит через него один раз, нейтрализуясь с вероятностью $F_0(E)$; 2) ларморов-

ский радиус быстрого иона много больше поперечного размера облака, а относительная потеря энергии и рассеяние быстрого иона в облаке малы; 3) ионизационный состав испарившихся частиц не меняется по облаку. При перезарядке быстрых протонов в облаке их равновесная нейтральная фракция рассчитывается в таком случае как [3]

$$F_0(E, S_{ncl}) = F_0^\infty(E) \cdot (1 - e^{-(\sigma_{01}(E) + \sigma_{10}(E))S_{ncl}}), \quad (1)$$

где σ_{10} и σ_{01} – суммарные сечения нейтрализации быстрого протона H^+ и потери электрона быстрым нейтральным атомом H^0 , вычисленные при некотором предполагаемом одинаковом по всему облаку ионизационном составе; $F_0^\infty(E) = 1/[1 + \sigma_{01}(E)/\sigma_{10}(E)]$. Из уравнения (1) видно, что при достаточно больших значениях S_{ncl} нейтральная фракция $F_0(E, S_{ncl})$ достигает своего “равновесного” значения $F_0^\infty(E)$, не зависящего от S_{ncl} . Использование в расчетах зависимости $F_0^\infty(E)$ существенно упрощает расшифровку спектров в РСХ диагностике. Следует отметить, что применение однопроходной модели и равновесной зависимости $F_0^\infty(E)$ оказывается не всегда правомерно. В работе [4] с помощью расчетов по методу Монте-Карло было проанализировано ослабление потока нейтрализовавшихся альфа-частиц с энергией до 4 МэВ за счет многократного пересечения ими литиевого пел-

¹⁾e-mail: o.bakhareva@spbstu.ru

летного облака (“многопроходная” модель). Ослабление было заметным при энергии-альфа частиц < 250 кэВ/нуклон.

В работах [3, 5, 6] была предложена и развита идея РСХ диагностики протонов с энергиями $E = 50\text{--}170$ кэВ при дополнительном ICRH и/или NBI нагреве на стеллараторе LHD, использующей в качестве нейтрализующей мишени облако макрочастицы из полистирола (C_8H_8). В работе [6] были сделаны расчеты зависимости $F_0^\infty(E)$ для протонов с энергиями $E = 50\text{--}1000$ кэВ в углеводородном облаке по однопроходной модели для разных предполагаемых усредненных ионизационных составов облака.

В экспериментах с инжекцией полистироловых макрочастиц в LHD [7–9] продемонстрировано существенное изменение ионизационного состава по облаку. Кроме того, из уравнения (1) следует, что при достаточно больших плотностях тяжелых частиц n_{cl} в облаке величина $F_0(E, S_{ncl})$ может достигать “равновесного” значения на небольшом участке dl траектории быстрой частицы внутри облака. В этом случае $F_0(E, S_{ncl}) \cong F_0^\infty(E)$ будет меняться вдоль траектории быстрой частицы и иметь значение на выходе из облака, соответствующее значениям $F_0^\infty(E)$ в периферийной части. Эти особенности процессов нейтрализации быстрых частиц в пеллетном облаке должны быть учтены при расчете $F_0(E)$.

В данной работе уточнена модель расчета зависимости $F_0(E)$ в облаке полистироловой макрочастицы с учетом имеющихся экспериментальных и расчетных данных о распределениях свечения углеводородных облаков в линиях H_β , CI , CI , CI , CI , распределениях температуры T_{cl} и концентрации электронов облака n_{cl} , а также о скорости испарения при инжекции таких макрочастиц в плазму гелиотрона LHD [7–9]. Результаты расчета использованы для формулирования диапазона параметров при РСХ измерениях функции распределения по энергии быстрых протонов с использованием полистироловых макрочастиц.

2. Схема РСХ измерений на гелиотроне LHD. Вид сверху на экваториальную плоскость установки вблизи порта 3-О показан на рис. 1. Полистироловая макрочастица с начальным диаметром $d_{pel} \approx 900$ мкм инжестируется вдоль большого радиуса с внешней стороны гелиотрона в его экваториальной плоскости. С помощью инжектора TESPEL она ускоряется до скоростей $v_p = (400\text{--}500)$ м/с в направлении центра установки [10]. Испарение происходит во внешней части плазменного шнура, как правило, на расстоянии, не менее половины его малого радиуса от магнитной оси. Для регистрации перезарядившихся частиц в порте 3-О располо-

жен НРА, имеющий возможность регулировки угла наблюдения.

Испаренное с поверхности макрочастицы вещество, испытывая последовательную ионизацию ($H^0 \rightarrow H^+$, $C^0 \rightarrow C^+ \rightarrow C^{2+} \rightarrow \dots$) разлетается вдоль магнитного поля и заполняет магнитную силовую трубку с характерным поперечным радиусом r_{cl} . На рисунке 1 цветом показаны области с доминирующими концентрациями соответствующих ионизационных состояний в облаке. Вблизи макрочастицы испаренное вещество движется вместе с ней. При этом, ионы испытывают ускорение против градиента магнитного поля из-за нарастающей поляризации облака в неоднородном магнитном поле LHD [11]. На рисунке 1 это показано нарастающим смещением удаленных частей облака от оси магнитной силовой трубки, на которой расположена макрочастица.

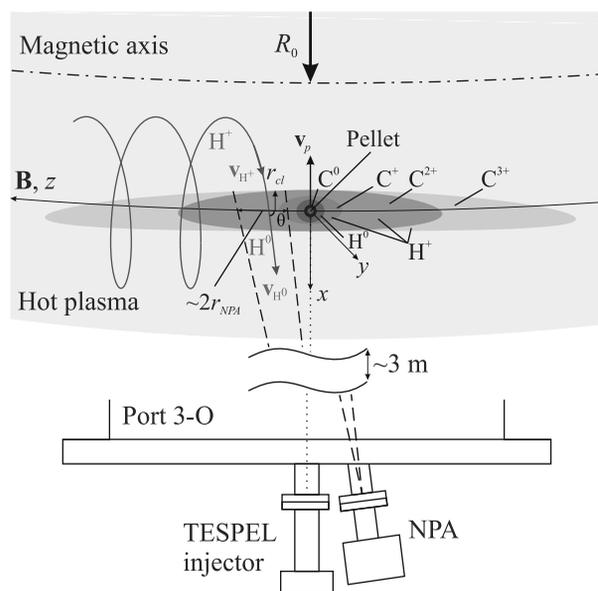


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема инжекции полистироловой макрочастицы и перезарядки быстрых протонов в углеводородном облаке РСХ-диагностики

3. Модель для вычисления доли нейтрализованных быстрых протонов. Как показано на рис. 1, быстрые протоны с энергией E , скоростью v_{H^+} и питч-углом θ пересекают облако и на каждом шаге ларморовской спирали могут нейтрализоваться с вероятностью $F_0(E)$. Не удерживаемые магнитным полем нейтральные атомы вылетают за пределы плазмы и могут быть зарегистрированы детектором НРА, измеряющим распределение быстрых частиц по E . Ось наблюдения НРА может быть расположена под углом θ к магнитному полю для регистра-

ции нейтральных атомов, образовавшихся при нейтрализации быстрых протонов с соответствующим питч-углом θ . В стационарном режиме, поток падающих на облако быстрых протонов в заданной области сформирован из частиц, прибывающих в нее из фоновой плазмы вдоль магнитного поля. Согласно однопроходной модели, $F_0(E)$ рассчитывается в приближении плоского и однородного по x потока быстрых частиц, которые в области обзора детектора однократно пересекают облако. Ось x перпендикулярна магнитному полю и выбрана в плоскости оси наблюдения NRA.

Если потери энергии и рассеяние протонов на частицах облака невелики, то измеряемая детектором NRA скорость счета dN_0/dt нейтральных атомов H^0 в диапазоне энергий $(E, E + \Delta E)$ может быть связана с функцией распределения по энергии dn_{H^+}/dE быстрых протонов фоновой плазмы следующим соотношением:

$$\frac{dN_0}{dt} = \frac{dn_{\text{H}^+}}{dE} \Delta E \cdot v_{\text{H}^+} \sin \theta \cdot \overline{F_0(E) \kappa} \cdot S_{\text{eff}} \frac{\Delta \Omega}{4\pi} \eta \mu, \quad (2)$$

где $S_{\text{eff}} = 2r_{cl} \cdot 2r_{\text{NRA}}$ – видимая NRA эффективная площадь облака при условии $r_{cl} \ll r_{\text{NRA}}$, которое обычно выполняется при РСХ измерениях; усреднение $\overline{F_0(E) \kappa} = \iint F_0(E, y, z) \cdot dy \cdot \kappa(z) dz / S_{\text{eff}}$ выполняется по части облака, видимой детектором NRA; κ – фактор ослабления потока быстрых ионов в многопроходном приближении; $\Delta \Omega$ – телесный угол, под которым из облака видна принимающая сигнал площадь детектора NRA, η – эффективность регистрации быстрых атомов детектором NRA, μ – вероятность того, что быстрый атом H^0 не ионизируется в фоновой плазме и долетит до детектора. Выражения для $\Delta \Omega$, η и μ были получены ранее в [3, 5, 6] и в данной работе не обсуждаются. Новый, по сравнению с однопроходной моделью [3–6], множитель κ в уравнении (2) характеризует возможное ослабление потока быстрых ионов к моменту их попадания в область обзора детектора вследствие вероятной нейтрализации на предыдущих участках траектории. Детали расчета множителя κ представлены в разделе 5.

Значение $F_0 \equiv F_0(E)$ на выходе из облака для различных значений энергии E находятся из решения уравнения для dF_0/dx , при начальном условии $F_0(x = 0) = 0$ и условии сохранения числа частиц H^+ и H^0 в потоке: $F_1(x) + F_0(x) = 1$. Учитывая, что $dx = dl \cdot \sin(\theta)$ и предполагая $z = \text{const}$ вдоль траектории протона в условиях, когда ларморовский радиус быстрого иона много больше поперечного размера облака, уравнение для dF_0/dx из работ [3–6] может быть записано в виде:

$$\frac{dF_0}{dx} \cong \frac{(1 - F_0(x)) \sum_i n^{(i)}(x) \sigma_{10}^{(i)} - F_0(x) \sum_i n^{(i)}(x) \sigma_{01}^{(i)}}{\sin(\theta)}, \quad (3)$$

где $n^{(i)}$ – концентрация тяжелых частиц углеводородного облака; $\sigma_{10}^{(i)}$ и $\sigma_{01}^{(i)}$ – сечения нейтрализации быстрого протона H^+ и потери электрона быстрым нейтральным атомом H^0 на однородной мишени из частиц сорта (i) . Зависимости сечений $\sigma_{10}^{(i)}(E)$ и $\sigma_{01}^{(i)}(E)$ от энергии взяты из работы [6].

4. Предполагаемые распределения ионизационных состояний в углеводородном облаке.

Структура углеводородного облака вблизи испаряющейся в плазме полистироловой макрочастицы изучалась на гелиотроне LHD [7–9]. В экспериментах на LHD измерялись пространственные распределения излучения нейтральных атомов H^0 , C^0 , первого C^+ , и второго ионов C^{2+} углерода, а также температуры T_{cl} и концентрации n_{cl} электронов облака.

При расчетах нейтрализации быстрых протонов в углеводородном пеллетном облаке использовались подобранные модельные пространственные распределения различных степеней ионизации углерода и водорода, представленные на рис. 2. Данные распределения позволяют воспроизвести наблюдаемые размеры излучающих областей нейтрального водорода, а также нейтрального, однократно и двукратно ионизованного углерода в облаке с учетом влияния как электронов пеллетного облака, так и электронов горячей фоновой плазмы [12]. Таким образом, выбранные распределения согласуются также с распределениями концентрации и температуры электронов облака, измеренными экспериментально в области свечения нейтрального водорода. При вычислении распределения C^{3+} на рис. 2 предполагается, что продольный спад суммарной концентрации тяжелых частиц определяется скоростью поперечного дрейфа в неоднородном магнитном поле [11]. Отметим, что это предположение использовалось в работе [13], в которой удалось согласовать экспериментальные измерения скорости испарения с расчетом при одновременном учете экранирования полистироловой макрочастицы не только нейтральным облаком испаренного вещества, но и облаком вторичной плазмы пеллетного облака.

Данное модельное представление ограничивается степенями ионизации углерода до C^{3+} включительно. Как видно из рис. 2b, степень ионизации атомов углерода в облаке достаточно быстро меняется вдоль магнитного поля, и уже на удалении 30 мм около половины ионов углерода ионизованы до C^{3+} , а на удалении 60 мм полностью отсутствует ион C^{2+} .

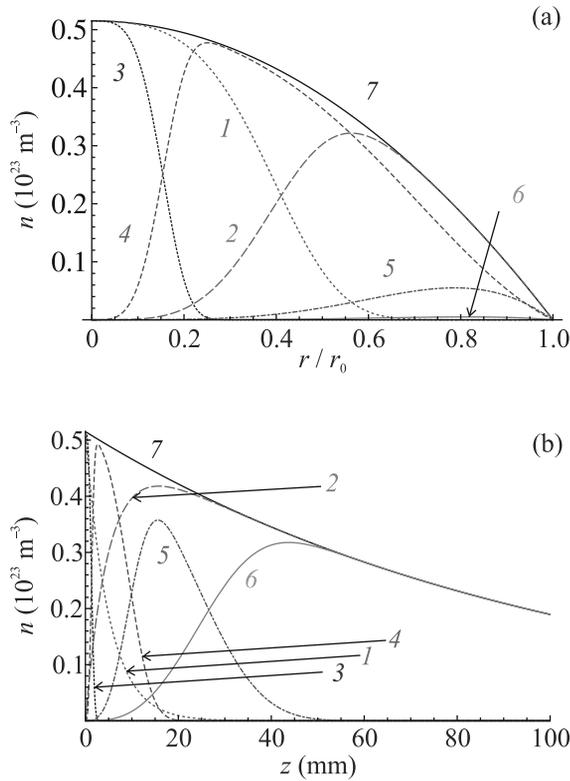


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Радиальные профили при $z = 0$ мм концентраций водорода в зарядовых состояниях H^0 (кривая 1), H^+ (кривая 2) и их суммы $n_{\text{H}^0} + n_{\text{H}^+} = n_{\text{с}0} + n_{\text{с}+} + n_{\text{с}2+} + n_{\text{с}3+}$ (кривая 7), а также концентраций углерода в зарядовых состояниях C^0 (кривая 3), C^+ (кривая 4), C^{2+} (кривая 5), C^{3+} (кривая 6); $r_0 = 3.8$ мм; (б) – продольные профили (вдоль z) концентраций водорода и углерода в различных зарядовых состояниях (обозначения те же, что и в части (а)) при $r = 0$

При этом о дальнейшей ионизации экспериментальные сведения отсутствуют. В связи с этим в данной работе для расчетов $F_0(E)$ анализируется область не далее ± 60 мм от макрочастицы в направлении магнитного поля.

5. Результаты расчетов нейтральной фракции $F_0(E)$ по однопроходной модели. Модельное распределение концентраций тяжелых частиц облака, показанное на рис. 2, использовалось при вычислении доли перезарядившихся быстрых протонов $F_0(E)$ на одном проходе через облако. В соответствии с разделом 3, в выбранном приближении облако состоит из тяжелых частиц следующих сортов (i): H^0 , H^+ , C^0 , C^+ , C^{2+} , C^{3+} , а так же из холодных электронов.

На рисунке 3 показаны примеры рассчитанных из уравнения (3) долей нейтрализовавшихся протонов $F_0(x)$ для двух поперечных сечений облака на

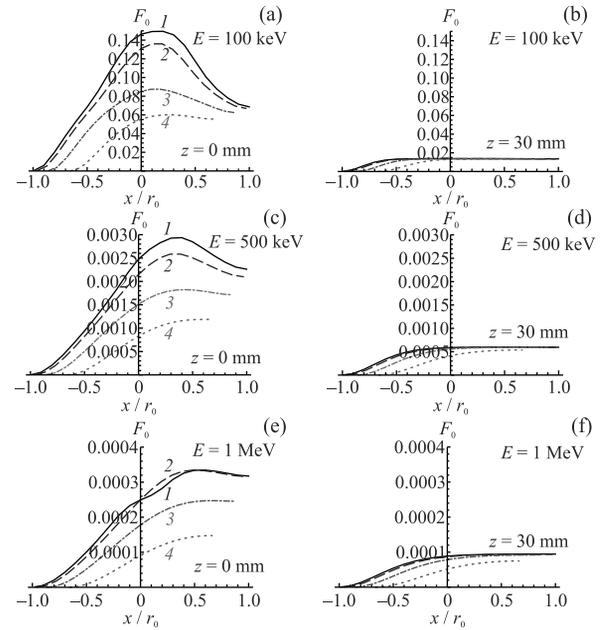


Рис. 3. (Цветной онлайн) Изменение нейтральной фракции F_0 с увеличением пройденного расстояния x вдоль хорд: $y/r_0 = 0$ (кривая 0), $y/r_0 = 0.25$ (кривая 1), $y/r_0 = 0.5$ (кривая 2), $y/r_0 = 0.75$ (кривая 3) при $\theta = 70^\circ$ для энергии $E = 100$ кэВ (а), (б), $E = 500$ кэВ (с), (д) и $E = 1$ МэВ (е), (ф): при $z = 0$ мм (а), (с), (е) и при $z = 30$ мм (б), (д), (ф). $r_0 = 3.8$ мм

разных расстояниях z от макрочастицы: (а), (с), (е) – при $z = 0$ мм, (б), (д), (ф) – при $|z| = 30$ мм. При этом рис. 3а, б соответствуют энергии протона $E = 100$ кэВ, рис. 3с, д энергии протона $E = 500$ кэВ, рис. 3е, ф энергии протона $E = 1$ МэВ. На каждом графике эволюция $F_0(x/r_0)$ приведена для четырех хорд по y , проходящих на разных расстояниях от продольной оси облака. Из рисунка 3а, с видно, что в центре облака ($z = 0$) при небольших энергиях $E = 100$ – 500 кэВ заметная доля быстрых протонов, нейтрализовавшихся при прохождении центральной низкоионизованной части облака, вновь ионизируется в периферийном слое на выходе из облака.

При $E = 1$ МэВ на рис. 3е данный эффект менее заметен, так как интегральная толщина внешнего слоя недостаточна для ионизации. Протоны, пересекающие облако по удаленным от его оси хордам $y/r_0 \geq 0.75$ нейтрализуются в соответствии с параметрами внешнего слоя.

При удалении от макрочастицы вдоль z ионизационный состав вдоль хорды становится более высокоионизованным и слабо зависит от поперечной координаты. В связи с этим уменьшается зависимость значения F_0 от хорды, по которой быстрые частицы пересекают облако. Исключение составляют наи-

более удаленные хорды, где интегральная плотность облака вдоль траектории недостаточна для достижения $F_0^\infty(E)$ характерной для данного сечения.

Были получены средние по поперечному сечению облака значения $\langle F_0(E) \rangle_y$ при различных z . Для этого в выбранном сечении по z вычислялись хордовые значения $F_0(E, y, z)$ с шагом по y : $\delta y = r_0/20$.

На рисунке 4а показаны зависимости $\langle F_0(E) \rangle_y$, полученные для четырех значений z . Кроме того, на рис. 4б приведены зависимости $F_0^\infty(E)$ для различных зарядовых составов.

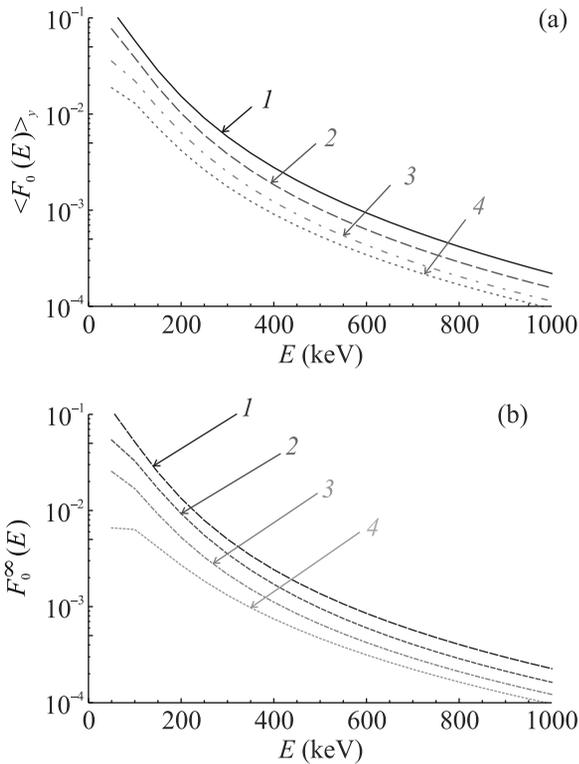


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Вычисленные зависимости $\langle F_0(E) \rangle_y$ для $z = 2$ мм (кривая 1), 10 мм (кривая 2), 20 мм (кривая 3), 30 мм (кривая 4); (б) – зависимости $F_0^\infty(E)$, вычисленные для четырех зарядовых составов облака, $n_{H^+} : n_{C^+} : n_{C^{2+}} = 2 : 1 : 1$ (кривая 1); $n_{H^+} : n_{C^{2+}} = 1 : 1$ (кривая 2); $n_{H^+} : n_{C^{2+}} : n_{C^{3+}} = 2 : 1 : 1$ (кривая 3); $n_{H^+} : n_{C^{3+}} = 1 : 1$ (кривая 4)

Из представленных на рис. 4а распределений видно, что по мере удаления от макрочастицы вдоль z значения $\langle F_0(E) \rangle_y$ снижаются. При усреднении по сечениям с различными значениями z в пределах области обзора детектора, наибольший вклад в среднее $\overline{F_0(E)}$ дадут сечения с меньшими z , т.е. наиболее близкие к центру облака ($z = 0$). Реальные размеры области наблюдения НРА составляют несколько десятков миллиметров в диаметре, а относительное по-

ложение облака и области наблюдения также может существенно, в пределах нескольких десятков миллиметров, варьироваться от эксперимента к эксперименту. Поэтому при анализе данных НРА для обеспечения возможности абсолютных измерений требуется детальный расчет $F_0(E) \cdot \kappa$ в части облака, попадающей в область обзора НРА. Использование зависимости $F_0^\infty(E)$, вычисленной для гипотетического усредненного ионизационного состава облака в формуле (2) может приводить к существенным ошибкам при реконструкции абсолютных значений dn_{H^+}/dE вплоть до порядка величины и более. При этом, как отмечалось ранее в работе [6], восстановление формы спектра остается возможным.

6. Оценки влияния многократного пересечения облака протонами. Множитель κ в формуле (2) – это коэффициент ослабления потока быстрых частиц в “многопроходном” приближении, учитывающий выбывание из потока нейтрализовавшихся ранее частиц. Нейтрализация на каждом проходе через облако (с номером l) заметно зависит от его удаления z_l от макрочастицы. Итоговое ослабление может быть представлено как:

$$\kappa(z, E, \theta) = \prod_{l=0}^{N(z, E, \theta)} (1 - \langle F_0(E, z_l) \rangle), \quad (4)$$

где $N(z, E, \theta)$ – количество проходов через облако, совершенных быстрым ионом начиная с $z = 60$ мм до его попадания в сечение z , а l принимает значения от 0 до $N(z, E, \theta)$. Отметим, что, как видно из рис. 4, увеличение степени ионизации компонент облака приводит к снижению нейтральной фракции F_0 . При увеличении степени ионизации углерода на 1, значение F_0 снижается от 2 при энергии 1 МэВ до 10 раз при энергии 100 кэВ. В связи с этим нейтрализацией протонов на удалении более 60 мм можно пренебречь.

Для учета потерь энергии быстрого протона вдоль траектории dE/dx из-за столкновений с частицами облака использовано выражение, полученное из формул для потерь энергии быстрых положительных ионов [14]:

$$\frac{dE}{dx} = -\frac{2\pi e^4 Z_H^2 m_p}{E m_e} n_{C, H}(x) \times \left(Z_C \ln \left(\frac{2E}{I_C} \cdot \frac{m_e}{m_p} \right) + Z_H \ln \left(\left(\frac{2E}{I_H} \cdot \frac{m_e}{m_p} \right) \right) \right), \quad (5)$$

где m_p и m_e – массы протона и электрона, $Z_H = 1$, $Z_C = 6$, $I_H = 15.0$ эВ, $I_C = 33.3$ эВ, $n_{C, H} = n_{H0} + n_{H^+} = n_{C0} + n_{C^+} + n_{C^{2+}} + n_{C^{3+}} + n_{C^{4+}} + n_{C^{5+}} + n_{C^{6+}} -$

половина концентрации тяжелых частиц облака во всех зарядовых состояниях.

В таблице 1 указаны значения N количества проходов, совершаемых быстрым протоном с энергией E и питч-углом θ от границы облака при $z = 60$ мм до центра $z = 0$, а так же соответствующие значения коэффициента ослабления κ и относительной потери энергии $\Delta E/E$. Результаты расчета $\kappa(z)$ при нескольких значениях питч-угла θ приведены на рис. 5а, б для энергий протона 50 кэВ и 100 кэВ, соответственно.

Таблица 1. Количество проходов N и коэффициент ослабления потока κ и относительная потеря энергии $\Delta E/E$ быстрых протонов с энергией E и питч-углом θ при прохождении участка длиной в 60 мм вдоль z

E , кэВ	θ	70°	80°	85°	89°
50	N	> 3	> 6	> 11	> 52
	$\kappa(0, E, \theta)$	0.8	0.7	0.6	0.14
	$\Delta E/E, \%$	100	100	100	100
100	N	2	4	8	37
	$\kappa(0, E, \theta)$	0.92	0.88	0.80	0.45
	$\Delta E/E, \%$	0.4	1	2.5	12
200	N	2	3	6	26
	$\kappa(0, E, \theta)$	0.99	0.97	0.95	0.85
	$\Delta E/E, \%$	0.2	0.3	0.7	3.5

Видно, что при $E = 50$ кэВ происходит значительное ослабление потока вследствие нейтрализации $\kappa = 0.14$ при питч-угле $\theta = 89^\circ$, а при угле $\theta = 70^\circ$ потери из-за нейтрализации заметно меньше $\kappa = 0.8$. Это не препятствует проводить РСХ измерения и восстанавливать соответствующие части распределения по энергии. А вот потери энергии для $E = 50$ кэВ оказываются очень значительными. Даже при питч-угле $\theta = 70^\circ$. Наблюдается полная термализация протонов с такими энергиями в облаке. Но уже при $E = 100$ кэВ потери энергии составляют 12% при угле $\theta = 89^\circ$, а при угле 70° не превышают 1%. При этом коэффициент $\kappa = 0.45$ при $\theta = 89^\circ$ и $\kappa = 0.82$ при $\theta = 70^\circ$. По мере увеличения энергии протонов, влияние этих двух эффектов снижается.

Таким образом, в диапазоне энергий 100–200 кэВ требуется учет ослабления потока быстрых протонов вследствие их нейтрализации, а также учет потери энергии протонами, который может достигать десятка процентов. При больших энергиях эффектами, связанными с потерей энергии и выбыванием протонов вследствие нейтрализации можно пренебречь.

Можно ожидать, что при РСХ измерениях значительное влияние на результат окажет взаимное расположение оси инжекции макрочастицы и оси наблюдения NPA. Поперечное смещение макрочастицы

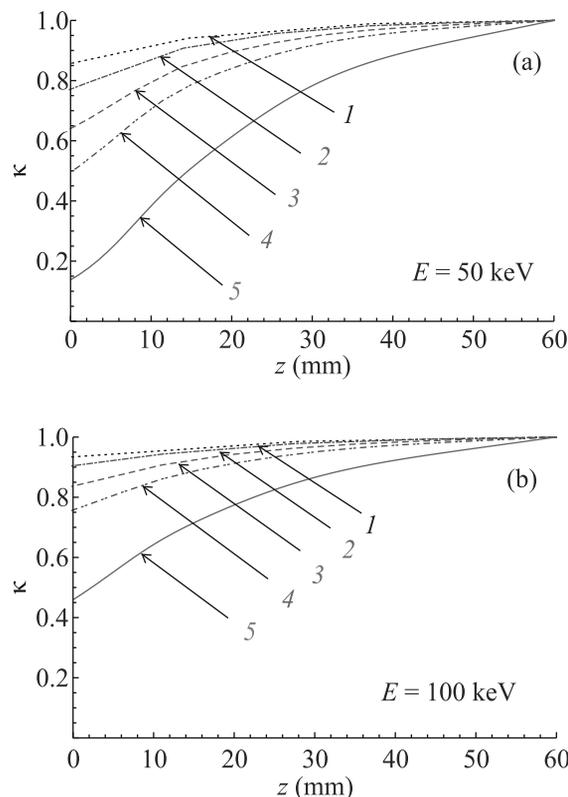


Рис. 5. (Цветной онлайн) $\kappa(z, E)$ при нескольких значениях питч-угла $\theta = 70^\circ$ (кривая 1), $\theta = 80^\circ$ (кривая 2), $\theta = 85^\circ$ (кривая 3), $\theta = 87^\circ$ (кривая 4), $\theta = 89^\circ$ (кривая 5) для: (а) – $E = 50$ кэВ; (б) – $E = 100$ кэВ

относительно области обзора NPA за время испарения составит $Lp \times \sin \varphi$, где Lp – глубина проникновения макрочастицы в плазму. Так, если угол между осью инжекции и осью наблюдения NPA $\varphi = 30^\circ$, что может реализовываться при инжекции макрочастицы вдоль большого радиуса установки и при расположении NPA для измерения потоков нейтрализовавшихся протонов с питч-углом 70° , а глубина проникновения приблизительно 200 мм, поперечное смещение будет достигать 100 мм. В связи с этим, при проведении абсолютных РСХ измерений необходимо, во-первых, ограничить смещение пеллетного облака в области обзора NPA, например, за счет уменьшения угла между направлением наблюдения и направлением инжекции, а во-вторых, обеспечить непрерывное отслеживание расположения пеллетного облака в области обзора NPA.

7. Выводы. Экспериментальные и расчетные данные о скорости испарения и распределениях излучения водорода и углерода вблизи испаряющихся макрочастиц из полистирола, полученные на гелиотроне ЛНД, использованы для построения приближенных модельных пространственных распреде-

лений атомов и ионов углерода и водорода в пеллетном облаке. Это позволило рассчитать долю быстрых протонов $F_0(E)$, нейтрализующихся в пеллетном облаке, информация о которой необходима для интерпретации сигналов РСХ диагностики. Расчет выполнен для диапазона энергий $E = (50-1000)$ кэВ при питч-углах $\geq 70^\circ$.

Показано, что зарядовый состав облака достаточно быстро меняется по мере удаления от макрочастицы, что существенно влияет на расчетные значения $F_0(E)$. Эти значения могут заметно отличаться от значений, использованных в более ранних работах в приближении постоянного однородного по облаку ионизационного состава.

В работе показано, что при энергиях протона в диапазоне 50–200 кэВ необходимо учитывать ослабление потока быстрых протонов в результате нейтрализации при многократных пересечениях облака, а также потери энергии протонами вдоль траектории. При энергии 50 кэВ наблюдается термализация протонов. При энергии 100 кэВ потери энергии протонов не превышают 0.4–12% при питч-углах $70^\circ-89^\circ$ соответственно. Полученные результаты демонстрируют возможность реализовать абсолютные РСХ-измерения энергетических распределений быстрых протонов в диапазоне энергий $100 \text{ кэВ} < E < 1000 \text{ эВ}$.

Необходимость контроля ионизационного состава и структуры облака ограничивает локализацию области обзора детектора нейтральных атомов. В углеводородных пеллетных облаках доступная для экспериментального контроля ионизационного состава часть облака располагается в пределах ± 30 мм от положения макрочастицы вдоль магнитного поля. Для оптимальной геометрии абсолютных РСХ измерений предпочтительно совместить ось инжекции с осью наблюдения НРА. Для относительных измерений оси инжекции и наблюдения могут быть расположены под углом друг к другу.

Полученные результаты могут быть полезны при проектировании и применении РСХ-диагностики быстрых протонов с инжекцией углеводородных макрочастиц, что актуально для всех крупных установок с магнитным удержанием высокотемпературной плазмы, оснащенных нагревными пучками нейтральных атомов NBI с энергиями 100 кэВ и более, а также использующих высокочастотный нагрев малой добавки ионов на гармонике ионноциклотронной частоты.

Финансирование работы. Работа поддержана Государственной корпорацией по атомной энергии “Росатом” и Министерством науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Федерального проекта 3 (УЗ), проект # FSEG-2023-0018 “Разработка и создание систем струйной и пеллет инжекции с повышенными производительностью и ресурсом”.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. R. K. Fisher, J. S. Leffler, A. M. Howald, and P. B. Parks, *Fusion Technol.* **13**, 536 (1988).
2. S. S. Medley, D. K. Mansfield, A. L. Roquemore, R. K. Fisher, H. H. Duong, J. M. McChesney, P. B. Parks, M. P. Petrov, A. V. Khudoleev, and N. N. Gorelenkov, *Rev. Sci. Instrum.* **67**, 3122 (1996).
3. P. R. Goncharov, T. Ozaki, S. Sudo, N. Tamura, and D. V. Kalinina, Tessel Group, LHD Experimental Group, E. A. Veshchev and V. Yu. Sergeev, *Fusion Sci. Technol.* **50**, 222 (2006).
4. J. M. McChesney, P. B. Parks, R. K. Fisher, and R. E. Olson, *Phys. Plasmas* **4**, 381 (1997).
5. P. R. Goncharov, T. Saida, N. Tamura, T. Ozaki, M. Sasao, M. Isobe, S. Sudo, K. V. Khlopenkov, and LHD Experimental Groups I/II, A. V. Krasilnikov, V. Yu. Sergeev, *Rev. Sci. Instrum.* **67**, 1869 (2003).
6. P. R. Goncharov, T. Ozaki, S. Sudo, N. Tamura, I. Yu. Tolstikhina, and V. Yu. Sergeev, *Rev. Sci. Instrum.* **79**, 10F312-1 (2008).
7. I. A. Sharov, V. Y. Sergeev, I. V. Miroshnikov, N. Tamura, B. V. Kuteev, and S. Sudo, *Rev. Sci. Instrum.* **86**, 043505 (2015).
8. I. A. Sharov, V. Y. Sergeev, I. V. Miroshnikov, B. V. Kuteev, N. Tamura, and S. Sudo, *Tech. Phys. Lett.* **44**, 384 (2018).
9. I. A. Sharov, V. Yu. Sergeev, I. V. Miroshnikov, N. Tamura, and S. Sudo, *Plasma Phys. Control. Fusion* **63**, 065002 (2021).
10. N. Tamura, V. Y. Sergeev, D. V. Kalinina, I. V. Miroshnikov, K. Sato, I. A. Sharov, O. A. Bakhareva, D. M. Ivanova, V. M. Timokhin, S. Sudo, and B. V. Kuteev, *Rev. Sci. Instrum.* **79**, 10F541 (2008).
11. A. Matsuyama, F. Koechl, B. Pegourie, R. Sakamoto, G. Motojima, and H. Yamada, *Nucl. Fusion* **52**(12), 123017 (2012).
12. O. A. Bakhareva, V. Y. Sergeev, and I. A. Sharov, *JETP Lett.* **117**, 207 (2023).
13. O. A. Bakhareva, V. Y. Sergeev, and I. A. Sharov, *JETP Lett.* **118**, 730 (2023).
14. Н. Мотт, Г. Месси, *Теория атомных столкновений*, Мир, М. (1969).

Магнитная составляющая квазикогерентной моды колебаний омической плазмы токамака Т-10

Н. С. Сергеев⁺¹⁾, А. В. Мельников^{+*×}, Л. Г. Елисеев*

⁺Национальный исследовательский институт МИФИ, 115409 Москва, Россия

*Национальный исследовательский центр Курчатовский институт, 123098 Москва, Россия

×Национальный исследовательский институт МФТИ, 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 2 апреля 2024 г.

После переработки 24 апреля 2024 г.

Принята к публикации 25 апреля 2024 г.

В работе исследуется феномен квазикогерентной моды колебаний омической плазмы токамака Т-10. Наряду со спектром относительных колебаний электронной плотности и колебаний электростатического потенциала исследуются спектры магнитных флуктуаций плазмы токамака. Установлено наличие как электростатической, так и магнитной компонент флуктуаций квазикогерентной моды как в основной, так и в периферийной частях плазменного шнура, что предлагает рассматривать ее как один из видов электромагнитной турбулентности горячей плазмы.

DOI: 10.31857/S1234567824110077, EDN: LVGDJX

1. Введение. Квазикогерентная мода (ККМ) колебаний плазмы регистрируется во многих режимах горения плазмы в токамаках, преимущественно в виде возмущений плотности плазмы, возбуждаемых на частотах порядка сотен кГц. Данный тип мелкомасштабных колебаний наблюдается как в чисто омической плазме [1], так и плазме L-моды (*low confinement mode*) при использовании систем дополнительного нагрева плазмы [2, 3]. Схожий тип колебаний, названный как слабо-когерентная мода колебаний плазмы (*weakly coherent mode*), также обнаруживается и в режимах улучшенного удержания плазмы в D-образных конфигурациях, например, в I-моде (от англ. *improved confinement mode*) [4]. Была также показана возможность одновременного существования двух квазикогерентных частотных пиков в спектре колебаний плотности плазмы: низкочастотная ККМ (НЧ ККМ), называемая просто ККМ, если наблюдается лишь один характерный пик, и высокочастотная ККМ (ВЧ ККМ). Для примера см. рис. 25 в работе [1], где НЧ ККМ обозначена как LF QS mode, и ВЧ ККМ – как HF QS mode. Рассматривалась возможность интерпретации ККМ как ионной температурно-градиентной неустойчивости (ITG-mode) или неустойчивости на запертых электронах (ТЕМ) [1, 5], однако причина возбуждения квазикогерентных колебаний пока еще не установлена.

Эксперименты на токамаках показывают, что развитие квазикогерентных осцилляций, как правило, коррелирует с переходами между различными режимами удержания плазмы. Так, например, выраженный частотный пик ККМ пропадает со спектров флуктуаций плотности плазмы после перехода из так называемого режима линейного омического удержания (*linear ohmic confinement*, LOC) в режим насыщенного омического удержания плазмы (*saturated ohmic confinement*, SOC) [5]. В разрядах с D-образной конфигурацией сечения плазменного шнура было показано, что развитие слабо-когерентной моды (*weakly coherent mode*, WCM) колебаний плазмы на краю плазмы $r/a > 0.95$, где a – малый радиус плазменного шнура, коррелирует с переходом в режим улучшенного удержания плазмы [6]. К настоящему времени объяснение данных процессов и их связи с развитием ККМ не найдено.

В отличие от когерентных колебаний плазмы, занимающих узкую частотную полосу Δf масштаба нескольких кГц с $\Delta f < f$, как, например, геодезическая-акустическая мода (ГАМ) колебаний плазмы [7], для ККМ характерна достаточно широкая частотная полоса масштаба нескольких десятков кГц с $\Delta f \approx f$. При этом, спектральный пик ККМ обычно располагается на частотах > 50 кГц [8–10], и имеет характерное колоколообразное амплитудно-частотное распределение. Исследования ККМ, выполненные на различных установках, показали, что для ее поперечного волнового числа k_{\perp} характер-

¹⁾e-mail: nickbebeskis@gmail.com

но соотношение $0.02 \leq k_{\perp} \rho_i \leq 0.4$, где ρ_i – ларморовский радиус на иона [8]. Полоидальное модовое число m возмущений плотности лежит в диапазоне $20 \leq m \leq 50$. При этом фазовая скорость соответствующих возмущений плотности ориентирована в сторону электронного диамагнитного дрейфа, тем самым указывая на электронный механизм раскочки квазикогерентных колебаний, например, на моду на запертых электронах.

На установке Т-10 ККМ наблюдалась в виде колебаний плотности плазмы как в омических режимах горения плазмы, так и в режимах с дополнительным ЭЦР-нагревом плазмы со среднечордовой электронной плотностью плазмы в диапазоне $1.5 \times 10^{19} \leq \bar{n}_e \leq 4 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$ [1]. При этом однозначных корреляций между временной эволюцией параметров ККМ и изменением глобальных параметров плазмы в течении разряда на настоящий момент не обнаружено. Однако отметим, что, как правило, при включении дополнительного ЭЦР-нагрева плазмы происходит заметное снижение центральной частоты пика квазикогерентных колебаний при одновременном нарастании его амплитуды [11]. В случае низкой столкновительности это снижение частоты сопровождается заметным сужением частотного интервала ККМ [12].

Недавние исследования турбулентности плазмы на установке Т-10 показали, что ККМ может также проявляться в виде возмущений электрического потенциала плазмы [11]. Хотя на периферии D-образной плазмы у ККМ была обнаружена и магнитная компонента [13], это наблюдение не повлияло на сложившееся мнение об электростатической природе ККМ, подтвержденное отсутствием наблюдений магнитной компоненты ККМ в центральных областях плазмы, а также в круглых токамаках.

Работа посвящена экспериментальному исследованию электростатических и магнитных свойств ККМ в омической плазме круглого токамака Т-10. Результаты измерений подтверждают электромагнитную природу ККМ, что расширяет современные представления о мелкомасштабной турбулентности горячей плазмы. Работа организована следующим образом. Схема эксперимента представлена в разделе 2. Спектральный и корреляционный анализ колебаний плазмы, а также обсуждение их результатов представлены в разделе 3. Заключение приведено в последнем разделе.

2. Схема эксперимента. Эксперимент проведен в омической плазме токамака Т-10 (большой радиус $R = 1.5$ м, малый радиус $a = 0.3$ м) с вольфрамовым лимитером [14]. Исследован режим с током плазмы $I_p = 230$ кА, магнитным полем на оси плаз-

мы $B_t = 2.25$ Тл, что соответствовало фактору запаса устойчивости на границе $q_{cyl}(a) \approx 3$. Направление тока совпадало с направлением тороидального поля.

Профили электронной температуры (T_e) были измерены при помощи ЕСЕ-радиометра, работающего на второй гармонике электронно-циклотронного резонанса $2\omega_{ce}$, и системой томсоновского рассеяния (TS), настроенной на длину волны лазерного излучения $\lambda = 532$ нм. Профили электронной плотности плазмы (n_e) были измерены с помощью комбинации микроволнового и HCN лазерного интерферометров. Профили ионной температуры (T_i) были измерены методом перезарядочно-рекомбинационной спектроскопии по данным интенсивности спектральной линии иона C^{5+} ($\lambda = 5291 \text{ \AA}$). Временные осциллограммы основных параметров разряда изображены на рис. 1. На протяжении фазы разряда с постоян-

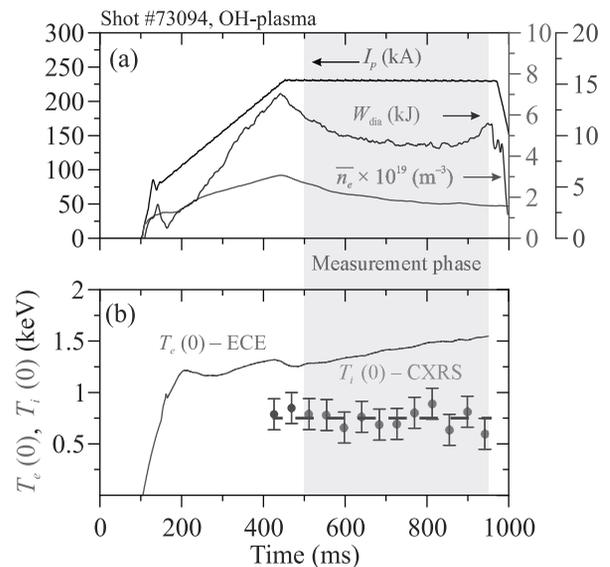


Рис. 1. (Цветной онлайн) Временная эволюция основных параметров плазмы: (а) – ток плазмы I_p , среднечордовая электронная плотность плазмы \bar{n}_e , запасенная энергия плазменного шнура W_{dia} ; (б) – центральная электронная $T_e(0)$ и ионная $T_i(0)$ температуры, зеленая пунктирная линия – аппроксимация для всех импульсов исследованного режима. Интервал измерения флуктуаций плазмы отмечен серым цветом

ным током плазмы ($I_p = \text{const}$) медленный спад \bar{n}_e сопровождается практически линейным ростом центральной T_e , при этом энергосодержание плазменного шнура оставалось на уровне $W_{dia} \approx 10$ кДж на протяжении фазы измерений флуктуаций плазмы согласно сигналу диамагнитной пелли. Ионная температура в центре плазмы $T_i(0)$ оставалась практически неизменной.

Исследования флуктуаций плазмы на стороне слабого магнитного поля (ССМП) установки проводились с использованием многоканальной диагностики зондирования пучком тяжелых ионов (ЗПТИ) [15]. Эта диагностика, задуманная и первоначально используемая для измерений радиальных распределений потенциала плазмы [16], в дальнейшем достигла уровня комплексной диагностики электрического потенциала и турбулентности [17].

В нескольких областях измерений одновременно измерялись флуктуации электронной плотности плазмы $\delta n_e/n_e$, электростатического потенциала плазмы $\tilde{\varphi}_{pl}$, а также флуктуации тороидального сдвига зондирующих ионов в детекторе энергетического анализатора $\tilde{\zeta}_d$, вызванных магнитными флуктуациями плазмы. Величина $\tilde{\zeta}_d$ отражает как локальные флуктуации тороидальной компоненты магнитного векторного потенциала \tilde{A}_ζ в области измерений, так и интегральные характеристики флуктуаций, возникающих вдоль траекторий зондирующих ионов. Несмотря на то, что, как правило, в экспериментальном сигнале $\tilde{\zeta}_d$ доминирует локальный член [18–20], в данной работе рассматривается суммарный вклад таких флуктуаций.

Одновременные измерения позволили исследовать корреляционные характеристики турбулентности. Квадратичный коэффициент когерентности между двумя сигналами $x(t)$ и $y(t)$ определялся как

$$\gamma^2 = \frac{|\langle \Phi(x) \times \Phi^*(y) \rangle|^2}{\langle |\Phi(x)|^2 \rangle \times \langle |\Phi(y)|^2 \rangle}, \quad (1)$$

где $\Phi(x)$ – Фурье-образ сигнала $x(t)$. Кросс-фаза между двумя исследуемыми сигналами определялась как

$$\alpha(x, y) = \arg(\Phi(x) \times \Phi^*(y)), \quad (2)$$

где $\Phi^*(y)$ – комплексно-сопряженная функция Фурье-образа. Для полоидально сдвинутых областей измерений полоидальная длина возмущений вычислялась как

$$\lambda_\theta = 2\pi l_\theta / \alpha, \quad (3)$$

где α – кросс-фаза, а l_θ – расстояние между точками наблюдения (имеет масштаб от 1 до нескольких см). Полоидальный номер моды колебаний вычислялся как

$$(m = 2\pi r) / \lambda_\theta, \quad (4)$$

где r соответствует текущей радиальной координате измерений. Волновое число вычислялось как

$$k = 2\pi / \lambda_\theta. \quad (5)$$

Сигналы высокочастотного магнитного зонда (МЗ), установленного в тени полоидального вольфрамового лимитера на ССМП, были использованы для описания спектров магнитных возмущений вне плазмы. Области измерений МЗ и ЗПТИ располагались вблизи экваториальной плоскости установки на ССМП. Для оценки полоидального модового числа доминирующего магнитного возмущения, были использованы данные 24 низкочастотных МЗ, равномерно расположенных вдоль полоидального обхода установки в сечении лимитера [21]. Для измерения флуктуаций плавающего потенциала плазмы $\tilde{\varphi}_{fl}$, а также для измерения $\delta n_e/n_e$ на периферии плазмы были использованы ленгмюровские зонды (ЛЗ), установленные на подвижном манипуляторе на ССМП.

3. Результаты и обсуждение. На рисунке 2 представлены типичные спектры мощности (Power spectral density, PSD) колебаний различных плазменных параметров, измеренных одновременно ЗПТИ и ЛЗ в фиксированных точках внутри плазменного шнура, а также МЗ. Область наблюдения ЗПТИ находилась на $r/a = 0.72$, где r – радиальная координата, в то время как манипулятор ЛЗ был вдвинут на $r/a = 0.98$. МЗ был зафиксирован на отметке $r/a = 1.1$. Представленные спектры усреднены во времени в квазистационарной фазе разряда $t = 550$ – 950 мс для повышения их статистической надежности. Данные сгруппированы по цветам: красный цвет кривых соответствует спектрам колебаний плотности $(\delta n_e)/n_e$, синий – спектрам колебаний потенциала плазмы. Низкочастотные области спектров ($f < 40$ kHz) показаны на правой стороне рис. 2.

Рисунок 2а,с показывает существование ККМ как широкого частотного пика в области частот 50–200 кГц на спектрах $\delta n_e/n_e$, измеряемых ЗПТИ и ЛЗ. На $r/a = 0.72$ спектральный пик ККМ с центральной частотой $f_{QCM} = 85$ кГц имеет полную ширину на уровне половины высоты FWHM ~ 110 кГц. На периферии плазмы ККМ имеет $f_{QCM} = 75$ кГц с FWHM ~ 55 кГц. Различия между двумя областями плазменного шнура более выражены на спектрах колебаний потенциала плазмы. На спектре ($\tilde{\varphi}_{fl}$ ККМ представлена отчетливым пиком на спектре $\tilde{\varphi}_{pl}$ (рис. 2с), в то время как во внутренней области плазмы частотный пик ККМ имеет амплитуду осцилляций близкую к уровню шума (рис. 2).

Здесь обращает на себя внимание выраженный частотный пик вблизи нижней границы интервала частот ККМ в спектре $\tilde{\varphi}_{pl}$, а именно, на $f = 60$ кГц, который ранее не наблюдался в плазме ни с омиической

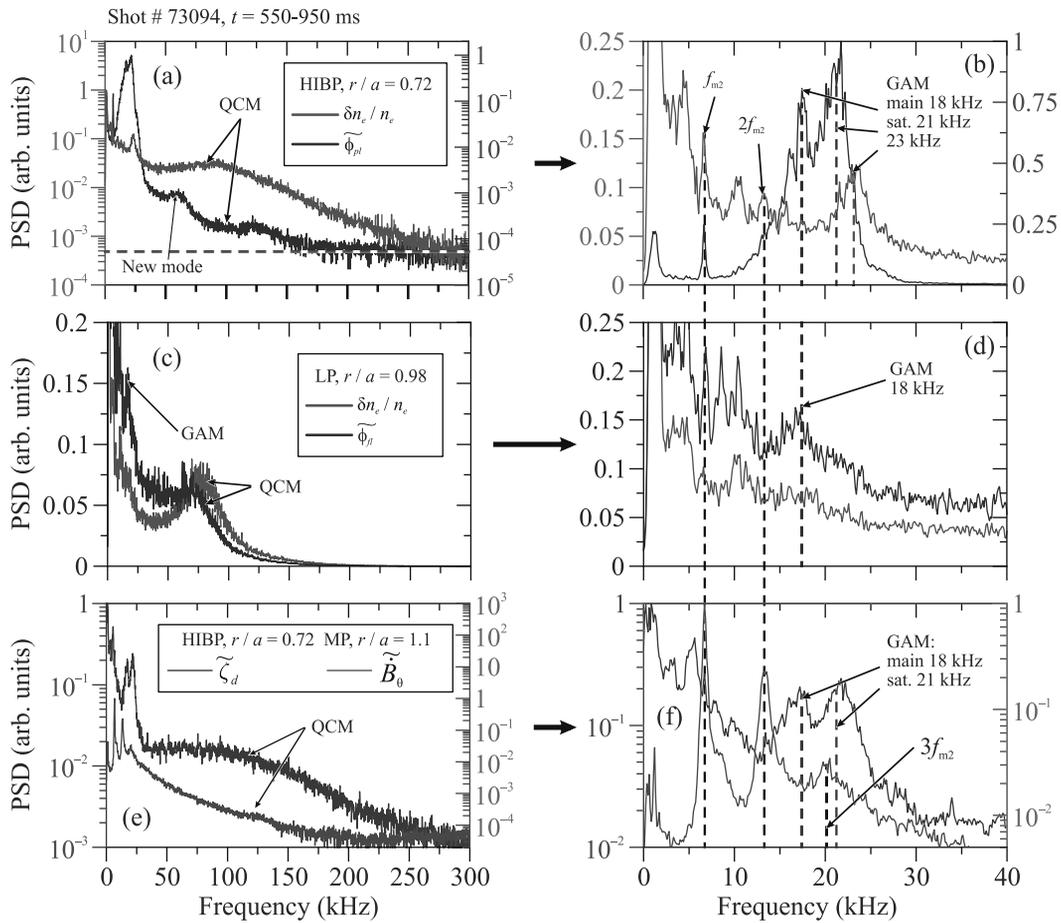


Рис. 2. (Цветной онлайн) Нормализованные спектры плотности мощности колебаний: (a), (b) – относительных колебаний электронной плотности и потенциала плазмы, измеренных ЗПТИ (НВП); (c), (d) – относительных колебаний электронной плотности и плавающего потенциала плазмы, измеренных ЛЗ (LP); (e), (f) – магнитных колебаний, измеренных внутри плазмы ЗПТИ и вне плазмы – МЗ (MP)

ским, ни с дополнительным нагревом. Этот частотный пик наблюдается при помощи ЗПТИ как возмущение потенциала во внутренних областях плазмы. Его исследование остается вне рамок данной работы.

Спектры магнитных колебаний показаны на рис. 2e, f. Широкий спектральный пик ККМ отчетливо виден на спектре мощности магнитных возмущений ζ_d внутри плазмы, вне ее он также регистрируется, хотя и менее отчетливо. В низкочастотных областях спектров колебаний, измеренных ЛЗ и ЗПТИ, присутствуют спектральные пики ГАМ и МГД тиринг-моды с $m/n = 2/1$ (рис. 2b, d). Отметим, что тонкая структура ГАМ представлена основным частотным пиком ГАМ на $f_{\text{GAM, main}} = 18 \text{ кГц}$ и его высокочастотным спутником на $f_{\text{GAM, sat}} = 21 \text{ кГц}$, проявляется на обоих спектрах φ_{pl} и ζ_d в основной плазме, что

подтверждает прежние наблюдения магнитной компоненты ГАМ [22].

На периферии плазмы, при $r/a = 0.98$ наблюдается только основной частотный пик ГАМ на спектре φ_{fl} , что согласуется с прежними наблюдениями радиальной структуры ГАМ [22–24]. На спектре магнитных возмущений, измеренном МЗ видны фундаментальная $f_{m2} = 6.7 \text{ кГц}$, вторая $2f_{m2} = 13.4 \text{ кГц}$ и третья $3f_{m2} = 20.1 \text{ кГц}$ гармоники моды МГД тиринг-моды $m/n = 2/1$ (рис. 2f).

Рисунок 3 показывает статистически значимые дальние корреляции между магнитными и электростатическими колебаниями в области частот ККМ, что дополнительно подтверждает электромагнитную природу ККМ на периферии плазмы. Важно отметить, что углубление положения ЛЗ в плазму приводит к резкому нарастанию квадратичного ко-

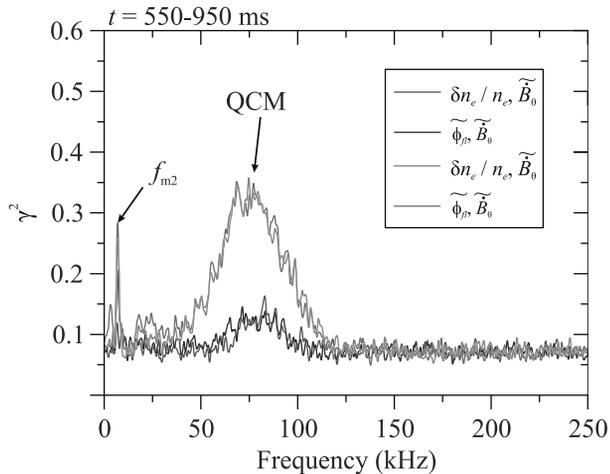


Рис. 3. (Цветной онлайн) Частотный спектр коэффициента когерентности между магнитными флуктуациями и флуктуациями плавающего потенциала и плотности на периферии плазмы, вычисленный для пар сигналов ЛЗ (LP) и МЗ (MP). Красная и синяя кривые соответствуют радиальным положениям ЛЗ на $r/a = 0.98$ и МЗ на $r/a = 1.1$ (# 73094), зеленая и оранжевая – ЛЗ на $r/a = 0.97$ и МЗ на $r/a = 1.1$ (# 73099)

эффицента когерентности γ^2 для ККМ. Тем самым можно предположить, что источник ККМ расположен в основной плазме, что согласуется с прежними наблюдениями ее радиальной структуры [25].

Анализ корреляций магнитных колебаний между соседними каналами ЗПТИ показывает монотонный спад коэффициента когерентности γ^2 в области частот ККМ при увеличении полоидального расстояния между точками измерений (рис. 4а). При этом величина кросс-фазы α монотонно нарастает, что указывает на непрерывный характер распространения магнитного возмущения от второго канала к наиболее удаленному пятому, где α достигает $\sim \pi/2$, см. рис. 4б. Положительный знак угла наклона α в области частот ККМ соответствует направлению распространения квазикогерентных магнитных возмущений в сторону электронного диамагнитного дрейфа, что совпадает с направлением распространения возмущений плотности плазмы [1]. Выше 250 кГц статистически значимых корреляций обнаружено не было, и величина α колеблется стохастично вплоть до 500 кГц. В низкочастотной области $f < 40$ кГц наблюдаются статистически значимые корреляции на частотах ГАМ и МГД тиринг-моды $m = 2$.

Характерная полоидальная длина возмущений магнитной компоненты флуктуаций ККМ составляет $\lambda_\theta = 1.8\text{--}3.3$ см. Полоидальное модовое число находится в диапазоне $m = 25\text{--}50$. Монотонный спад коэффициента когерентности позволяет оценить по-

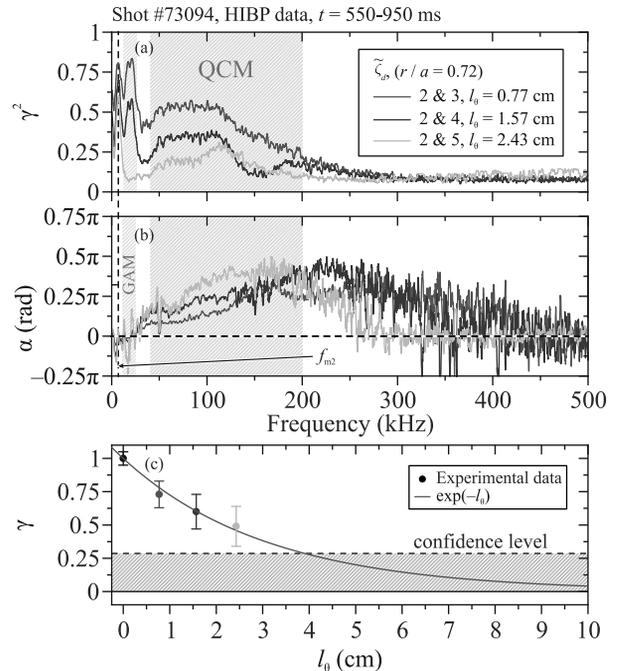


Рис. 4. (Цветной онлайн) Частотные спектры: (а) – квадратичного коэффициента когерентности и (б) – кросс-фазы магнитных возмущений, вычисленные между соседними пространственными каналами ЗПТИ (HIBP), а именно, вторым и третьим, вторым и четвертым, вторым и пятым. Частотные диапазоны, соответствующие геодезической-акустической и квазикогерентной модам, выделены цветной штриховкой. (с) – Зависимость коэффициента когерентности для магнитных квазикогерентных колебаний плазмы от расстояния между точками измерений. Штриховкой отмечен уровень шума

лоидальную корреляционную длину для квазикогерентных магнитных колебаний от 2.8 до 3.5 см, для примера, приведенного на (рис. 4с) $l_\theta = 3.1$ см. Характерный масштаб квазикогерентных магнитных флуктуаций составляет $0.07 \leq k_\perp \rho_i \leq 0.2$, что совпадает с характерным масштабом аналогичных возмущений плотности [8].

Исследование дальних пространственных корреляций между сигналами ЗПТИ, измеренными на $r/a = 0.57, 0.72$ и сигналом МЗ, измеренном на $r/a = 1.1$ (рис. 5), не показало признаков статистической связи между магнитными флуктуациями в области частот ККМ ($50 \text{ кГц} < f < 200 \text{ кГц}$). Напротив, в области низких частот наблюдается высокий уровень когерентности для фундаментальной и второй гармоник МГД тиринг-моды $m = 2$, а также для еще одной низкочастотной МГД моды с $f = 2.7$ кГц.

Кроме того, статистически значимые корреляции наблюдаются на частотах основного и спутного пиков ГАМ, 18 и 21 кГц соответственно.

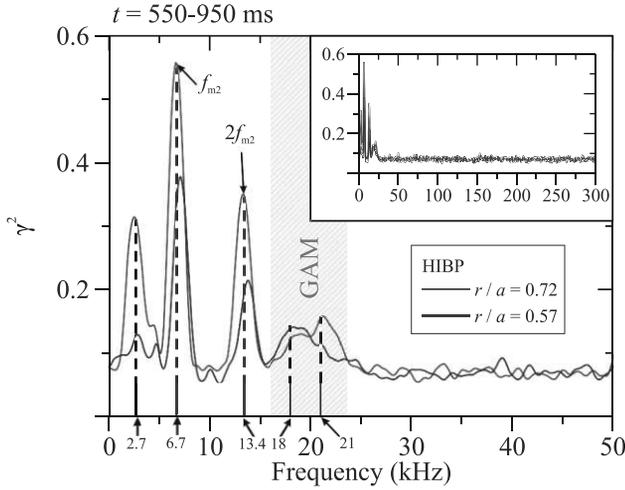


Рис. 5. (Цветной онлайн) Частотные спектры квадратичного коэффициента когерентности между магнитными флуктуациями ЗПТИ (НВП) – $\tilde{\zeta}_d$, и МЗ (МР) – \tilde{B}_θ , измеренные на стороне слабого магнитного поля установки. Положение МЗ было зафиксировано при $r/a = 1.1$. Стрелками указаны $f_{m2} = 6.7$ кГц, $2f_{m2} = 13.4$ кГц, $f_{\text{GAM, main}} = 18$ кГц, $f_{\text{GAM, sat}} = 21$ кГц

Рассмотрим магнитную и электростатическую компоненты турбулентности с точки зрения биспектрального анализа [26, 27]. Статистически значимый коэффициент бикогерентности, определяемый как:

$$b^2 = \frac{|\langle \Phi(f_1) \times \Phi(f_2) \times \Phi(f_1 + f_2)^* \rangle|^2}{\langle |\Phi(f_1) \times \Phi(f_2)|^2 \rangle \times \langle |\Phi(f_1 + f_2)|^2 \rangle}, \quad (6)$$

указывает на наличие трехволнового взаимодействия между различными частотными компонентами турбулентности. На рисунке 6 показан спектр квадратичной бикогерентности b^2 вычисленной между сигналами ЗПТИ, измеренных в различных точках плазмы. Рассмотрены тройки магнитных сигналов $\tilde{\zeta}_d$, измеренных в соседних точках (левая колонка), и тройки сигналов $\tilde{\varphi}_{pl}$, $\delta n_e/n_e$, $\tilde{\zeta}_d$, измеренных в одной точке (правая колонка).

На рисунке 6а, б, $r/a = 0.85$, показано, что для магнитной составляющей ККМ колебаний наблюдается трехволновое взаимодействие между различными частотными компонентами спектра: GAM и ККМ, $f_3^{\text{GAM}} = f_1^{\text{QCM}} + f_2^{\text{QCM}}$.

Рисунке 6б показывает, что наряду с трехволновым взаимодействием с участием f_{GAM} , происходит взаимодействие различных частотных компонент спектра ККМ между собой в виде $f_3^{\text{QCM}} = f_1^{\text{QCM}} + f_2^{\text{QCM}}$. Этот результат может быть интерпретирован как проявление нелинейного взаимодействия отдельных частотных компонент ККМ между собой, а также с общим ансамблем моды,

что проявляется в виде полосы (вытянутого облака) точек, имеющих статистически значимый коэффициент b^2 .

Рисунок 6е показывает, что при $r/a = 0.57$ появляется статистически значимый пик b^2 на частотах ($-f_{m2}, f_{m2}$) в спектрах колебаний магнитных сигналов, что указывает на то, что область наблюдения диагностики ЗПТИ приблизилась к магнитной поверхности $q = 2$. Рисунок 6е также показывает, что для магнитной компоненты ККМ наблюдается взаимодействие различных частотных компонент спектра ККМ на частоте $f_3^{m2} = f_1^{\text{QCM}} + f_2^{\text{QCM}}$, что, возможно, указывает на влияние вращения магнитного острова $m/n = 2/1$ на ККМ, например, модуляцию частот магнитных квазикогерентных флуктуаций. Таким образом установлено, что магнитная компонента колебаний ККМ также может участвовать в нелинейном взаимодействии с другими крупномасштабными модами плазмы.

4. Заключение. В омической плазме токамака Т-10 в спектрах магнитных колебаний, измеренных диагностикой ЗПТИ и МЗ обнаружены осцилляции на частоте квазикогерентной моды колебаний плазмы. Установлены статистически значимые корреляции между магнитными колебаниями, измеренными вне крайней замкнутой магнитной поверхности, и колебаниями плотности и плавающего потенциала плазмы, измеренных в периферийной плазме на частотах квазикогерентной моды. Фазовая скорость квазикогерентных магнитных возмущений направлена в сторону электронного диамагнитного дрейфа, что совпадает с направлением распространения квазикогерентных возмущений плотности плазмы. Диапазоны полоидальных длин волн и модовых чисел магнитных квазикогерентных возмущений совпадают с аналогичными параметрами квазикогерентных возмущений плотности. Для магнитной компоненты квазикогерентной моды установлено трехволновое взаимодействие с геодезической-акустической модой, с МГД-тиринг модой $m = 2$, а также между ее различными частотными составляющими.

Таким образом, установлено наличие магнитной компоненты квазикогерентной моды колебаний плазмы, что делает ее одним из видов электромагнитной турбулентности горячей плазмы.

Авторы благодарят С. А. Грашина, А. М. Какурина, Д. В. Сарычева, В. А. Крупина, Н. А. Соловьева, М. Р. Нургулиева, Д. В. Рыжакова, и весь коллектив Т-10 за сотрудничество и предоставление данных отдельных диагностик для анализа, а также В. А. Вершкова и Д. А. Шелухина за полезные дискуссии.

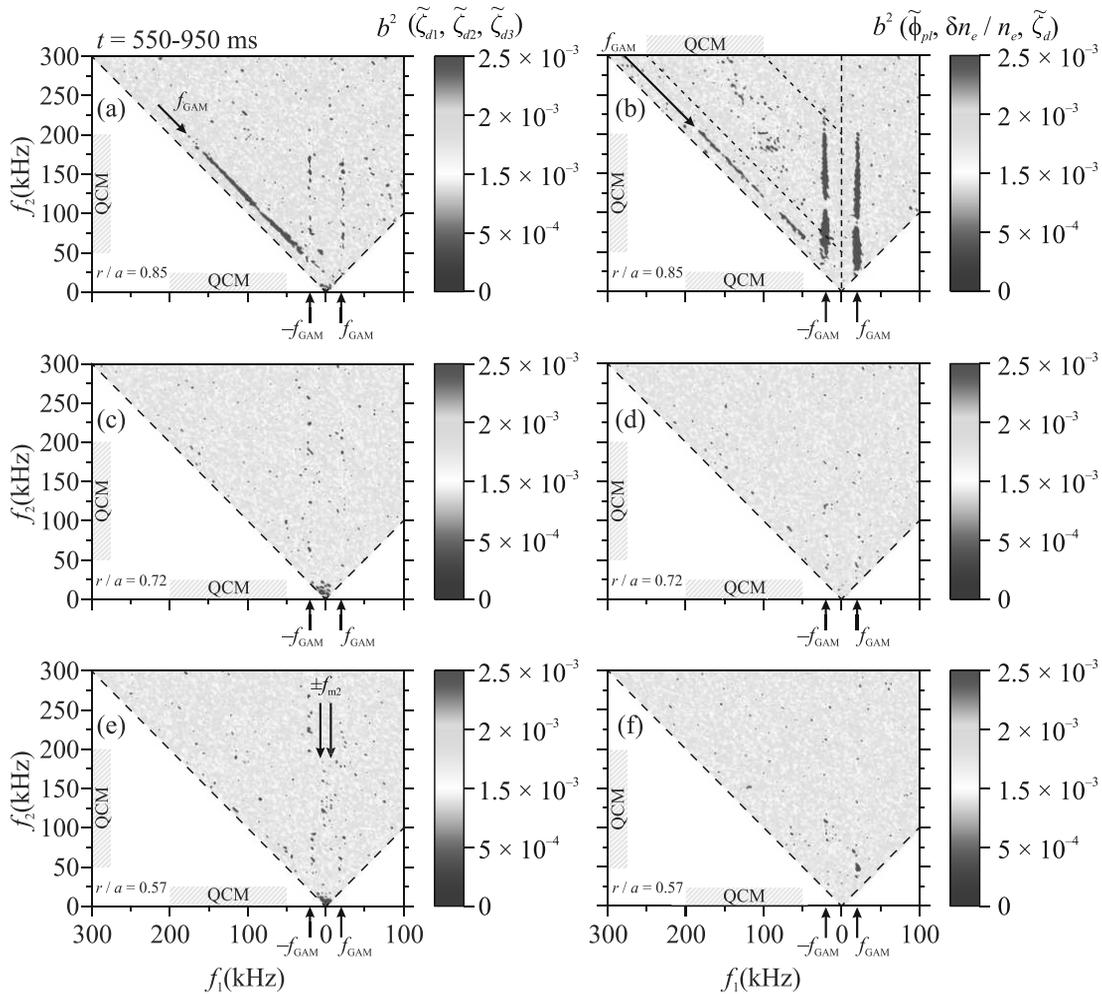


Рис. 6. (Цветной онлайн) Спектры бикогерентности, вычисленные при различных радиальных положениях области измерений ЗПТИ в плазме: (a), (c), (e) – $b^2(\tilde{\zeta}_{d1}, \tilde{\zeta}_{d2}, \tilde{\zeta}_{d3})$ и (b), (d), (f) – $b^2(\tilde{\varphi}_{pl}, \delta n_e/n_e, \tilde{\zeta}_d)$

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Национального исследовательского центра Курчатовский институт, а также, частично за счет средств бюджета Национального исследовательского ядерного университета МИФИ, дополнительное соглашение # 075-03-2023-097/4.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. V. A. Vershkov, D. A. Shelukhin, S. V. Soldatov, A. O. Urazbaev, S. A. Grashin, L. G. Eliseev, A. V. Melnikov, and the T-10 team, Nucl. Fusion. **45**(10), S203 (2005).
2. H. Arnichand, R. Sabot, S. Hacquin, A. Kramer-Flecken, X. Garbet, J. Citrin, C. Bourdelle, G. Hornung, J. Bernardo, C. Bottereau, F. Clairet, G. Falchetto, and J. C. Giacalone, Nucl. Fusion. **54**(12), 123017 (2014).

3. A. Krämer-Flecken, V. Dreval, S. Soldatov, A. Rogister, V. Vershkov and the TEXTOR-team, Nucl. Fusion. **44**(11), 1143 (2004).
4. P. Manz, T. Happel, F. Ryter et al. (Collaboration), Nucl. Fusion **57**(8), 086022 (2017).
5. H. Arnichand, R. Sabot, S. Hacquin, A. Kramer-Flecken, C. Bourdelle, J. Citrin, X. Garbet, J. C. Giacalone, R. Guirlet, J. C. Hillesheim, L. Meneses, and JET Contributors, Nucl. Fusion **5**(9), 093021 (2015).
6. D. G. Whyteet, A. Hubbard, J. Hughes et al. (Collaboration), and and the Alcator C-Mod Team Nucl. Fusion **50**(10), 105005 (2010).
7. G. D. Conway, A. I. Smolyakov, and T. Ido, Nucl. Fusion **62**(1), 013001 (2021).
8. V. A. Vershkov, M. A. Buldakov, G. F. Subbotin, D. A. Shelukhin, A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, N. K. Kharchev, P. O. Khabanov, M. A. Drabinskiy, D. S. Sergeev, T. B. Myalton, V. M. Trukhin,

- A. V. Gorshkov, I. S. Belbas, and G. M. Asadulin, Nucl. Fusion **59**(6), 066021 (2019).
9. T. Happel, P. Manz, F. Ryter, P. Hennequin, A. Hetzenecker, G. D. Conway, L. Guimarais, C. Honore, U. Stroth, E. Viezzer, and The ASDEX Upgrade Team, Nucl. Fusion **56**(6), 064004 (2016).
 10. W. Lee, J. Lee, D.-J. Lee, H. K. Park, and the KSTAR team, Nucl. Fusion **61**(1), 016008 (2020).
 11. A. V. Melnikov, L. I. Krupnik, E. Ascasibar et al. (Collaboration), Plasma Phys. Control. Fusion **60**(8), 084008 (2018).
 12. M. A. Drabinskiy, A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, P. O. Khabanov, N. K. Kharchev, and S. E. Lysenko, J. Phys.: Conf. Ser. **2055**(1), 012001 (2021).
 13. L. Gil, C. Silva, T. Happel et al. (Collaboration), Nucl. Fusion. **60**(5), 054003 (2020).
 14. V. A. Vershkov, D. V. Sarychev, G. E. Notkin, D. Shelukhin, M. Buldakov, Y. Dnestrovskij, S. Grashin, N. Kirneva, V. Krupin, L. Klyuchnikov, A. Melnikov, S. Neudatchin, M. Nurgaliev, Y. Pavlov, and P. Savrukhin, Nucl. Fusion **57**(10), 102017 (2017).
 15. A. V. Melnikov, M. A. Drabinskiy, L. G. Eliseev, P. O. Khabanov, N. K. Kharchev, L. I. Krupnik, J. L. De Pablos, A. S. Kozachek, S. E. Lysenko, A. Molinero, G. B. Igonkina, M. M. Sokolov, Fusion Engineering and Design **146**, 850 (2019).
 16. В. И. Бугаря, Письма в ЖЭТФ **38**(7), 337 (1983).
 17. A. V. Melnikov, L. I. Krupnik, L. G. Eliseev et al. (Collaboration), Nucl. Fusion **57**(7), 072004 (2017).
 18. Yu. N. Dnestrovskij, A. V. Melnikov, L. I. Krupnik, and I. S. Nedzelskij, EEE Trans. Plasma Sci. **22**(4), 310 (1994).
 19. A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, R. Jimenez-Gomez et al. (Collaboration), Nucl. Fusion **50**(8), 084023 (2010).
 20. A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, F. Castejon, C. Hidalgo, P. O. Khabanov, A. S. Kozachek, L. I. Krupnik, M. Liniers, S. E. Lysenko, J. L. de Pablos, S. E. Sharapov, M. V. Ufimtsev, V. N. Zenin, HIBP Group and TJ-II Team, Nucl. Fusion **56**(11), 112019 (2016).
 21. L. G. Eliseev, N. V. Ivanov, A. M. Kakurin, A. V. Melnikov, and S. V. Perfilov, Phys. Plasmas **22**(5), 052504 (2015).
 22. A. V. Melnikov, V. A. Vershkov, and L. G. Eliseev, Plasma Phys. Control. Fusion **48**(4), S87 (2006).
 23. А. В. Мельников, Л. Г. Елисеев, С. Е. Лысенко, С. В. Перфилов, Р. В. Шурыгин, Л. И. Крупник, А. С. Козачок, А. И. Смоляков, Письма в ЖЭТФ **100**(9), 633 (2014).
 24. А. В. Мельников, В. А. Вершков, С. А. Грашин, М. А. Драбинский, Л. Г. Елисеев, И. А. Земцов, В. А. Крупин, В. П. Лахин, С. Е. Лысенко, А. Р. Немец, М. Р. Нургалиев, Н. К. Харчев, Ф. О. Хабанов, Д. А. Шелухин, Письма в ЖЭТФ **115**(6), 360 (2022).
 25. М. А. Drabinskiy, L. G. Eliseev, P. O. Khabanov, A. V. Melnikov, N. K. Kharchev, N. S. Sergeev, and S. A. Grashin, J. Phys.: Conf. Ser. **1383**(1), 012004 (2019).
 26. G. A. Riggs, S. H. Nogami, M. E. Koeperke, A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, S. E. Lysenko, P. O. Khabanov, M. A. Drabinskiy, N. K. Kharchev, A. S. Kozachek, M. V. Ufimtsev, and HIBP Team, J. Plasma Phys. **87**(3), 885870301 92021).
 27. A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, S. E. Lysenko, M. V. Ufimtsev, and V. N. Zenin, Nucl. Fusion **57**(11), 115001 (2017).

Изоэнтропическое сжатие твердой углекислоты (CO₂) до ультрамегабарных давлений

В. Д. Селемир⁺, В. В. Бражкин*, К. Д. Литасов*¹⁾, П. Б. Репин⁺, А. С. Коршунов⁺, А. И. Быков⁺,
Г. В. Борисков⁺, Н. И. Егоров⁺, Ю. Б. Кудасов⁺, И. В. Макаров⁺, Д. А. Маслов⁺, В. Н. Павлов⁺,
В. В. Платонов⁺, И. С. Стрелков⁺, О. М. Сурдин⁺, Р. В. Козабаранов⁺, А. В. Бочкарев⁺, А. А. Агапов⁺,
Н. А. Беляева⁺

⁺РФЯЦ ВНИИЭФ – Российский федеральный ядерный центр –
Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики, 607188 Саров, Россия

*Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина РАН, 180840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 апреля 2024 г.

После переработки 18 апреля 2024 г.

Принята к публикации 21 апреля 2024 г.

В экспериментах по динамическому сжатию образцов твердой углекислоты (CO₂) до мегабарных давлений использовался метод изоэнтропического сжатия давлением сверхсильного магнитного поля взрывомагнитного генератора с регистрацией состояния сжатых образцов рентгенографическим способом. Действие генератора основано на быстром сжатии начального магнитного потока в полости генератора проводящим цилиндрическим лайнером, разгоняемым продуктами взрыва цилиндрического заряда взрывчатого вещества. В результате экспериментов на диаграмме сжимаемости CO₂ определены две точки при давлениях 349 и 459 ГПа, при этом получены рекордные на сегодняшний день значения степени сжатия CO₂ ρ/ρ_0 равные 3.90 и 4.02, соответственно. Проведено сравнение результатов экспериментов с теоретическими расчетами уравнений состояния кристаллических фаз CO₂ и показано их почти полное совпадение, что подтверждает как высокую точность теоретических предсказаний, так и идентичность экспериментальных и теоретических уравнений состояния модификаций CO₂ стабильных при высоком давлении.

DOI: 10.31857/S1234567824110089, EDN: HNJCAW

Введение. Двуокись углерода CO₂ наряду со льдом H₂O, углеводородами и соединениями азота является одним из принципиальных соединений легких элементов, важных для моделирования динамики планет и других космических тел [1, 2]. Кроме этого, CO₂ имеет важное значение в физике высоких давлений как одно из наиболее изученных фундаментальных соединений. Согласно теоретическим предсказаниям CO₂ и H₂O остаются одними из наиболее стабильных бинарных соединений в системе COH_N при давлениях до 400–500 ГПа без образования промежуточных стехиометрических соединений (в системах C-O и H-O) или разложения [3, 4]. Теоретическими методами предсказано изменение стехиометрии H₂O только при давлениях выше 5 ТПа [5].

Ковалентные двойные связи в молекуле CO₂ при стандартных условиях, относятся к числу самых прочных химических связей, однако при высоких давлениях, в десятки ГПа, энергия сжатия ($P\Delta V$) становится сравнимой с энергией связи, а стабиль-

ная молекула CO₂ демонстрирует сложное химическое поведение. Эксперименты в ячейке с алмазными наковальнями и лазерным нагревом по исследованию фазовой диаграммы CO₂ проводились при давлениях до 120 ГПа. Было установлено не менее пяти молекулярных фаз, а также кристаллическая полимерная ковалентная фаза CO₂-V (*I42d*), стабильная в широком интервале давлений, превышающих 30–40 ГПа [6–9].

С помощью теоретических методов фазовая диаграмма CO₂ исследована до давлений около 1.5 ТПа [10–12]. Был проведен поиск стабильных структур фаз CO₂ [10], определены параметры уравнений состояния и PT -поля стабильности для этих модификаций [11, 12], а также рассчитана линия плавления фазы CO₂-V [13–14].

Выше линии плавления жидкая фаза CO₂ была также исследована теоретически [15, 16] и экспериментально с помощью ударно-волновых экспериментов до давлений порядка 1 ТПа [17–22]. Установлены структурные переходы в жидкости от молекулярной фазы CO₂ (L-I) при давлениях до 40 ГПа [19] через

¹⁾e-mail: litasov@hppi.troitsk.ru

полимерную фазу с координацией атомов 3 и 4 (L-II) [16, 18] к ионизированной фазе L-III при давлениях выше 100 ГПа [21, 22]. В ударно-волновых экспериментах также рассчитаны адиабаты Гюгонио для жидкой углекислоты до давлений около 1 ТПа при разных начальных плотностях [20–22].

В данной работе приведены результаты экспериментов по изоэнтропическому сжатию образцов твердого CO_2 до ультрамегабарных давлений в сильном магнитном поле, позволяющему сохранять твердое состояние образца до максимальных давлений. В проведенных уникальных экспериментах получены рекордные степени сжатия CO_2 .

Методика экспериментов. Для сжатия образцов твердой двуокиси углерода до мегабарных давлений использовался метод изоэнтропического сжатия давлением сверхсильного магнитного поля взрывом магнитного генератора МК-1 [23–25] с регистрацией состояния сжатых образцов рентгенографическим способом. Действие генератора МК-1 основано на быстром сжатии начального магнитного потока в полости генератора проводящим цилиндрическим лайнером, разгоняемым продуктами взрыва цилиндрического заряда взрывчатого вещества. Магнитное поле в полости генератора достигает мегагауссовых значений вплоть до 10 МГс, воздействуя магнитным давлением на внешнюю поверхность размещенной на оси генератора камеры сжатия с исследуемым веществом. Камера сжатия плавно, без образования ударных волн, сжимает (в течение ≈ 17 мкс) расположенные внутри нее объекты до давлений 500–700 ГПа. Благодаря тому, что усиливается магнитное поле генератора МК-1 играет роль промежуточного агента, преобразующего детонационную волну в плавно нарастающую волну сжатия, достигается высокая степень изоэнтропичности процесса. Особенно привлекателен этот способ для достижения мегабарных давлений в легкосжимаемых веществах, где известные динамические ударно-волновые методы не позволяют достичь больших степеней сжатия из-за сильного разогрева вещества с его переходом в жидкое или ионизированное состояние.

Основными элементами экспериментальной установки являются устройство сжатия (генератор МК-1 с размещенной на его оси цилиндрической камерой с исследуемым веществом), рентгенографический комплекс (состоящий из безжелезного бетатрона [26] и регистраторов рентгеновских изображений на основе фотохромных пластин), устройства синхронизации и подрыва заряда взрывчатого вещества, а также электроизмерительная аппаратура.

Наружная оболочка цилиндрической камеры сжатия (рис. 1) образована толстостенной медной

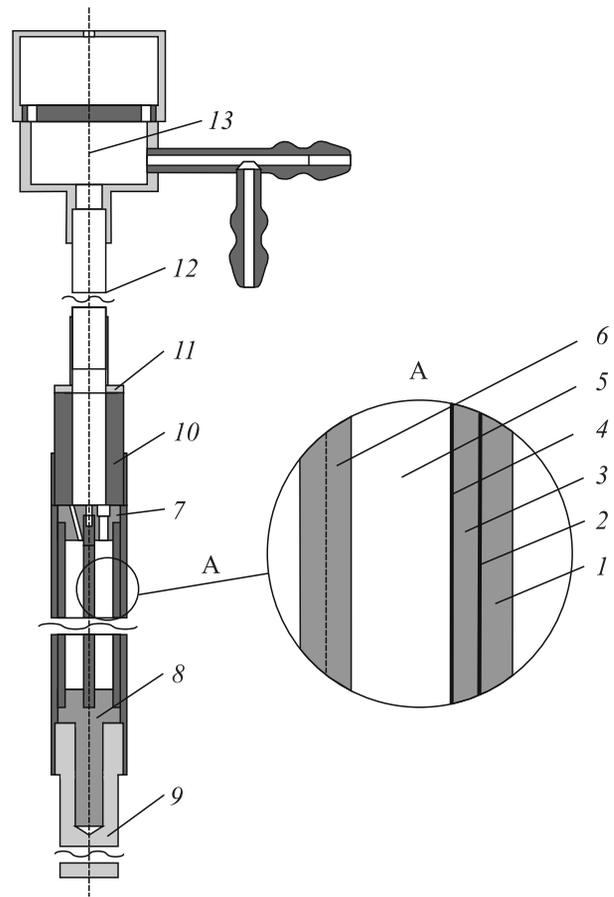


Рис. 1. Схема камеры сжатия: 1 – обжимающая трубка, 2 – внешний контрастный элемент; 3 – алюминиевый эталон; 4 – внутренний контрастный элемент; 5 – исследуемый образец; 6 – центральный электрод; 7 и 8 – верхняя и нижняя торцевая заглушка, соответственно; 9 – тепловой мост; 10 – фторопластовый изолятор; 11 – стальной переходник; 12 – тонкостенная стальная трубка; 13 – металлический контейнер

обжимающей трубкой, в центре которой располагаются исследуемый твердотельный образец CO_2 и расположенный коаксиально с ним эталонный образец из алюминия, отделенный от обжимающей трубки и исследуемого образца тонкими ≈ 0.15 мм контрастными элементами из сплава вольфрама. Плотность исследуемого вещества и эталона в процессе сжатия вычисляется из их радиальных размеров, измеренных рентгенографическим способом. По плотности эталона, и его известной изоэнтропии, построенной на основе обширного статистического материала, охватывающего требуемый интервал давлений [27–30], определяется давление в эталоне

и, с учетом градиентных поправок, в исследуемом веществе. Величина градиентных поправок уточняется в ходе математического моделирования работы устройства с помощью программного комплекса, включающего в себя одномерный лагранжев код магнитной газодинамики (МГД) и подключенную к нему библиотеку широкодиапазонных уравнений состояния, законов проводимости и механических характеристик [31]. На оси камеры сжатия расположен внутренний электрод (медь диаметром 3 мм в первом эксперименте и диаметром 0.8 мм во втором) схемы измерения проводимости образца CO_2 в процессе сжатия. Обжимающая трубка камеры сжатия в нижней своей части соединяется с тепловым мостом – длинным массивным медным стержнем, погруженным в жидкий азот для сохранения начального твердотельного состояния исследуемого образца CO_2 .

Подготовка образцов к экспериментам проводилась по специально разработанной технологии намораживания CO_2 из газовой фазы непосредственно в камере сжатия при температуре жидкого азота. Плотность подготовленных образцов CO_2 определялась путем взвешивания камеры сжатия до и после заполнения ее диоксидом углерода с учетом реальных геометрических размеров полости камеры и составляла 1.66–1.67 г/см³ (при температуре 77–80 К), что соответствует беспористому льду диоксида углерода. Контроль температуры образца CO_2 во время проведения эксперимента обеспечивается температурным датчиком, расположенным на 20 мм ниже верхнего края образца. В ходе подготовки экспериментов были промоделированы условия охлаждения исследуемого образца с применением дополнительных температурных датчиков в центре и внизу камеры сжатия. Показания верхнего датчика превышают показания центрального и нижнего датчиков на 15 и 30 К, соответственно. Температура, регистрируемая верхним датчиком непосредственно перед экспериментами, составляла 158–160 К, что соответствует температуре в центре камеры сжатия 145–150 К и плотности образцов до начала процесса сжатия $\rho_0 \approx 1.62 \text{ г/см}^3$.

Регистрация теневых изображений устройства сжатия осуществлялась на фотохромных пластинах в комбинации с конвертирующими танталовыми экранами. Для повышения качества изображений применялись свинцовые коллиматоры, снижающие влияние паразитного рассеянного рентгеновского излучения. Длительность съемки рентгенографических установок ($\sim 100 \text{ нс}$) много меньше характерного времени процесса сжатия ($\sim 17 \text{ мкс}$), поэтому

получаемые изображения можно считать “мгновенными”.

Результаты экспериментов и обсуждение. Результаты двух экспериментов представлены в табл. 1. На рисунке 2 приведены рентгенограммы эксперимента #1 и для наглядности показано

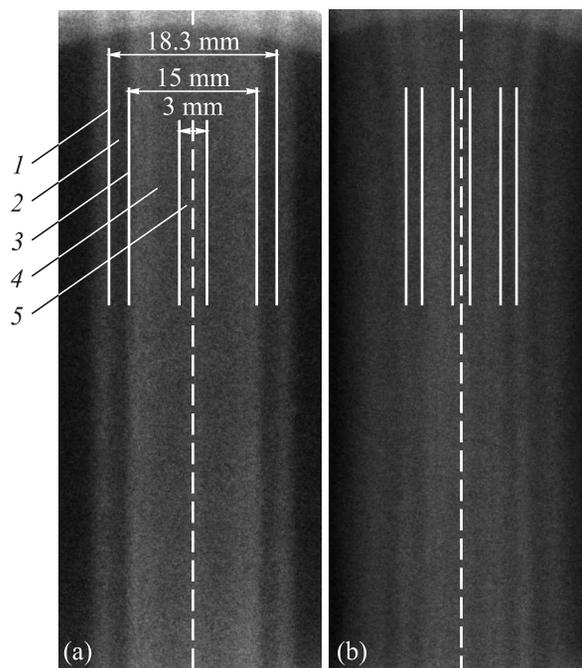


Рис. 2. Экспериментальные рентгенограммы центральной части устройства сжатия: (а) – до эксперимента; (б) – в момент съемки под давлением. 1 – внешний контрастный элемент; 2 – алюминиевый эталон; 3 – внутренний контрастный элемент; 4 – образец; 5 – центральный электрод

примерное положение основных маркеров до эксперимента и в сжатом состоянии. Полученные в экспериментах предварительные и опытные рентгеновские изображения камеры сжатия далее подвергались математической обработке с использованием нелинейной фильтрации, после чего строились радиальные профили камеры сжатия, находились границы входящих в нее элементов и определялись поперечные размеры, а, следовательно, и степени сжатия, как эталонного, так и исследуемого образцов. С использованием полученных данных и давлением, восстановленным из изоэнтропы эталона по методике [31], выполнялись расчеты наиболее точного значения градиентной поправки для давления в исследуемом веществе.

На рисунке 3 проведено сравнение экспериментальных данных с теоретическими кривыми сжимаемости фаз CO_2 [10, 11] и с данными ударно-волновых

Таблица 1. Результаты экспериментов по изэнтропическому сжатию CO_2 в сильных магнитных полях ($\rho_0 = 1.62 \pm 0.01 \text{ г/см}^3$)

# эксперимента	P , ГПа	ρ , г/см^3	ρ/ρ_0	T_{sample} , К	T_{melting} , К
1	349 ± 54	6.32 ± 0.12	3.90 ± 0.07	986	7200
2	459 ± 89	6.51 ± 0.15	4.02 ± 0.09	1012	7800

T_{melting} – температура плавления, рассчитанная по экстраполяции теоретической кривой плавления CO_2 [13].

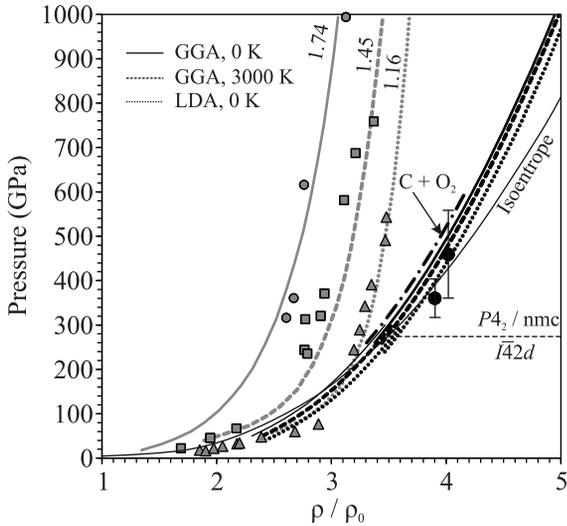


Рис. 3. Сравнение экспериментальных данных по сжимаемости твердого CO_2 с теоретическими кривыми сжимаемости (GGA, LDA) и кривыми сжимаемости CO_2 флюида на ударных адиабатах по данным работы [21]. Для экспериментальных точек (черные кружки) показана величина погрешности измерений по давлению. Погрешность по плотности находится в пределах размера символа. Тонкой линией показана изэнтропа, полученная при МГД моделировании экспериментальных данных. $\text{C} + \text{O}_2$ – суммарный объем смеси алмаз + O_2 при 0 К (наши неопубликованные расчетные данные). Цифрами показаны начальные плотности CO_2 для цитируемой работы [21]. Показано расчетное давление перехода от фазы $\text{CO}_2\text{-V}$ ($I42d$) к фазе $P4_2/nmc$ при 279 ГПа [11]

экспериментов по сжимаемости CO_2 -флюида [21]. Показано, что при давлениях экспериментов 349 и 459 ГПа получены рекордные степени сжатия твердых фаз CO_2 $\rho/\rho_0 = 3.90$ и 4.02 , тогда как в экспериментах по ударно-волновому сжатию изначально беспористых образцов в области флюидной фазы получены значения не выше $\rho/\rho_0 = 3.1$ ($\rho_0 = 1.74$).

Тонкой линией на рис. 3 показана изэнтропа CO_2 , используемая при МГД моделировании работы устройства сжатия. В таблице 1 приведены расчетные оценки температуры образцов в условиях экспериментов 986 и 1012 К, а также оценочные значения температуры плавления CO_2 при давлениях эксперимента согласно экстраполяции теоретической

кривой из работы [13]. Очевидно, что температура образцов оказывается в несколько раз меньше, чем температура плавления CO_2 при данном давлении. Таким образом, все полученные в экспериментах точки лежат существенно ниже кривой плавления и характеризуют высокоплотную твердую фазу исследуемого вещества. Следует отметить, что в стандартном ударно-волновом эксперименте, включая эксперименты с лазерно-индуцированной ударной волной, температура при давлениях 350–450 ГПа будет составлять 30000–60000 К.

Наблюдается хорошее соответствие экспериментальных и теоретических данных, что свидетельствует о вероятном совпадении стабильных фаз CO_2 в эксперименте с теоретически рассчитанными стабильными фазами. В области экспериментов стабильной фазой является $\text{CO}_2\text{-}P4_2/nmc$ [10, 11]. Можно с уверенностью утверждать, что в процессе эксперимента произошли фазовые переходы именно до этой фазы. Во-первых, кривые сжимаемости молекулярных фаз низкого давления будут проходить гораздо дальше от полученных экспериментальных точек, чем кривая сжимаемости фазы $\text{CO}_2\text{-}P4_2/nmc$. Во-вторых, переход от фазы $\text{CO}_2\text{-V}$ $I42d$ сопровождается небольшим изменением объема в 1% без изменения координационного числа углерода. Таким образом, кинетика перехода облегчена, а образование самой фазы $\text{CO}_2\text{-V}$ из молекулярных фаз CO_2 обусловлено гигантскими избыточными давлениями. Наконец, хорошо известно, что в ударно-волновых экспериментах фазовые переходы идут в $10^7\text{--}10^{14}$ раз быстрее, чем в статических экспериментах при той же температуре из-за быстрого образования дефектов структуры. Характерное время твердофазного фазового перехода составляет менее 1 мкс [32], что меньше времени динамического эксперимента на пиковых давлениях. Важно отметить, что полученные экспериментальные точки однозначно свидетельствуют, что полимеризация и образование ковалентной фазы произошло. Это первое наблюдение перехода из молекулярной в ковалентную фазу в твердом состоянии в динамических экспериментах (в ударно-волновых экспериментах с молекулярными фазами всегда образуется флюидная фаза).

Также достаточно очевидно, что в процессе эксперимента не происходило разложения CO_2 на алмаз и кислород, так как линия рассчитанных объемов смеси $\text{C} + \text{O}_2$ располагается на большем расстоянии от экспериментальных точек, чем расчетная кривая сжимаемости CO_2 .

В момент фазового перехода от CO_2 -V $I42d$ к CO_2 - $P4_2/nmc$ при 279 ГПа энергии Гиббса фаз совпадают, а при давлениях эксперимента они отличаются не более чем на 0.1–0.15 эВ/ф.ед. В связи с этим можно исключить и возможное образование метастабильных фаз, разница энтальпий с ближайшим кандидатом CO_2 - $P4m2$ при давлении 400 ГПа составляет не менее 0.2 эВ/ф.ед. [10].

Для построения более детальной экспериментальной изоэнтропы необходимы несколько дополнительных экспериментов, но даже на данном этапе ясно, что она хорошо согласуется с теоретическими кривыми сжатия, предсказанными в работе [11].

В качестве практического применения данные настоящих экспериментов и более детальные данные теоретических расчетов [11] могут быть использованы для физико-химического описания поведения CO_2 в составе сложных систем С-Н-О при моделировании динамики и внутреннего строения планет-гигантов и более крупных экзопланет, где необходимо задействовать уравнения состояния как жидких, так и твердых фаз [1-2, 33].

В заключении можно суммировать, что в результате экспериментов по изоэнтропическому сжатию твердых образцов сухого льда CO_2 в сверхсильных магнитных полях получены рекордные на сегодняшний день значения степени сжатия CO_2 ρ/ρ_0 , равные 3.90 и 4.02 при давлениях 349 и 459 ГПа, соответственно. Температура образцов во время экспериментов не превышала 1012 К. Сравнение результатов экспериментов с теоретическими расчетами уравнений состояния ковалентной модификации CO_2 $P4_2/nmc$ с четверной координацией атомов углерода показало их полное согласие, что подтверждает высокую точность теоретических предсказаний и идентичность экспериментальных и теоретических уравнений состояния стабильных фаз CO_2 при ультрамегабарных давлениях.

Финансирование работы. Исследование выполнено в рамках научной программы Национального центра физики и математики (НЦФМ), проект “Исследования в сильных и сверхсильных магнитных полях”.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. T. Guillot, *Science* **286**, 72 (1999).
2. C. Cavazzoni, G. L. Chiarotti, S. Scandolo, E. Tosatti, M. Bernasconi, and M. Parrinello, *Science* **283**, 44 (1999).
3. A. S. Naumova, S. V. Lepeshkin, P. V. Bushlanov, and A. R. Oganov, *J. Phys. Chem. A* **125**, 3936 (2021).
4. L. J. Conway, C. J. Pickard, and A. Hermann, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **118**, e2026360118 (2021).
5. C. J. Pickard, M. Martinez-Canales, and R. J. Needs, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 245701 (2013).
6. K. D. Litasov, A. F. Goncharov, and R. J. Hemley, *Earth Planet. Sci. Lett.* **309**, 318 (2011).
7. F. Datchi, G. Weck, A. M. Saitta, Z. Raza, G. Garbarino, S. Ninet, and M. Mezouar, *Phys. Rev. B* **94**, 014201 (2016).
8. K. F. Dziubek, M. Ende, D. Scelta, R. Bini, M. Mezouar, G. Garbarino, and R. Miletich, *Nat. Commun.* **9**, 3148 (2018).
9. D. Scelta, K. F. Dziubek, M. Ende, R. Miletich, M. Mezouar, G. Garbarino, and R. Bini, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 065701 (2021).
10. C. Lu, M. Miao, and Y. Ma, *J. Amer. Chem. Soc.* **135**, 14167 (2013).
11. К. Д. Литасов, В. В. Бражкин, Н. Е. Сагатов, Т. М. Инербаев, *Письма в ЖЭТФ* **119**(3), 206 (2024).
12. B. H. Cogollo-Olivo, S. Biswas, S. Scandolo, and J. A. Montoya, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 095701 (2020).
13. A. M. Teweldeberhan, B. Boates, and S. A. Bonev, *Earth Planet. Sci. Lett.* **373**, 228 (2013).
14. C. J. Wu, D. A. Young, P. A. Sterne, and P. C. Myint, *J. Chem. Phys.* **151**, 224505 (2019).
15. B. Boates, S. Hamel, E. Schwegler, and S. A. Bonev, *J. Chem. Phys.* **134**, 064504 (2011).
16. B. Boates, A. M. Teweldeberhan, and S. A. Bonev, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **109**, 14808 (2012).
17. В. Н. Зубарев, Г. С. Телегин, *Доклады АН СССР* **142**(2), 309 (1962).
18. W. J. Nellis, A. C. Mitchell, F. H. Ree, M. Ross, N. C. Holmes, R. J. Trainor, and D. J. Erskine, *J. Chem. Phys.* **95**, 5268 (1991).
19. G. L. Schott, *Intl. J. High Pressure Res.* **6**, 187 (1991).
20. S. Root, S., K. R. Cochrane, J. H. Carpenter, and T. R. Mattsson, *Phys. Rev. B* **87**, 224102 (2013).
21. L. E. Crandall, J. R. Rygg, D. K. Spaulding, T. R. Boehly, S. Brygoo, and P. M. Celliers, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 165701 (2020).
22. L. E. Crandall, J. R. Rygg, D. K. Spaulding, M. F. Huff, M. C. Marshall, and D. N. Polsin, *Phys. Plasmas* **28**, 022708 (2021).
23. A. I. Pavlovskii, A. I. Bykov, M. I. Dolotenko, N. I. Egorov, and G. M. Spirov, in: *Megagauss Fields and Pulsed Power Systems*, ed. by V. M. Titov and A. Shvetsov, Nova Science Publ., Hauppauge, N.Y. (1990), p. 155.

24. Г. В. Борисков, А. И. Быков, М. И. Долотенко, Н. И. Егоров, Ю. Б. Кудасов, В. В. Платонов, УФН **181**(4), 441 (2011).
25. Г. В. Борисков, А. И. Быков, Н. И. Егоров, М. В. Жерноклетов, В. Н. Павлов, И. С. Стрелков, ЖЭТФ **157**(2), 221 (2020).
26. Y. P. Kuropatkin, V. D. Mironenko, V. N. Suvorov, and A. A. Volkov, in: *11th IEEE Pulsed Power Conference. Digest of technical papers*, ed. by G. Cooperstein and I. Vitkovitsky, Piscataway NJ USA, IEEE (1998), p. 1663.
27. Л. В. Альтшулер, С. Б. Кормер, А. А. Баканова, Р. Ф. Трунин, ЖЭТФ **38**(3), 790 (1960).
28. В. А. Симоненко, Н. П. Волошин, А. С. Владимиров, ЖЭТФ **88**(4), 1452 (1985).
29. W. J. Nellis, J. A. Moriarty, and A. C. Mitchell, Phys. Rev. Lett. **60**, 1414 (1988).
30. R. G. Greene, H. Lue, and A. L. Ruoff, Phys. Rev. Lett. **73**, 2075 (1994).
31. Г. В. Борисков, В. И. Тимарева, в кн.: *VIII Харитоновские чтения по проблемам физики высоких плотностей энергии*, РФЯЦ-ВНИИЭФ, Саров (2006), с. 516.
32. С. С. Бацанов, Успехи химии **75**, 669 (2006).
33. M. D. Knudson, M. P. Desjarlais, R. W. Lemke, T. R. Mattsson, M. French, N. Nettelmann, and R. Redmer, Phys. Rev. Lett. **108**, 091102 (2012).

Формирование фаз алмаза и/или лонсдейлита из мультиграфена под действием наноиндентора – моделирование методом машинного обучения

С. В. Ерохин⁺, А. А. Ращупкин⁺, Л. А. Чернозатонский*, П. Б. Сорокин^{+×1)}

⁺Лаборатория цифрового материаловедения, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования “Национальный исследовательский технологический университет “МИСИС”, 119049 Москва, Россия

*Институт биохимической физики РАН, 119334 Москва, Россия

[×]Государственный научный центр Российской Федерации

“Технологический институт сверхтвердых и новых углеродных материалов”, 108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 10 апреля 2024 г.

После переработки 19 апреля 2024 г.

Принята к публикации 22 апреля 2024 г.

Работа посвящена теоретическому исследованию алмазообразования в многослойном графене под воздействием локального механического напряжения, вызванного индентированием пленки. Для описания данного эффекта был параметризован потенциал машинного обучения, основанный на представлении окружения атомов в виде тензоров моментов инерции. Полученные результаты демонстрируют, что атомная геометрия зарождающегося алмаза определяется как упаковкой графена, так и размером индентора, при этом в сформированной структуре наблюдается соединение кубического и гексагонального алмаза. Исследование также выявило существенно более низкое давление фазового перехода для графена с упаковкой AA' по сравнению с упаковкой ABC в пленках с числом слоев менее 100.

DOI: 10.31857/S1234567824110090, EDN: BOZGRY

Введение. Алмазообразование многослойного графена – интереснейшая тема в современном материаловедении. Соединение графеновых слоев приводит к образованию двумерного алмаза, также известного как диамант [1], который обладает любопытными свойствами и имеет разнообразные применения. Он может служить сверхтвердым покрытием с широкой оптической прозрачностью, основой для однофотонных эмиттеров, биологически активной подложкой, биосенсором и многими другими оптоэлектронными элементами [2–4]. Однако получение этого материала весьма нетривиально. Действительно, термодинамическая неустойчивость алмаза в полной мере проявляется на наноуровне, когда поверхностные эффекты нивелируют барьер графитизации [5]. Алмазные пленки, состоящие из нескольких графеновых слоев нестабильны, а давление фазового перехода (ФП) значительно увеличивается с уменьшением числа слоев, что наблюдалось в экспериментах [6] и предсказывалось в предыдущих исследованиях [5]. Стабилизировать алмазные пленки такой малой толщины возможно с помощью химически индуцированного фазового

перехода путем присоединения сторонних атомов на поверхность структуры [5, 7], о чем свидетельствуют многочисленные успешные эксперименты [8–13]. Однако если необходимо контролируемое локализованное образование алмаза в графене, следует использовать другие методы. Хотя облучение электронами или ионами [14, 15] позволяет соединять графеновые слои, наиболее удобным методом является непосредственное индентирование пленки.

Индентирование графена – это стандартная процедура при изучении поведения сверхтонких пленок под действием локального механического напряжения. Успешные экспериментальные наблюдения алмазообразования графена при индентировании [16, 17] дополнительно подтверждают необходимость тщательного теоретического анализа поведения графена под нагрузкой. Например, в работе [6] предполагается возможность образования бислойной пленки с гексагональной алмазной структурой при высоком давлении. Действительно, именно пленка лонсдейлита с поверхностью (10 $\bar{1}$ 0) имеет высокую стабильность для случая небольшого числа слоев [18]. Такая структура может быть кандидатом в качестве возможной двумерной алмазной структуры, формируемой под давлением. Таким образом, при

¹⁾e-mail: PBSorokin@misis.ru

вдавливании возможно формирование не только алмаза с кубической, но и с гексагональной структурой или их комбинаций. Для ответа на этот вопрос необходимо прямое моделирование нагружения графеновой пленки с разным числом слоев индентором с разным размером. Однако до недавнего времени проведение такого рода моделирования было невозможно.

Благодаря последним достижениям в области потенциалов машинного обучения (MLP) стало возможным более глубокое изучение механизма ФП на атомном уровне, что способствует фундаментальному пониманию этого процесса. Основная идея таких потенциалов заключается в отказе от физического анализа в пользу предсказания потенциальной энергии системы путем численной интерполяции между известными данными, полученными из квантово-механических расчетов (энергия, сила и т. д.) [19].

Для решения такой задачи могут подойти потенциалы машинного обучения, основанные на представлении окружения через тензоры моментов инерции (МТР) [20–22]. Преимуществами данного типа потенциалов являются скорость вычислений и общая форма представления атомарного окружения. Кроме того, данный тип потенциалов более эффективен с вычислительной точки зрения по сравнению с аналогами [23].

В данной работе мы использовали потенциалы машинного обучения для моделирования поведения многослойного графена под давлением, вызванным воздействием индентора. Было проведено исследование соединения графеновых слоев, приводящее к образованию кубической и гексагональной алмазных фаз. Также мы рассмотрели зависимость фазового перехода от количества слоев и размера индентора.

Вычислительный метод. Тренировка потенциала машинного обучения проводилась в пакете MLP-2 [22], в котором реализован функционал для параметризации потенциалов МТР. Основная идея данных MLP заключается в аппроксимации квантово-механического взаимодействия между атомами специфическими базисными функциями. Данные функции представляют собой полиномы, основанные на тензорах “инерции” различного ранга, форма которых подробно изложена в работе [21]. Существует механическая интерпретация данных тензоров: тензор нулевого ранга показывает число атомов на расстоянии радиуса обрезания или меньше (это также можно воспринимать, как “массу” группы атомов), тензор первого ранга определяет центр масс таких атомов, второго ранга – тензор инерции, и т.д. Для решаемой задачи использовались шаблоны по-

тенциалов с рангом тензора момента инерции от 4 до 6 (уровень потенциала от 16 до 24). Наиболее успешный подготовленный потенциал был 24 уровня, с радиусом обрезания 5 \AA и размером базиса, равным 8. Для лучшей тренировки потенциала на периодических структурах с различным числом атомов в ячейке использовался флаг “-weighting = structures”. Значение весов для сил было задано как 0.05 (по умолчанию 0.01), что позволило различить графеновые упаковки. Другие параметры тренировки, кроме указанных выше, были взяты по умолчанию. Верификация потенциала выполнялась в два этапа. Сначала проверялось, что ошибка в определении сил и энергий на валидационном наборе сравнима с ошибкой на тренировочном наборе. Затем тренировочный и валидационный набор объединялись, и на общем наборе потенциал улучшался повторной параметризацией. Далее полученный потенциал проверялся путем расчета параметров решетки и упругих характеристик исследуемых структур. Параметризованный потенциал использовался с помощью пакета LAMMPS [24].

Расчеты структур для тренировочного набора выполнены с помощью DFT [25, 26] в обобщенном градиентном приближении с помощью параметризации Пердью–Бурка–Эрнзергофа (PBE) [27], реализованном в пакете VASP [28–30]. Для описания взаимодействия между слоями графита в расчет были включены поправки Гримма D2 [31]. Энергия отсечки плоских волн была выбрана 400 эВ, в то время как зона Бриллюэна разбивалась на k -точки с помощью сетки Монкхорста–Пака с плотностью, соответствующей эмпирическому соотношению $N \cdot a = 25$, где a – параметр суперячейки, а N – число k -точек вдоль соответствующего направления [32]. Релаксация атомной структуры проводилась до тех пор, пока максимальная межатомная сила не становилась меньше 0.02 эВ/\AA . Также с помощью VASP проводилась стандартная молекулярная динамика (NVT ансамбль) при температуре 300 К с термостатом Носе–Гувера. Шаг по времени составлял 0.5 фс, тогда как суммарное число шагов для структур с наибольшим числом атомов задавалось равным 2000.

Моделирование поведения структуры под действием индентора проводилось на примере пленки с числом слоев от 3 до 16 в квадратной области размером $100 \times 100 \text{ \AA}^2$ с учетом периодических граничных условий. Размер ящика для моделирования был выбран так, чтобы на краях ящика слои графена при максимальном вдавливании индентора смещались не более, чем на 2% по оси Z . Такая поправка не вносила видимых изменений в полученные тренды, и результаты не зависели от размера ящика. Инденти-

рование проводилось сферическим геометрическим телом радиусом от 15 до 50 Å. Сдвиг сферического тела в ходе процесса индентирования осуществлялся по оси z с шагом 0.3 Å. Под пленкой была добавлена потенциальная стенка для предотвращения ее движения при индентировании (моделирование жесткой подложки). И сферический индентор, и стенка моделировались как отталкивающее силовое поле, которое действует на все атомы, пересекающие заданные поверхности, по закону $F = -K \cdot (r - R)^2$, где K – заданная силовая постоянная, r – расстояние от атома до центра индентора (или его координата Z), а R – радиус индентора (или координата Z стенки). Постоянная K была выбрана равной 0.6 эВ/Å³ для индентора и 1000 эВ/Å³ для стенки. На каждом шаге индентирования атомная геометрия системы подвергалась релаксации с использованием метода минимизации сопряженного градиента до достижения разницы энергии между шагами минимизации меньшей или равной 10⁻⁶ эВ/Å. Это обеспечивало стабильное и равновесное состояние системы во время всего процесса индентирования.

Визуализация структур при индентировании и анализ атомного окружения для отображения алмазной решетки проводились в пакете OVITO [33]. Распределение функции локализации электронов отображено с помощью пакета VESTA [34].

Результаты и их обсуждение. Набор данных, использованных для обучения МТР потенциала, представлен в виде карты на рис. 1а, сгенерированной на основании геометрического сходства структур с использованием подхода [35]. Общий набор включал в себя 417 структур разного размера, которые были либо построены, либо получены в результате молекулярной динамики с использованием метода теории функционала электронной плотности. В обучающий набор были включены различные пленки, а также объемные структуры кубического, гексагонального алмаза и графита (при нулевом и конечном давлении). Каждая точка на карте представляет структуру в наборе данных. Положение каждой точки определяется с помощью анализа изученных дескрипторов локальных атомных окружений всех атомов в структуре. Различные области на карте соответствуют разным типам структур, на что указывают визуализированные атомные конфигурации. Каждая область содержит структуры, имеющие схожую атомную геометрию, при этом число различных областей и содержащиеся в них структуры говорит о том, что в набор данных включены ключевые особенности графена и алмаза, находящиеся как в свободном состоянии, так и под

давлением. Так, вверху карты рис. 1а находится набор структур многослойного графена, полученный из молекулярно-динамического моделирования методом DFT при температуре 300 К в течение нескольких пикосекунд. Каждые 50 фс структура добавлялась в набор. Справа на карте сгруппированы деформированные графитовые структуры, которые добавлялись в набор для описания растяжения связей. Внизу слева находятся пленки кубического и гексагонального алмаза с небольшим числом слоев (меньше 6). Внизу справа сгруппированы объемные кристаллы алмаза и пленки с большим числом слоев. В центре карты расположены пленки с частичным образованием связей и пленки, сжатые до высокого давления (40 ГПа).

Часть набора данных была зарезервирована для тестирования и не использовалась в процессе обучения для оценки качества тренировки потенциала: тренировка останавливалась, когда точность определения сил и энергий на тестовом наборе была близка к точности на тренировочном наборе. Как показано на графике регрессии на рис. 1б, MLP может воспроизводить силы, действующие на атомы, полученные с помощью DFT расчета, со среднеквадратичной ошибкой (RMSE) 130 мэВ/Å. При этом точность определения энергии структур получается 7 мэВ на атом. Эти значения сопоставимы со значениями других опубликованных потенциалов машинного обучения, основанных на том же подходе.

Также качество ML-потенциала было проверено на физических свойствах исследуемых материалов. Например, объемный модуль упругости графита и алмаза воспроизводится с достаточно высокой точностью: 437 ГПа для алмаза (442 ГПа – DFT расчет) и 318 ГПа для графита с упаковкой ABC (285 ГПа – DFT расчет) и 288 ГПа для графита с упаковкой AA'. Стоит отметить, что полученный потенциал действительно различает ABC и AA' упаковки и корректно предсказывает энергетическую выгодность ABC графена на 0.003 эВ/атом и показывает более низкое межслоевое расстояние 3.17 Å (3.29 для AA' графена) в соответствии с методом DFT-D2.

После подтверждения точности MLP метод был использован для моделирования поведения графена под давлением с помощью пакета LAMMPS.

Поскольку упаковка графена АВ может привести только к образованию бислойной кубической алмаза, а при большем числе слоев соединение в единую структуру невозможно, то мы изучили две другие низкоэнергетические упаковки графена, которые могут привести к алмазообразованию: ABC и AA', предполагая их спонтанное формирование в резуль-

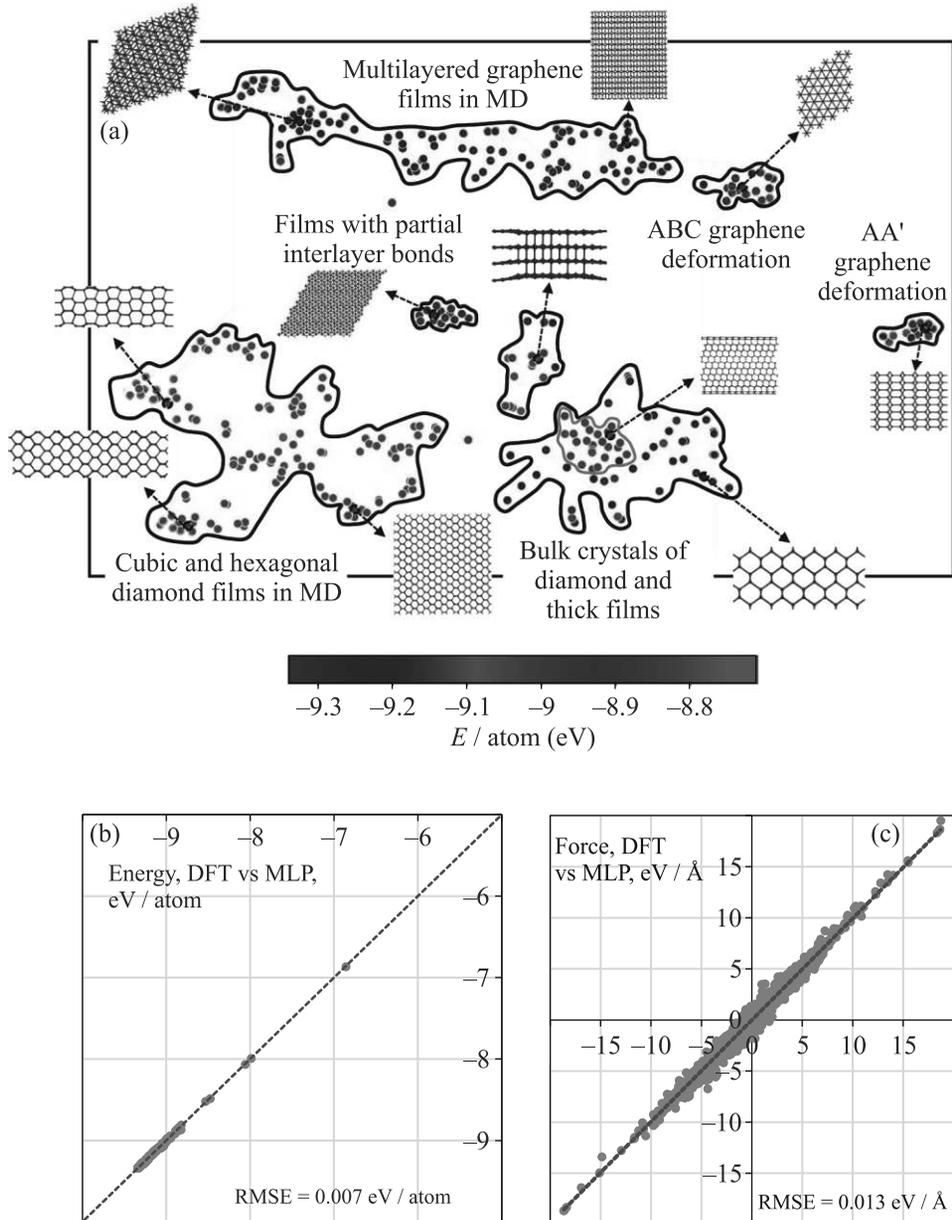


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Распределение данных для 417 структур, которые были использованы для обучения потенциала, полученное с помощью подхода [35]. Каждая цветная точка на распределении соответствует определенной атомной геометрии. Цвет отображает энергию структуры. Точки сгруппированы по математическим параметрам, которые вычисляются алгоритмом. Примеры структур представлены рядом с группами точек. (b), (c) – График сравнения энергий (b) и сил (c), полученных с помощью MLP и DFT расчетов, на тренировочном наборе

тате смещения слоев при индентировании. Мы обнаружили, что процесс соединения графена, начиная с четырех слоев, происходит похожим образом, а именно: их постепенное сближение, затем соединение в области непосредственно под индентором. При этом для более тонких пленок соединение слоев не наблюдалось в связи с высокой поверхностной энергией и

доминирующим эффектом графитизации, не допускающим алмазообразование [5]. Интересно, что если радиус индентора сопоставим или меньше толщины пленки, то алмазное ядро первоначально не проникает через всю ее толщину, см. рис. 2а. Дальнейшее перемещение индентора приводит к расширению алмазной области. Однако ее структура существен-

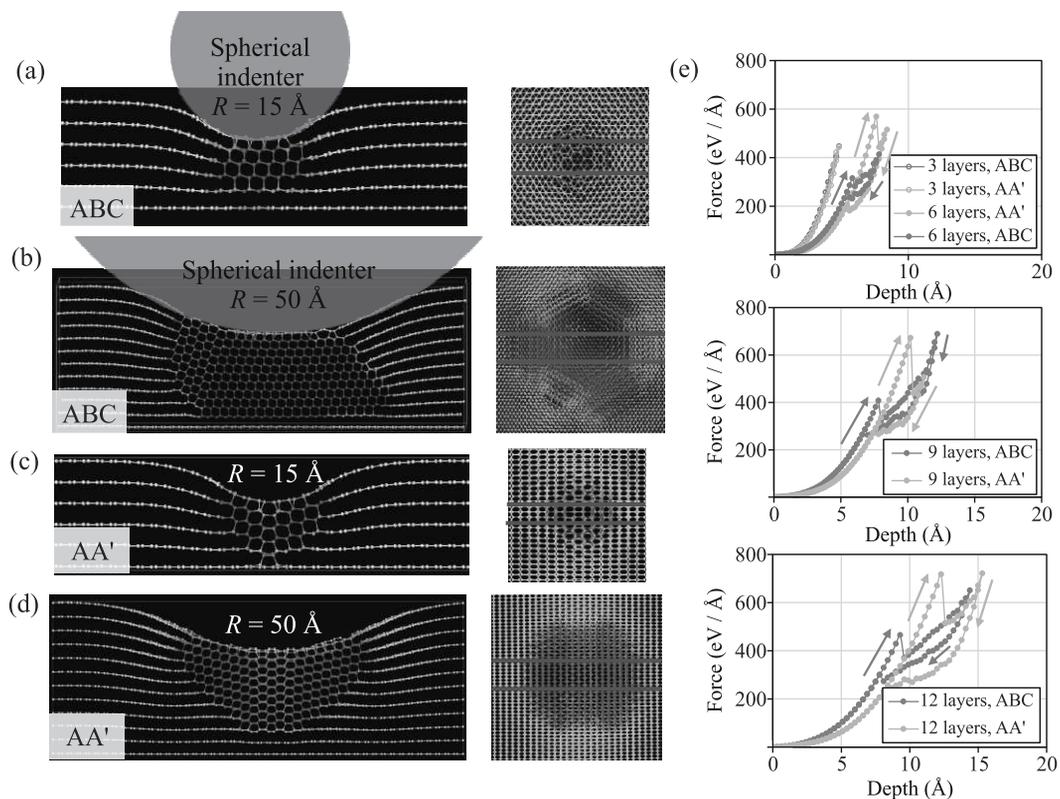


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a)–(d) – Атомная структура многослойного графена при индентировании со сформированной алмазной областью. Сначала продемонстрирован срез структуры, вид сбоку. Затем вид пленки сверху, где красными линиями показана область среза. По атомному окружению проведен анализ структуры, и синим цветом выделены атомы, принадлежащие структуре кубического алмаза, а оранжевым – атомы гексагонального алмаза. (e) – Зависимость силы, действующей на индентор, от глубины индентирования и числа слоев для индентора с радиусом 50 \AA . Зависимость построена как для нагружения графена индентором с появлением зародыша алмаза, так и для случая снятия нагрузки и трансформации зародыша обратно в слой графена (стрелочки указывают порядок построения зависимости)

но зависит от упаковки графена и размера индентора. Так, в случае графена с упаковкой ABC(AA') мы обнаружили, что первоначально ожидаемый кубический (гексагональный) алмаз (рис. 2a) окружен гексагональными (кубическими) областями алмаза (рис. 2b). Более того, алмазная/лонсдейлитовая область наследует симметрию упаковки графена. Так, в сформированной структуре кубического алмаза, окруженного тремя областями лонсдейлита прослеживается ось третьего порядка упаковки ABC. В случае упаковки AA' элемент ее зеркальной симметрии также прослеживается в образованном алмазе, который содержит две противоположно ориентированные области кубического алмаза, между которыми находится область лонсдейлита.

Также наблюдается заметная разница между поведением пленок с упаковкой ABC и AA' при воздействии индентора малого и большого радиуса. При

том что размер алмазного зародыша пропорционален радиусу индентора, в случае его образования из соединения графена с упаковкой AA' размер гексагонального алмаза при малом радиусе пренебрежимо мал и очень слабо зависит от глубины индентирования (рис. 2c). Таким образом, в случае упаковки AA' гексагональный алмаз служит лишь предшественником для формирования кубического алмаза с кристаллографической ориентацией [112] вдоль направления оси c . Наблюдение данного кристаллографического направления согласуется с результатами моделирования ФП графит-алмаз [36].

Зависимость силы, действующей на индентор, от глубины индентирования схожа для всех рассматриваемых структур (рис. 2e), а именно, ее монотонное увеличение до критического значения, после которого происходит соединение слоев, сопровождающееся резким падением силы. Дальнейшее проникновение

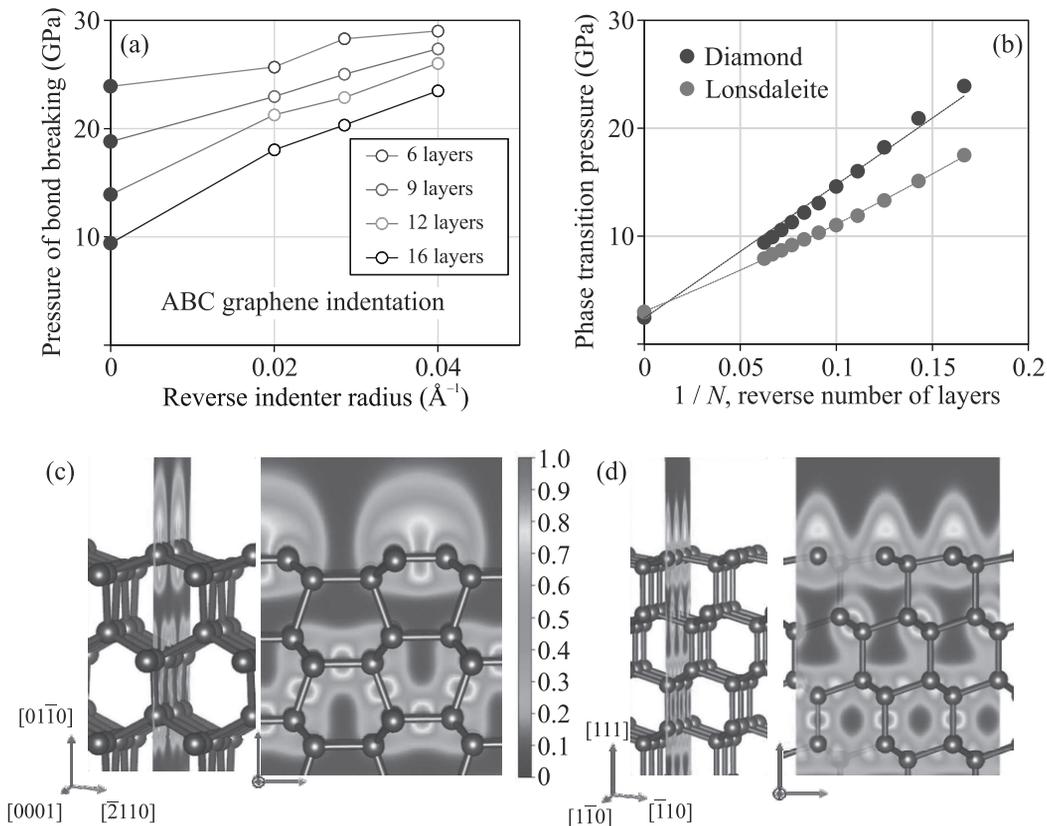


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость давления трансформации графен-алмаз для пленок с разным числом слоев в зависимости от обратного размера индентора для случая упаковки ABC. (b) – Зависимость давления фазового перехода для случая индентора бесконечного размера (плоскость) от числа слоев в графене. (c), (d) – На рисунке представлены структуры пленок гексагонального (c) и кубического (d) алмаза. Внизу слева от каждой структуры указана кристаллографическая ориентация тремя направлениями и индексами. Непериодическое направление направлено вверх. Через атомы с оборванными связями на поверхности пленки проведена плоскость, на которой цветом отображена функция локализации электронов, рассчитанная методом DFT

индентора увеличивает значение силы, а снятие нагрузки снижает давление до критического значения, после чего алмазные слои снова расщепляются на графен. При этом для случая 3-х слойной пленки скачок силы не происходит (рис. 2e) в связи с отсутствием соединения слоев графена. Заметим, что отсутствие алмазообразования нескольких слоев графена также подтверждалось экспериментально [6].

Было также оценено давление фазового перехода для образования зародыша алмазной фазы. Для этого необходимо было получить значение критической силы и контактную площадь при ФП. Контактная площадь оценивалась по формуле $\pi \cdot (2 \cdot h \cdot R - h^2)$, т.е. как сечение сферы на расстоянии $(R-h)$ от центра сферы, где R – радиус индентора, а h – глубина погружения в пленку. Также, поскольку при вдавлении индентора образование зародыша происходило с преодолением значительного потенциального барьера, то определение фазового перехода в этом

случае получалось с большой погрешностью. С другой стороны, разрыв зародыша при снятии нагрузки происходил практически безбарьерно, см. рис. 2e. Поэтому в качестве значения силы для расчета давления фазового перехода бралась точка, соответствующая разрыву зародыша алмаза. В связи с указанными приближениями определения критической силы и контактной площади значение давления фазового перехода можно трактовать только как оценочное.

На рисунке 3a показана зависимость величины критического давления от размера индентора (рис. 3a) для различного числа слоев в графене с упаковкой ABC. Как видно, зависимость монотонна и постепенно стремится к значению для индентора бесконечного размера, т.е. плоскости, действующей на графен (аналог алмазной наковальни). Для случая AA' упаковки монотонной зависимости давления разрыва не наблюдалось, что, вероятно, связано с существенными отличиями структуры

зародышей при малых и больших диаметрах индентора. Например, при малых радиусах индентора доля гексагонального алмаза по сравнению с кубическим была пренебрежимо мала (рис. 2с). Расчет давления фазового перехода при сжатии пленок ABC и AA' плоским индентором показан на рис. 3б. В этом случае давление ФП определяется точно по пересечению графиков зависимостей от давления энтальпии фазы пленки графена с упаковкой ABC или AA' и энтальпии фазы кубического или гексагонального алмаза, соответственно. Энтальпия в случае одноосного сжатия рассчитывалась как $H = E_p + PV = E_p + F \cdot h$, где E_p – потенциальная энергия структуры, полученная с помощью MLP, P – давление, V – объем элементарной ячейки структуры, F – сила, действующая на плоскость, которая давит на структуру, h – толщина пленки. Единственная неоднозначно определяемая величина в формуле – толщина h . Толщина рассчитывалась как разница средней координаты атомов верхнего и нижнего слоя структуры ($Z_{\max} - Z_{\min}$) плюс среднее расстояние между слоями в пленке, т.е. $h = (Z_{\max} - Z_{\min}) \frac{N}{(N-1)}$, где N – число слоев в пленке.

Отметим, что давление фазового перехода лонсдейлита с упаковкой AA' во всех рассмотренных пленках заметно меньше, чем в случае упаковки ABC. Для объяснения причины более низкого давления перехода в пленки с лонсдейлитовой структурой была построена функция электронной локализации с помощью метода DFT (рис. 3с, d).

Поскольку на поверхности алмаза имеются обрыванные связи, то энергия поверхности оказывается невыгодной по сравнению с поверхностью многослойного графена. Однако, как видно из рис. 3с, на поверхности лонсдейлита (01 $\bar{1}$ 0) электроны перераспределяются, тем самым понижая энергию поверхности, тогда как на поверхности кубического алмаза (111) такое перераспределение затруднено из-за окружения. В результате расчеты DFT показывают значения поверхностной энергии для кубического алмаза 0.39 эВ/Å² и гексагонального алмаза 0.19 эВ/Å², что и приводит к давлению ФП в случае лонсдейлита ниже, чем в случае алмаза. При этом для объемных кристаллов давление ФП кубического алмаза оказывается меньше (2.4 ГПа для кубического алмаза и 2.9 для лонсдейлита). Таким образом, существует предельное число слоев (~100 слоев из рис. 3б) после которого при меньшем давлении формируется кубический алмаз.

Закключение. Представленная работа является первым опытом моделирования процесса алмазооб-

разования многослойного графена, индуцированное локальным механическим напряжением, вызванным процессом индентирования. Для решения данной задачи взаимодействие между атомами описывалось с помощью потенциалов машинного обучения, основанных на представлении атомного окружения через тензоры моментов инерции.

Непосредственное моделирование индентирования позволило изучить процессы, происходящие в многослойном графене под высоким давлением. Так, показано, что независимо от типа упаковки графена первоначальное алмазное ядро формируется у индентора и не проникает на всю глубину пленки. При этом структура алмазного зародыша демонстрирует высокую чувствительность к типу упаковки и размеру индентора. В работе были изучены две низкоэнергетические упаковки графена, которые могут привести к образованию алмаза: ABC и AA', предполагая их спонтанное образование в результате смещения слоев при индентировании. В случае упаковки ABC изначально образуется зародыш кубического алмаза с осью вращения третьего порядка, окруженный областями гексагонального алмаза (лонсдейлита). При дальнейшем погружении индентора плавно увеличиваются размеры и кубического алмаза, и лонсдейлита. Для упаковки AA' характерно другое поведение. Сначала появляется прослойка гексагонального алмаза с зеркальной симметрией, вокруг которой образуются области кубического алмаза. С погружением индентора толщина прослойки лонсдейлита не меняется, тогда как доля кубического алмаза существенно возрастает. При малых размерах индентора гексагональный алмаз появляется в виде дефекта дублирования между областями кубического алмаза, т.е. является предшественником для роста фазы кубического алмаза. Еще одним важным результатом является существенно более низкое давление фазового перехода многослойного графена с упаковкой AA' в лонсдейлит по сравнению с ABC многослойным графеном в кубический алмаз для тонких пленок в случае индентора бесконечного размера (плоскости). *Ab initio* анализ электронной плотности поверхности лонсдейлита показал, что это связано с перераспределением электронов, приводящим к понижению поверхностной энергии гексагонального алмаза по сравнению с кубическим.

Отметим, что в эксперименте многослойный графен неоднократно подвергался локальному продавливаю путем индентирования [16, 17]. Успешные результаты таких экспериментов позволили наблюдать алмазообразование в бислоином графене (что, вероятно, связано с химической связью графена с

индентором, т.е. в результате химически индуцированного фазового перехода). Кроме того, сейчас существуют методы, позволяющие измерять спектры комбинационного рассеяния в процессе индентирования поверхности с помощью оптически прозрачного индентора-объектива [37]. Спектры кубического и гексагонального алмаза различимы [38], так образцы смешанных фаз лонсдейлита и алмаза демонстрируют сдвиг общего широкого пика с 1332 см^{-1} до более низких значений (до 1320 см^{-1}). Таким образом, можно предположить возможность экспериментальной проверки наших предсказаний, на которую мы надеемся в ближайшем будущем.

Финансирование работы. Работа финансировалась Российским научным фондом в рамках проекта # 22-72-00138. Тренировка потенциала машинного обучения проводилась на Вычислительном центре Дальневосточного отделения Российской академии наук. Расчеты теорией функционала плотности проводились на суперкомпьютерном кластере, предоставленном лабораторией “Моделирования и разработки новых материалов” Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования “Национальный исследовательский технологический университет “МИСИС”, и межведомственном суперкомпьютерном центре Российской академии наук.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. Л. А. Чернозатонский, П. Б. Сорокин, А. Г. Квашнин, Д. Г. Квашнин, Письма в ЖЭТФ **90**, 144 (2009).
2. L. A. Chernozatonskii, V. A. Demin, and D. G. Kvashnin, Journal of Carbon Research **7**, 17 (2021).
3. P. B. Sorokin and B. I. Yakobson, Nano Lett. **21**, 5475 (2021).
4. F. Lavini, M. Rejhon, and E. Riedo, Nat. Rev. Mater. **7**, 10 (2022).
5. A. G. Kvashnin, L. A. Chernozatonskii, B. I. Yakobson, and P. B. Sorokin, Nano Lett. **14**, 676 (2014).
6. F. Ke, L. Zhang, Y. Chen, K. Yin, C. Wang, Y. K. Tzeng, Y. Lin, H. Dong, Z. Liu, J. S. Tse, W. L. Mao, J. Wu, and B. Chen, Nano Lett. **20**, 5916 (2020).
7. S. V. Erohin, Q. Ruan, P. B. Sorokin, and B. I. Yakobson, Small **16**, 2004782 (2020).
8. P. V. Bakharev, M. Huang, M. Saxena, S. W. Lee, S. H. Joo, S. O. Park, J. Dong, D. C. Camacho-Mojica, S. Jin, Y. Kwon, M. Biswal, F. Ding, S. K. Kwak, Z. Lee, and R. S. Ruoff, Nat. Nanotechnol. **15**, 59 (2019).
9. J. Son, H. Ryu, J. Kwon, S. Huang, J. Yu, J. Xu, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Ji, S. Lee, Y. Shin, J. H. Kim, K. Kim, A. M. Zande, and G.-H. Lee, Nano Lett. **21**, 891 (2021).
10. X. Chen, M. Dubois, S. Radescu, A. Rawal, and Ch. Zhao, Carbon **175**, 124 (2021).
11. F. Piazza, K. Cruz, M. Monthieux, P. Puech, and I. Gerber, Carbon **169**, 129 (2020).
12. F. Piazza, M. Monthieux, P. Puech, and I. C. Gerber, Carbon **156**, 234 (2020).
13. F. Piazza, K. Gough, M. Monthieux, P. Puech, I. Gerber, R. Wiens, G. Paredes, and C. Ozoria, Carbon **145**, 10 (2019).
14. L. F. Tomilin, S. V. Erohin, N. A. Nebogatikova, I. V. Antonova, A. K. Gutakovskii, V. A. Volodin, E. A. Korneeva, and P. B. Sorokin, Carbon **220**, 118832 (2024).
15. N. A. Nebogatikova, I. V. Antonova, A. K. Gutakovskii, D. V. Smovzh, V. A. Volodin, and P. B. Sorokin, Materials **16**, 4 (2023).
16. Y. Gao, T. Cao, F. Cellini, C. Berger, W. A. de Heer, E. Tosatti, E. Riedo, and A. Bongiorno, Nat. Nanotechnol. **13**, 133 (2018).
17. F. Cellini, F. Lavini, T. Cao, W. de Heer, C. Berger, A. Bongiorno, and E. Riedo, FlatChem **10**, 8 (2018).
18. A. G. Kvashnin and P. B. Sorokin, J. Phys. Chem. Lett. **5**, 541 (2014).
19. Y. Mishin, Acta Materialia **214**, 116980 (2021).
20. E. V. Podryabinkin and A. V. Shapeev, Comput. Mater. Sci. **140**, 171 (2017).
21. A. V. Shapeev, Multiscale Model. Simul. **14**, 1153 (2016).
22. I. S. Novikov, K. Gubaev, E. V. Podryabinkin, and A. V. Shapeev, Mach. Learn.: Sci. Technol. **2**, 025002 (2020).
23. Y. Zuo, C. Chen, X. Li, Z. Deng, Y. Chen, J. Behler, G. Csanyi, A. V. Shapeev, A. P. Thompson, M. A. Wood, and S. P. Ong, J. Phys. Chem. A **124**, 731 (2020).
24. A. P. Thompson, H. M. Aktulga, R. Berger, D. S. Bolintineanu, W. M. Brown, P. S. Crozier, P. J. Veld, A. Kohlmeyer, S. G. Moore, T. D. Nguyen, R. Shan, M. J. Stevens, J. Tranchida, C. Trott, and S. J. Plimpton, Comput. Phys. Commun. **271**, 108171 (2022).
25. P. Hohenberg and W. Kohn, Phys. Rev **136**, B864 (1964).
26. W. Kohn and L. J. Sham, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965).
27. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. **77**, 3865 (1996).
28. G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B **47**, 558 (1993).
29. G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B **49**, 14251 (1994).
30. G. Kresse and J. Furthmuller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996).
31. S. Grimme, J. Comput. Chem. **27**, 1787 (2006).
32. H. J. Monkhorst and J. D. Pack, Phys. Rev. B **13**, 5188 (1976).
33. A. Stukowski, Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. **18**, 015012 (2009).

34. K. Momma and F. Izumi, *J. Appl. Cryst.* **44**, 1272 (2011).
35. M. Ceriotti, G.A. Tribello, and M. Parrinello, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **108**, 13023 (2011).
36. S. Zhu, X. Yan, J. Liu, A.R. Oganov, and Q. Zhu, *Matter* **3**, 864 (2020).
37. В.Н. Решетов, А.С. Усеинов, Г.Х. Сулганова, И.А. Кудряшов, К. Будич, *Химия и химическая технология* **64**, 34 (2021).
38. Y.E. Mendili, B. Orberger, D. Chateigner, J.-F. Bardeau, S. Gascoin, and S. Petit, *Chemical Physics* **559**, 111541 (2022).

Фазовый переход вблизи нечетного фактора заполнения $\nu = 3$

А. В. Щепетильников^{+ 1)}, Г. А. Николаев^{+*}, С. А. Андреева^{×+}, А. Р. Хисамеева⁺, Я. В. Федотова⁺,
А. А. Дрёмин⁺, И. В. Кукушкин⁺

⁺Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черногловка, Россия

^{*}Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

[×]Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 27 марта 2024 г.

После переработки 19 апреля 2024 г.

Принята к публикации 20 апреля 2024 г.

Фазовый переход, сопровождающийся появлением пика в продольном сопротивлении двумерной электронной системы, был изучен при помощи электронного спинового резонанса вблизи нечетного фактора заполнения $\nu = 3$ в ZnO/MgZnO гетеропереходе. Такой переход возникал при увеличении угла наклона магнитного поля θ до некоторого критического значения θ_c . Анализ амплитуды спинового резонанса позволил продемонстрировать спиновую природу этого явления. Так, основное состояние системы по обе стороны от перехода имеет ненулевую спиновую поляризацию, величина которой меняется в несколько раз при переходе из одной фазы в другую. При этом интенсивный спиновый резонанс наблюдается как при $\theta < \theta_c$, так и при $\theta > \theta_c$. Удивительным образом, непосредственно в критическом угле θ_c спиновый резонанс детектировался лишь в одной из фаз, лежащей в области магнитных полей меньших, чем критическое поле B_c , соответствующее положению пика в продольном сопротивлении. По мере увеличения магнитного поля до этого значения наблюдалось как уменьшение амплитуды резонанса, так и увеличение его ширины. В области полей, больших B_c , спиновый резонанс полностью исчезал. Такое поведение резонанса, по всей видимости, обуславливается разбиением электронной системы на домены с разной спиновой поляризацией.

DOI: 10.31857/S1234567824110107, EDN: DPXSFG

Сильное электрон-электронное взаимодействие приводит к значительному усложнению физики низкоразмерных электронных систем при низких температурах и обуславливает появление целого ряда различных нетривиальных основных и возбужденных состояний системы [1–18]. Несмотря на то, что значительная часть ключевых теоретических концепций появилась много лет назад, экспериментальные исследования сильно коррелированных электронных систем были существенно ограничены из-за отсутствия образцов достаточного качества, которые появились лишь относительно недавно [19–21]. Например, для наблюдения наиболее ярких многочастичных эффектов – неустойчивости Стонера и кристаллизации Вигнера – требуется, чтобы кинетическая энергия электронов – энергия Ферми – была пренебрежимо мала в сравнении с обменной энергией, что в нулевом магнитном поле достигается лишь при уменьшении двумерной плотности n вплоть до очень низкого значения $\sim 10^{10}$ см⁻² в типичных структурах [24]. Действительно, ха-

рактерная энергия кулоновского взаимодействия $\sim n^{1/2}$, а энергия Ферми линейна по n , а значит, отношение этих двух величин растет с уменьшением электронной плотности n .

Приложение внешнего магнитного поля снимает жесткое ограничение на электронную плотность, поскольку оно превращает спектр движения электронов в набор дискретных уровней, т.е. фактически “замораживает” их кинетическое движение. Так, в двумерных системах даже с не самыми маленькими плотностями $\sim 10^{11}$ см⁻² в больших магнитных полях наблюдаются яркие многочастичные явления – дробный квантовый эффект Холла [25], в том числе и вблизи факторов заполнения с четными знаменателями [26], формирование вигнеровского кристалла [27], а также ферромагнитные фазовые переходы, аналогичные стонерской неустойчивости, при которых происходит крупномасштабное изменение спиновой поляризации основного состояния системы [5] в режиме квантового эффекта Холла. Отметим, что еще одним способом уменьшения кинетической энергии в сравнении с энергией кулоновского взаимодействия является понижение размерности системы, что

¹⁾e-mail: shchepetilnikov@issp.ac.ru

также позволяет наблюдать магнитную неустойчивость Стонера в одномерных [28] и нульмерных системах [29, 30].

Рассмотрим спонтанное изменение спиновой поляризации основного состояния системы в режиме квантового эффекта Холла более подробно. Подобный ферромагнитный переход может наблюдаться как вблизи целых [1, 5], так и дробных факторов заполнения [31, 32]. Он происходит при уменьшении электронной плотности или при изменении угла θ наклона магнитного поля. Изменение n фактически изменяет характерную энергию обменного взаимодействия, а увеличение угла θ приводит к увеличению спинового расщепления электронных состояний для фиксированного фактора заполнения, величина которого задается полным магнитным полем $B_{\perp}/\cos\theta$. Перпендикулярная плоскости образца компонента магнитного поля B_{\perp} определяется фактором заполнения системы и электронной плотностью n . В работе [5, 33] анализ фотолюминесценции электронной системы позволил построить фазовую диаграмму ферромагнитной неустойчивости вблизи фактора заполнения $\nu = 2$ в координатах плотность электронов n и $1/\cos\theta$. Аналогичные фазовые переходы могут также происходить и в различных однослойных материальных системах, в которых многочастичный фактор Ланде увеличивается в несколько раз за счет электрон-электронного взаимодействия [34–37].

Спонтанное изменение спинового состояния системы сопровождается значительным изменением как транспортных, так и оптических свойств двумерного канала. Как было показано, например, в работе [38], разбиение системы на домены с разной спиновой поляризацией вблизи перехода приводит к усилению рассеяния на доменных стенках и, как следствие, появлению ярко выраженного пика в продольном сопротивлении образца. Такое поведение также подтверждается гистерезисом пика при развороте магнитного поля. Интересно, что в магнетосопротивлении этот пик присутствует лишь в определенном температурном диапазоне ~ 1 К и исчезает при достаточно высоких и достаточно низких температурах [38], а значит, при определенных условиях транспортные методы анализа ферромагнитного перехода могут быть неприменимы. В работах [5, 33] было показано, что ферромагнитная и парамагнитная фаза вблизи четного фактора заполнения характеризуются разным спектром фотолюминесценции. Анализ амплитуды линии комбинационного рассеяния света, отвечающей рождению спинового экситона, позволил доказать, что такие фазовые пе-

реходы действительно сопровождаются изменением спиновой поляризации системы, причем как вблизи четного фактора заполнения $\nu = 2$, так и вблизи нечетного $\nu = 3$ [5]. Измерение температурной зависимости амплитуды такой линии позволило определить характерную энергию образования доменов вблизи $\nu = 2$ [39]. Магниторезонансные методики также активно использовались для изучения ферромагнитных фазовых переходов. Так, используя ядерный магнитный резонанс было продемонстрировано, что острый пик в сопротивлении, наблюдающийся вблизи дробного фактора заполнения $\nu = 2/3$ связан с ферромагнитным переходом и сопровождается переходом системы из неполяризованного в поляризованное по спину состояние [40]. Поведение электронного спинового резонанса вблизи фазового перехода при $\nu = 2$ было изучено в работе [41].

В рамках данной работы предполагается расширить существующие экспериментальные магниторезонансные исследования фазовых переходов в режиме квантового эффекта Холла и впервые применить методику электронного спинового резонанса для анализа фазового перехода вблизи фактора заполнения $\nu = 3$. Ранее такой подход успешно применялся для исследования фазового перехода вблизи $\nu = 2$ [41]. Отметим, что переходы вблизи $\nu = 2$ и $\nu = 3$ существенно различаются. Так, при $\nu = 2$ происходит переход между номинально парамагнитной и ферромагнитной фазами, а вблизи $\nu = 3$ обе фазы являются поляризованными по спинами, при этом степень их поляризации различается в несколько раз. Таким образом, спиновый резонанс должен наблюдаться по обе стороны от фазового перехода при $\nu = 3$, что позволит гораздо лучше понять модификацию всех основных спиновых свойств системы вблизи перехода. Фазовый переход вблизи $\nu = 3$ исследовался ранее при помощи комбинационного рассеяния света [33]. При этом анализировалось поведение линии, соответствующей рассеянию на спиновом экситоне – именно такое возбуждение рождается при резонансном поглощении микроволнового излучения в условиях спинового резонанса. Однако, как правило, методом комбинационного рассеяния света сложно отследить изменение ширины и формы резонансной линии, отвечающей спиновому экситону, из-за ограниченной разрешающей способности типичных спектрометров [5]. Напротив, магниторезонансные подходы свободны от такого ограничения и дают возможность с хорошей точностью изучать резонансные линии даже суб-мТ ширины. Более того, диапазон волновых векторов k , применяемых в рамках этих двух подходов, существенно различается. Если

при комбинационном рассеянии света типичные значения k составляют $0.1/l_b$ (здесь $l_b = \sqrt{\hbar/eB}$ представляет собой магнитную длину), то при спектроскопии спинового резонанса типичные значения kl_b лежат в диапазоне 10^{-4} – 10^{-5} , а значит, свойства системы изучаются на принципиально иных масштабах. Учитывая все приведенные выше обстоятельства, можно заключить, что изучение спонтанного изменения спиновой поляризации вблизи $\nu = 3$ при помощи электронного спинового резонанса представляет собой актуальную и интересную задачу.

В качестве объекта исследования в нашей работе выступал ZnO/MgZnO гетеропереход, содержащий высококачественную электронную систему. Структура была выращена посредством молекулярно-лучевой эпитаксии [42]. При низких температурах двумерная плотность электронов и их подвижность в исследуемом образце составляли $n = 1.9 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$ и $\mu = 5 \times 10^5 \text{ см}^2/\text{Вс}$, соответственно. Выбор такой материальной системы объясняется рядом ее уникальных качеств. Большая эффективная масса электрона и относительно небольшая диэлектрическая проницаемость материала обеспечивают доминирование характерной энергии $e-e$ взаимодействий в сравнении с энергией кинетического движения электронов. При этом параметр Вигнера–Зейтца (фактически отношение характерной энергии $e-e$ взаимодействия и энергии Ферми) r_s достигает значения 8, что практически на порядок превышает r_s в типичных GaAs/AlGaAs структурах. Большой фактор Ланде в таких структурах приводит к значительному одночастичному расщеплению спиновых состояний, что также облегчает наблюдение ферромагнитного фазового перехода.

На образце в геометрии ван дер Пау были сформированы индиевые контакты. Образец помещался в жидкий гелий-3 в область однородного магнитного поля. Эксперименты проводились при температуре 0.5 К, которая достигалась путем откачки паров гелия-3, и в магнитных полях вплоть до 15 Тл. Образец помещался на наклонную плоскость так, что магнитное поле было направлено под углом θ к нормали к поверхности структуры, как показано на рисунке 1b. Основные экспериментальные данные были получены для ряда углов $\theta = 0^\circ, 50^\circ, 61^\circ$ и 67° , что позволило изучить состояние системы до, во время и после фазового перехода при $\nu = 3$. Типичный вид продольного сопротивления двумерного канала R_{xx} в зависимости от перпендикулярного магнитного поля для всех четырех углов показан на рисунке 1a. На этом же рисунке отмечено положение пер-

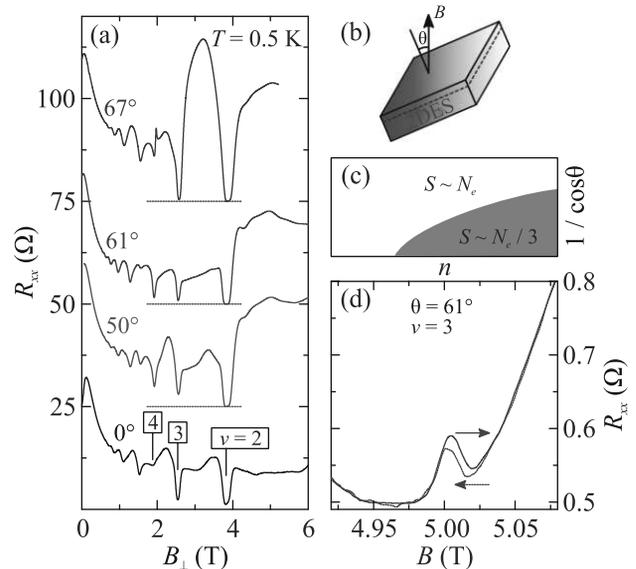


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Продольное магнетосопротивление R_{xx} образца в зависимости от перпендикулярной компоненты магнитного поля. Приведены графики для углов $\theta = 0^\circ$ и 50° ($\theta < \theta_c$), для критического угла $\theta_c = 61^\circ$ и для $\theta = 67^\circ$ ($\theta > \theta_c$). (b) – Схема, на которой показано взаимное расположение внешнего магнитного поля и нормали к поверхности образца. (c) – Схематичное изображение фазовой диаграммы рассматриваемого перехода. (d) – Гистерезис пика фазового перехода в магнитном поле при $\nu = 3$ в критическом угле. Сплошная кривая соответствует магнетосопротивлению двумерного канала при увеличении магнитного поля, пунктирная – при уменьшении

вых нескольких факторов заполнения. При промежуточном угле $\theta_c = 61^\circ$ наблюдался пик в сопротивлении образца вблизи фактора заполнения $\nu = 3$, как показано на панели (d) того же рисунка. Хорошо заметно, что этот пик проявляет гистерезис при развороте магнитного поля. При углах, отличных от θ_c , такой пик в сопротивлении образца отсутствует. Описанное поведение пика соответствует фазовому переходу. Схематично фазовая диаграмма рассматриваемого перехода показана на рис. 1c.

Для возбуждения электронного спинового резонанса использовалось электромагнитное излучение в диапазоне частот от 60 до 250 ГГц. Оно создавалось микроволновым генератором, сопряженным с набором модулей умножения частоты, и подводилось к образцу посредством цилиндрического сверхразмерного волновода. Эксперименты проводились в линейном по мощности режиме. Электронный спиновый резонанс детектировался по изменению сопротивления двумерного канала при поглощении микроволнового излучения [43]. При этом для улучше-

ния соотношения сигнал-шум использовалась стандартная методика двойного синхронного детектирования, подробно описанная в наших предыдущих работах [44, 45]. Здесь приведем лишь краткое описание. По образцу пропускался переменный ток с частотой 1 кГц, первый синхронный детектор был настроен на частоту переменного тока и измерял сигнал, пропорциональный сопротивлению R_{xx} образца. Электромагнитное излучение было модулировано по амплитуде на частоте $f \sim 20$ Гц и вызывало появление вариации сопротивления δR_{xx} , которая измерялась вторым синхронным детектором, настроенным на ту же частоту f . При таком подходе спиновый резонанс детектировался как острый пик в δR_{xx} при фиксированной частоте возбуждающего излучения и развороте магнитного поля. Стоит отметить, что форма и амплитуда наблюдаемых резонансных пиков не зависели ни от частот модуляции, ни от скорости разворота магнитного поля.

Примеры пиков, измеренных вблизи фактора заполнения $\nu = 3$, приведены на рис. 2а, с и е для трех углов $\theta = 50^\circ$, 61° и 67° . Пунктирной линией отмечено положение фактора заполнения $\nu = 3$ по магнитному полю. На рисунке 2с, на котором показаны экспериментальные данные для критического угла в 61° , штрих-пунктирная линия задает положение пика в сопротивлении, отвечающего фазовому переходу. Вблизи каждого резонансного пика указана соответствующая частота возбуждающего электромагнитного излучения. При $\theta = \theta_c$ в области полей, лежащих вблизи и выше пика в сопротивлении, для линий δR_{xx} частоты излучения не указаны, а экспериментальные значения сняты при последовательном увеличении частоты с шагом 0.3 ГГц.

При углах $\theta = 50^\circ$ и 67° , один из которых меньше критического, а второй больше, наблюдался хорошо выраженный спиновый резонанс во всем диапазоне магнитных полей в окрестности фактора заполнения $\nu = 3$. Причем для большего угла его интенсивность была в несколько раз выше. Можно заключить, что обе фазы, между которыми в критическом угле происходит переход, имеет существенно ненулевую спиновую поляризацию, а в состоянии, возникающем при $\theta = 67^\circ$, спиновая поляризация существенно больше. Это хорошо согласуется с простыми феноменологическими представлениями об устройстве такого фазового перехода, а также с экспериментальными данными, полученными при изучении неупругого рассеяния света в аналогичной структуре [33]. Устройство основного состояния в рамках простой феноменологической модели, которая описывает эффекты сильного электрон-

электронного взаимодействия путем введения перенормировки основных зонных параметров электрона – его массы и фактора Ланде, показано на панелях (b), (d) и (f) рис. 2. Подчеркнем, что такая модель носит чисто феноменологический характер, а ее обоснованность на данный момент доказана не до конца. Более правильный теоретический подход, основанный на рассмотрении модификации спектра спиновых возбуждений за счет электрон-электронного взаимодействия с учетом экранирования, хорошо описывает фазовый переход вблизи фактора заполнения 2 [46, 47], однако соответствующие расчеты еще не были проведены для случая $\nu = 3$. В рамках феноменологической модели основное состояние системы при $\nu = 3$ в области углов, меньших критического, соответствует полностью заполненному нулевому уровню Ландау, а также заполненному нижайшему спин-отщепленному подуровню первого уровня Ландау. Такое устройство характерно, например, для систем со слабым взаимодействием в GaAs/AlGaAs квантовых ямах и гетеропереходах. При таком заполнении поляризованной по спине оказывается примерно треть всех электронов. В области углов, больших θ_c , заполнены лишь нижайшие спиновые подуровни трех первых уровней Ландау, так что фактически все электроны поляризованы по спине. При таком заполнении должен наблюдаться интенсивный спиновый резонанс в полном соответствии с экспериментальными данными. Отметим, что при $\theta = 67^\circ$ спиновые резонансы заметно шире, чем при $\theta = 50^\circ$. Такое поведение может объясняться наличием спин-орбитального взаимодействия в такой структуре [48], которое перемешивает спиновую степень свободы и орбитальное движение электрона в режиме квантового эффекта Холла. Как следствие, спиновое расщепление i -го уровня Ландау зависит от квадрата его индекса. Таким образом, положения по магнитному полю резонансных спиновых переходов с каждого из уровней Ландау отличаются, обуславливая уширение суммарного пика. Оценка разницы в расщеплении для нулевого и второго уровней Ландау дает уширение на уровне ~ 1 мТ, что неплохо согласуется с экспериментальными данными.

С учетом всего сказанного выше удивительным выглядит поведение спинового резонанса непосредственно в критическом угле. Спиновый резонанс наблюдался лишь в одной из фаз, лежащей в области магнитных полей меньших, чем критическое поле B_c , соответствующее положению пика в продольном сопротивлении. Подчеркнем, что при таких фазовых переходах [41] область с большей спиновой поляризацией лежит именно в меньших критического маг-

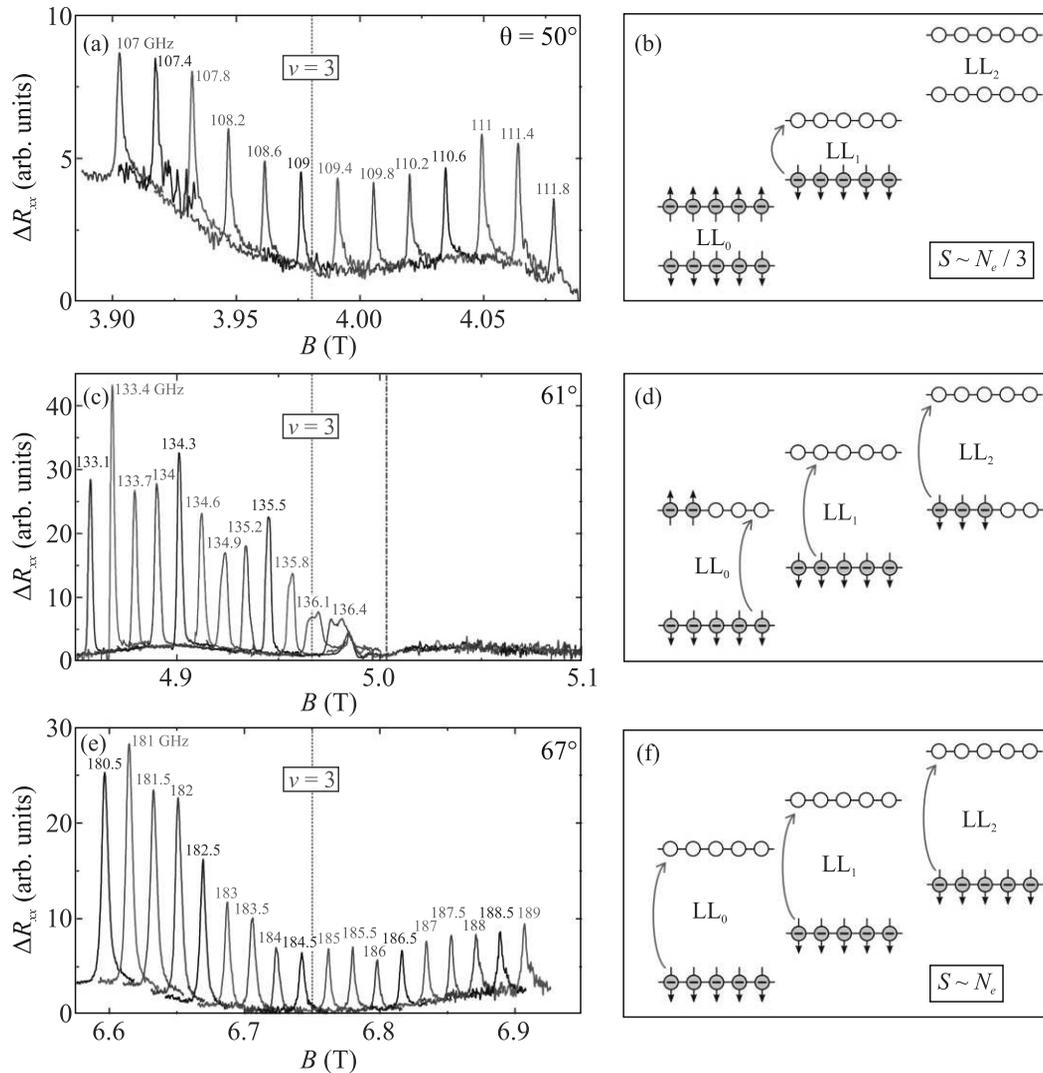


Рис. 2. (Цветной онлайн) Пики электронного спинового резонанса вблизи фактора заполнения $\nu = 3$ квантового эффекта Холла при разных углах $\theta = 50^\circ$, 61° и 67° показаны на панелях (a), (c) и (e), соответственно. По оси абсцисс отложено полное магнитное поле. Пунктирной линией отмечено положение фактора заполнения $\nu = 3$ по магнитному полю. На панели (c), на которой показаны экспериментальные данные для критического угла в 61° , штрих-пунктирная линия задает положение пика в сопротивлении, отвечающего фазовому переходу. Вблизи каждого резонанса указана соответствующая частота возбуждающего электромагнитного излучения. При $\theta = \theta_c$ в области полей, лежащих вблизи и выше пика в сопротивлении, для линий δR_{xx} частоты излучения не указаны, а экспериментальные значения сняты при последовательном увеличении частоты с шагом 0.3 ГГц. На панелях (b), (d) и (f) показано схематичное положение уровней Ландау в упрощенной феноменологической модели, учитывающей многочастичное взаимодействие посредством перенормировки основных зонных параметров электрона – его массы и фактора Ланде, для тех же углов $\theta = 50^\circ$, 61° и 67° , соответственно.

нитных полях. По мере увеличения магнитного поля до критического наблюдалось как уменьшение амплитуды резонанса, так и увеличение его ширины, а также расщепление его на несколько пиков. В области полей, больших B_c , спиновый резонанс полностью исчезал. Такое поведение противоречит простой феноменологической модели, основывающейся

на перенормировке зонных параметров электронной системы, так как в этом диапазоне полей состояние все еще должно быть поляризовано по спину, а значит, спиновый резонанс должен наблюдаться. Примерное положение уровней энергии в рамках такой модели показано на рис. 2d. Более того, это наблюдение не согласуется с результатами, полученными

при изучении комбинационного рассеяния света на спиновых экситонах [33]. Действительно, в этих экспериментах соответствующая линия наблюдалась в широком диапазоне магнитных полей вблизи фазового перехода, а ее амплитуда различалась примерно в три раза по разные стороны от него. Такое различие еще раз подчеркивает разницу в получаемых в рамках этих двух экспериментальных подходов результатов.

По всей видимости, такое поведение спинового резонанса объясняется появлением зародышей новых фаз – доменов с разной спиновой поляризацией – при приближении к фазовому переходу. Наличие таких доменов может приводить к значительному уменьшению времени спиновой релаксации из-за рассеяния на границах зерен, что обуславливает подавление спинового резонанса в таких системах. Как видно из эксперимента, такое подавление наблюдается не только при наличии зародышей ферромагнитной фазы в парамагнитной, что характерно для перехода вблизи $\nu = 2$ и обсуждалось в нашей предыдущей работе [41], но и при наличии ферромагнитных зародышей, имеющих отличную спиновую поляризацию, от поляризации основной фазы. Уширение и расщепление спинового резонанса на несколько пиков при подходе к B_c около $\nu = 3$ аналогично поведению спинового резонанса при ферромагнитном переходе при $\nu = 2$ и, по всей видимости, обуславливается таким же механизмом. Наличие неоднородностей спиновой поляризации конечного размера ξ позволяет не сохранять волновой импульс спинового экситона, возбуждаемого вблизи спинового резонанса, на масштабах \hbar/ξ , при этом из-за наличия квадратичной дисперсии у спиновой волны можно ожидать уширения резонансных пиков и даже разбиения их на несколько.

В заключении, фазовый переход, сопровождающийся изменением спиновой поляризации основного состояния, был изучен при помощи электронного спинового резонанса вблизи нечетного фактора заполнения $\nu = 3$ в ZnO/MgZnO гетеропереходе. Такой переход возникал при увеличении угла наклона магнитного поля θ до некоторого критического значения θ_c . Анализ амплитуды спинового резонанса позволил подтвердить спиновую природу этого явления. При этом интенсивный спиновый резонанс наблюдается как при $\theta < \theta_c$, так и при $\theta > \theta_c$. Удивительным образом, непосредственно в критическом угле θ_c спиновый резонанс детектировался лишь в одной из фаз, лежащей в области меньших магнитных полей. При увеличении магнитного поля вплоть до B_c наблюдалось уменьшение амплитуды резонанса и уши-

рение резонансного пика. В области полей, больших B_c , спиновый резонанс исчезал. Такое поведение резонанса связано с разбиением электронной системы на домены с разной спиновой поляризацией. Работа была выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 20-72-10097 (продление)). Авторы благодарны Дж. Фальсону за предоставленные для исследования гетероструктуры.

Финансирование работы. Работа была выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 20-72-10097 (продление)).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. Y. Kozuka, A. Tsukazaki, D. Maryenko, J. Falson, C. Bell, M. Kim, Y. Hikita, H.Y. Hwang, and M. Kawasaki, Phys. Rev. B **85**, 075302 (2012).
2. D. Maryenko, J. Falson, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, and M. Kawasaki, Phys. Rev. B **90**, 245303 (2014).
3. D. Maryenko, J. Falson, M. S. Bahramy, I. A. Dmitriev, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, and M. Kawasaki, Phys. Rev. Lett. **115**, 197601 (2015).
4. A. B. Van'kov, B. D. Kaysin, V. E. Kirpichev, V. V. Solovyev, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **94**, 155204 (2016).
5. A. B. Van'kov, B. D. Kaysin, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **96**, 235401 (2017).
6. A. B. Van'kov, B. D. Kaysin, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **98**, 121412(R) (2018).
7. A. B. Van'kov, B. D. Kaysin, S. Volosheniuk, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **100**, 041407(R) (2019).
8. S. Dickmann and B. D. Kaysin, Phys. Rev. B **101**, 235317 (2020).
9. A. B. Van'kov and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **102**, 235424 (2020).
10. S. J. Papadakis, E. P. De Poortere, and M. Shayegan, Phys. Rev. B **59**, R12743(R) (1999).
11. J. Falson, D. Maryenko, B. Friess, D. Zhang, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, J. H. Smet, and M. Kawasaki, Nature Phys **11**, 347 (2015).
12. J. Falson, D. Tabrea, D. Zhang, I. Sodemann, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, K. von Klitzing, and J. H. Smet, Sci. Adv. **4**, 8742 (2018).
13. D. Maryenko, A. McCollam, J. Falson, Y. Kozuka, J. Bruin, U. Zeitler, and M. Kawasaki, Nat. Commun. **9**, 4356 (2018).
14. E. P. De Poortere, Y. P. Shkolnikov, E. Tutuc, S. J. Papadakis, M. Shayegan, E. Palm, and T. Murphy, Appl. Phys. Lett. **80**, 1583 (2002).
15. T. Gokmen, M. Padmanabhan, and M. Shayegan, Nat. Phys. **6**, 621 (2010).
16. Y. J. Chung, K. W. Baldwin, K. W. West, D. Kamburov, M. Shayegan, and L. N. Pfeiffer, Phys. Rev. Materials **1**, 021002(R) (2017).

17. A. B. Van'kov, JETP Lett. **117**, 350 (2023).
18. А. С. Кореев, П. С. Бережной, А. Б. Ваньков, И. В. Кукушкин, Письма в ЖЭТФ **119**, 201 (2024).
19. E. Wigner, Phys. Rev. **46**, 1002 (1934).
20. E. C. Stoner, Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences **165**, 372 (1938).
21. L. D. Landau, Sov. Phys. JETP **8**, 70 (1959).
22. J. Falson, I. Sodemann, B. Skinner, D. Tabrea, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, K. von Klitzing, and J. H. Smet, Nat. Mater. **21**, 311 (2022).
23. M. Shayegan, Nat. Rev. Phys. **4**, 212 (2022).
24. N. D. Drummond and R. J. Needs, Phys. Rev. Lett. **102**, 126402 (2009).
25. H. L. Stormer, D. C. Tsui, and A. C. Gossard, Rev. Mod. Phys. **71**, S298 (1999).
26. R. L. Willett, Rep. Prog. Phys. **76**, 076501 (2013).
27. I. V. Kukushkin, V. I. Fal'ko, R. J. Haug, K. von Klitzing, K. Eberl, and K. Toetemayer, Phys. Rev. Lett. **72**, 3594 (1994).
28. J. Zhu, H. Zhao, and W. Hu, Phys. Chem. Chem. Phys. **25**, 18926 (2023).
29. I. L. Kurland, I. L. Aleiner, and B. L. Altshuler, Phys. Rev. B **62**, 14886 (2000).
30. I. S. Burmistrov, Y. Gefen, and M. N. Kiselev, JETP Lett. **92**, 179 (2010).
31. J. P. Eisenstein, H. L. Stormer, L. Pfeiffer, and K. W. West, Phys. Rev. Lett. **62**, 1540 (1989).
32. J. H. Smet, R. A. Deutschmann, W. Wegscheider, G. Abstreiter, and K. von Klitzing, Phys. Rev. Lett. **86**, 2412 (2001).
33. A. B. Van'kov and I. V. Kukushkin, JETP Lett. **113**, 102 (2021).
34. Z. Wang, K. F. Mak, and J. Shan, Phys. Rev. Lett. **120**, 066402 (2018).
35. M. V. Gustafsson, M. Yankowitz, C. Forsythe, D. Rhodes, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Hone, X. Zhu, and C. R. Dean, Nat. Mater. **17**, 411 (2018).
36. J. Li, M. Goryca, N. P. Wilson, A. V. Stier, X. Xu, and S. A. Crooker, Phys. Rev. Lett. **125**, 147602 (2020).
37. F. Xuan and S. Y. Quek, npj Comput. Mater. **7**, 198 (2021).
38. E. P. De Poortere, E. Tutuc, and M. Shayegan, Phys. Rev. Lett. **91**, 216802 (2003).
39. A. B. Van'kov, B. D. Kaysin, and I. V. Kukushkin, JETP Lett. **107**, 106 (2018).
40. O. Stern, N. Freytag, A. Fay, W. Dietsche, J. H. Smet, K. von Klitzing, D. Schuh, and W. Wegscheider, Phys. Rev. B **70**, 075318 (2004).
41. A. V. Shchepetilnikov, A. R. Khisameeva, Y. A. Nefyodov, and I. V. Kukushkin, JETP Lett. **113**, 657 (2021).
42. J. Falson and M. Kawasaki, Rep. Prog. Phys. **81**, 056501 (2018).
43. D. Stein, K. von Klitzing, and G. Weimann, Phys. Rev. Lett. **51**, 130 (1983).
44. A. V. Shchepetilnikov, D. D. Frolov, Yu. A. Nefyodov, I. V. Kukushkin, L. Tiemann, C. Reichl, W. Dietsche, and W. Wegscheider, JETP Lett. **108**, 481 (2018).
45. A. V. Shchepetilnikov, D. D. Frolov, V. V. Solov'ev, Yu. A. Nefyodov, A. Grosser, T. Mikolajick, S. Schmult, and I. V. Kukushkin, Appl. Phys. Lett. **113**, 052102 (2018).
46. S. Dickmann and B. D. Kaysin, Phys. Rev. B **101**, 235317 (2020).
47. S. Dickmann and P. S. Bereznoy, Phys. Rev. B **108**, 115313 (2023).
48. A. R. Khisameeva, A. V. Shchepetilnikov, A. A. Dremin, and I. V. Kukushkin, JETP Lett. **117**, 681 (2023).

Анизотропные обменные взаимодействия в ферромагнетике PbMnVO_4

С. Н. Мартынов¹⁾

Институт физики им. Л. В. Киренского, Федеральный исследовательский центр

“Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 22 марта 2024 г.

После переработки 23 апреля 2024 г.

Принята к публикации 24 апреля 2024 г.

Численной минимизацией энергии основного состояния в приближении классических магнитных моментов рассчитана полевая зависимость намагниченности вдоль трудных направлений для четырех-подрешеточного ферромагнетика PbMnVO_4 . Из сравнения с экспериментальными кривыми намагниченности получены значения параметров анизотропных взаимодействий: констант одноионной анизотропии второго порядка, величины и направления вектора антисимметричного обмена и значения тензора симметричного анизотропного обмена. Направление вектора взаимодействия Дзялошинского–Мория близко к орторомбической оси c . Тензор симметричного обмена имеет почти одноосный вид с направлением легкой оси ортогонально вектору антисимметричного обмена. Рассчитаны изменения энергии каждого анизотропного взаимодействия в процессе переориентации намагниченности.

DOI: 10.31857/S1234567824110119, EDN: ALPQZT

Определение параметров магнитных взаимодействий является приоритетной задачей изучения каждого магнетика. Изоструктурная группа ортороборатов со структурой мультита AMBO_4 (пространственная группа $R\bar{3}m$) отличается большим разнообразием оптических, упругих, электрических, магнитных и мультиферроидных свойств [1–15]. Анизотропия этих свойств в значительной степени определяется цепочечной структурой из связанных ребрами октаэдров MO_6 , ориентированной вдоль орторомбической оси b (рис. 1). Магнитные кристаллы с $M=\text{Cr, Mn, Fe}$ [2–12], а также смешанные и диамагнитно разбавленные соединения [13–15] обладают ярко выраженной магнитной анизотропией, которая обусловлена как одно-, так и двухионными взаимодействиями. Прежде всего анизотропия проявляется в полевой зависимости намагниченности вдоль разных направлений в кристалле. В большинстве реальных магнетиков влияние различных анизотропных взаимодействий приводит к нелинейной полевой зависимости, и для корректного выделения вкладов этих взаимодействий требуется анализ полной зависимости вплоть до намагниченности насыщения. Такой анализ в реально достижимых магнитных полях, может быть проведен только в случае ферромагнитного упорядочения в кристалле, когда насыщение достигается в полях сравнимых

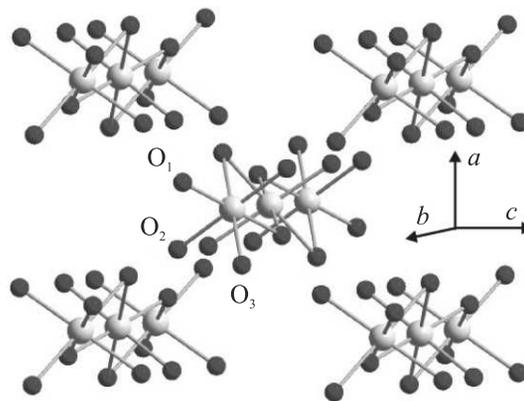


Рис. 1. (Цветной онлайн) Фрагмент кристаллической структуры PbMnVO_4 . Ионы V^{3+} и Pb^{2+} не показаны. Показана ориентация орторомбических осей a , b и c кристалла

с величиной анизотропии. Тогда как в случае антиферромагнитного упорядочения насыщение (спин-флип переход) требует полей, сравнимых с изотропным обменом. Среди ортороборатов PbMnVO_4 является единственным магнетиком с ферромагнитным упорядочением, что определяет его особое значение в исследовании анизотропии магнитных мультитов.

Отсутствие центра инверсии между магнитными ионами Mn^{3+} предполагает возможность существования антисимметричного обмена (взаимодей-

¹⁾e-mail: unonav@iph.krasn.ru

ствия Дзялошинского–Мория (ДМ взаимодействия) [16, 17]

$$H_{DM} = \mathbf{D}_{n,n'}[\mathbf{S}_n \times \mathbf{S}_{n'}]. \quad (1)$$

Направление вектора $\mathbf{D}_{n,n'}$ и его величина в значительной степени определяют магнитную анизотропию [18]. Вектор обмена между ионами Mn^{3+} в цепочках, связанных доминирующим изотропным обменом J_0 ($n = 1, 3, n' = 2, 4$), лежит в зеркальной плоскости симметрии m между взаимодействующими ионами (**ac**) (рис. 2). Учитывая, что обменные

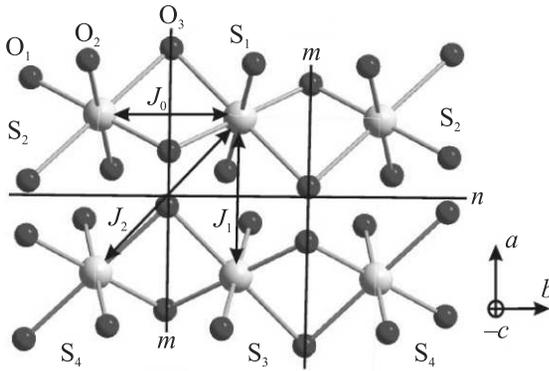


Рис. 2. (Цветной онлайн) Проекция кристаллической структуры PbMnVO_4 на плоскость (ab) . Показаны зеркальные плоскости симметрии m , диагональная плоскость скольжения n и изотропные обменные взаимодействия внутри (J_0) и между (J_1 и J_2) цепочками

взаимодействия между спинами в цепочках как изотропные, так и анизотропные реализуются через два лиганда O_1 и O_3 , не лежащие в одной плоскости с магнитными ионами (рис. 1) (некопланарный двухмостиковый обмен), определить заранее направление векторов $\mathbf{D}_{n,n'}$ нельзя. От соотношения между его компонентами вдоль осей **a** и **c** D_a и D_c зависит фазовая диаграмма основного состояния PbMnVO_4 [19] и полевые зависимости намагниченности.

ДМ взаимодействие, как правило, сопровождается симметричным анизотропным обменом (CAO) [20, 21]. Хотя для 3d-ионов абсолютные величины параметров его гамильтониана

$$H_A = \sum_{\alpha} A_{n,n'}^{\alpha} S_n^{\alpha} S_{n'}^{\alpha} \quad (2)$$

обычно меньше величины $\mathbf{D}_{n,n'}$, они дают вклад в энергию основного состояния уже в первом порядке, что может превышать вклад антисимметричного обмена. Целью настоящей работы является определение направления и величины вектора ДМ и компо-

нент тензора CAO в четырехподрешеточном ферромагнетике PbMnVO_4 из сравнения экспериментальных полевых зависимостей намагниченности вдоль трудных осей намагничивания кристалла с теоретическими кривыми, рассчитанными в приближении классических спинов.

Магнитные моменты ионов Mn^{3+} ($S = 2, L = 2$) обладают значительной одноионной анизотропией (ОА), связанной с сильными искажениями окружающих кислородных октаэдров (статический эффект Яна–Теллера). Анализ влияния этих искажений на параметры одноионной анизотропии второго порядка

$$H_a = DS_{zi}^2 + E(S_{xi}^2 - S_{yi}^2), \quad (3)$$

где x_i, y_i, z_i – локальные оси $\text{Mn-O}_1, \text{Mn-O}_2, \text{Mn-O}_3$ искаженных октаэдров (рис. 2), позволил определить отношение орторомбической и тетрагональной компонент ОА $E/D = 0.183$ [19]. Таким образом, подгонным параметром при сравнении экспериментальных и расчетных кривых остается один одноионный параметр D . Промежуточная относительно орторомбических направлений ориентация локальных осей ОА и ее чередование при трансляции как вдоль, так и поперек магнитных цепочек приводит к четырем кристаллографическим позициям (четырем магнитным подрешеткам с $n, n' = 1 - 4$ (рис. 2)). Это чередование приводит к трем важным результатам – неколлинеарности магнитных моментов подрешеток, фазовому переходу первого рода при завершении переориентации в поле вдоль оси **b** [22, 23] и уменьшению влияния одноионной анизотропии на общую анизотропию ферромагнетика.

В магнитную анизотропию дает вклад и диполь-дипольное взаимодействие. Пространственно анизотропное распределение ближайших магнитных соседей вдоль оси **b** приводит к легкоосной диполь-дипольной анизотропии и перенормировке изотропного обмена [24]

$$H_{dd} = \frac{g^2 \mu_B^2}{b^3} (\mathbf{S}_{i,j} \mathbf{S}_{i+1,j} - 3b^{-2} (\mathbf{S}_{i,j} \mathbf{b})(\mathbf{S}_{i+1,j} \mathbf{b})) = d \cdot \mathbf{S}_{i,j} \mathbf{S}_{i+1,j} - 3d \cdot S_{i,j}^b S_{i+1,j}^b. \quad (4)$$

Для точечных магнитных диполей в цепочках Mn^{3+} с расстоянием между ближайшими ионами $b = 2.97 \text{ \AA}$ получаем $3d = 0.28 \text{ K}$. Взаимодействия со вторыми магнитными соседями и спинами соседних цепочек с ближайшим расстоянием $r = 5.45 \text{ \AA}$ дают практически изотропный вклад и в дальнейшем не учитываются. Анизотропия g -фактора для ионов Mn^{3+} мала [25], что подтверждается данными электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) [26, 27] и одинаковой

величиной намагниченности насыщения $4\mu_B$ вдоль разных направлений в кристалле [5]. В расчетах принималось значение $g = 2$.

Изотропные обмены в PbMnVO_4 определялись в рамках полевой теории Гинзбурга–Ландау с учетом температуры магнитного упорядочения $T_c = 30.3 \text{ K}$ и температуры Кюри–Вейса $\Theta = 49 \text{ K}$ [8]

$$H_{ex} = J_0(\mathbf{S}_1\mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_3\mathbf{S}_4) + \frac{z_1}{2}J_1(\mathbf{S}_1\mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_2\mathbf{S}_4) + \frac{z_2}{2}J_2(\mathbf{S}_1\mathbf{S}_4 + \mathbf{S}_2\mathbf{S}_3), \quad (5)$$

$$J_0 + d = -20.2 \text{ K}, \quad z_1J_1 + z_2J_2 = -8.8 \text{ K}.$$

Распределение изотропных межцепочечных обменов по двум различным путям (рис. 2) влияет на неколлинеарность подрешеток и, следовательно, на параметры анизотропных взаимодействий, описывающие экспериментальные зависимости. В данной работе используются значения обменов $J_1 = 0$, $z_2J_2 = -8.8 \text{ K}$, которые коррелируют с оценками для PbMnVO_4 $|J_1| \ll |J_2|$ в теории функционала плотности [3].

Анизотропные обменные взаимодействия (1), (2) учитываются только между спинами с доминирующим внутрицепочечным обменом. Плоскости скольжения кристалла между цепочками a и n меняют проекции вектора D_a и ориентацию осей тензора САО у соседних цепочек. Инвариантность бесшпурового тензора САО относительно зеркальной плоскости m (ac) требует ортогональности одной из главных осей тензора этой плоскости и нахождения двух других в m . Учитывая вероятную симметричную связь обоих анизотропных обменов [20, 21], одна из осей тензора в плоскости m с компонентой A^D выбрана вдоль вектора $\mathbf{D}_{nn'}$

$$H_A = A^D(S_1^D S_2^D + S_3^{D'} S_4^{D'}) + A^b(S_1^b S_2^b + S_3^b S_4^b) + A^e(S_1^e S_2^e + S_3^{e'} S_4^{e'}), \quad A^D + A^b + A^e = 0. \quad (6)$$

Компонента A^b направлена вдоль оси \mathbf{b} , а ось с A^e ортогональна двум первым.

Расчет основного состояния при $T = 0 \text{ K}$ проводился в приближении классических магнитных моментов минимизацией энергии по углам ориентации моментов подрешеток $S_1 - S_4$ в стандартном пакете Wolfram Mathematica для различных значений параметров $D, D_{12} = D_{34}, \phi_{DM}, A^D, A^b$, с последующим вычислением проекций моментов подрешеток на направление магнитного поля

$$M_{b,c} = \frac{g\mu_B}{4} \sum_{i=1}^4 S_i \cos \Theta_i.$$

Угол направления вектора $\mathbf{D}_{12} \phi_{DM}$ отсчитывается от орторомбической оси \mathbf{a} . В общем случае ориентация моментов 4-х подрешеток требует определения 8 углов в полярной системе координат. Магнитное поле, направленное вдоль осей кристалла \mathbf{b} и \mathbf{c} , лежит в плоскостях симметрии n и m , соответственно. При этом симметрия углов ориентации моментов относительно соответствующих плоскостей сохраняется:

$$\begin{aligned} \mathbf{h} \parallel \mathbf{b}: & \quad \mathbf{S}_1(\Theta_1, \phi_1), \quad \mathbf{S}_2(\Theta_2, \phi_2), \\ & \quad \mathbf{S}_3(\Theta_1, -\phi_1), \quad \mathbf{S}_4(\Theta_2, -\phi_2); \\ \mathbf{h} \parallel \mathbf{c}: & \quad \mathbf{S}_1(\Theta_1, \phi_1), \quad \mathbf{S}_2(\Theta_1, -\phi_1), \\ & \quad \mathbf{S}_3(\Theta_3, \phi_3), \quad \mathbf{S}_4(\Theta_3, -\phi_3), \end{aligned} \quad (7)$$

где полярные углы отсчитываются от направления магнитного поля, а азимутальные – от оси \mathbf{a} . Таким образом, при направлении поля вдоль осей кристалла минимизация проводится по четырем независимым углам. Переориентация суммарного магнитного момента \mathbf{M} от оси \mathbf{a} (фаза А с магнитной симметрией $\text{Pn}m'a'$) заканчивается фазами В ($\text{Pn}'ma'$) и С ($\text{Pn}'m'a$) с углами $\Theta_2 = \Theta_1, \phi_2 = \phi_1 + \pi$ и $\Theta_3 = \Theta_1, \phi_3 = \phi_1 + \pi$, соответственно.

Полевая зависимости проекций намагниченности кристалла PbMnVO_4 в полях, приложенных вдоль орторомбических осей детально исследовалась в широком диапазоне температур $4.2 \text{ K} < T < 77 \text{ K}$ [5]. Для анализа температурного изменения кривых намагниченности и сравнения с кривыми, рассчитанными при $T = 0 \text{ K}$ для полей вдоль трудных направлений \mathbf{b} и \mathbf{c} на рис. 3а и б приведены по три кривые с $T = 4.2, 10, \text{ и } 20 \text{ K}$, взятые из данной работы. Характерной особенностью полевых зависимостей в кристалле является сильная нелинейность в поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$, которая заканчивается скачком намагниченности (при $T = 0 \text{ K}$) в поле H_b – ориентационным фазовым переходом первого рода. Кривая намагниченности в поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ имеет слабую нелинейность и заканчивается переходом второго рода в поле H_c . Такое качественное различие кривых объясняется разной неколлинеарностью проекций легких осей ОА на плоскости (ab) и (ac) кристалла и сильной зависимостью от этой неколлинеарности кривых намагниченности [22]. Неколлинеарность подрешеток $S_1 - S_4$ не превышает 0.2 радиана и переориентация от фазы А с $\mathbf{M} \parallel \mathbf{a}$ к фазам В и С происходит в окрестности плоскостей (ab) и (ac), соответственно. Угол между проекциями легких осей М–О₃ для спинов в цепочках на плоскости (ab) близок к $\pi/2$. В то же время угол между проекциями легких осей для спинов соседних цепочек на плоскость (ac) составляет $\pi/3$. В резуль-

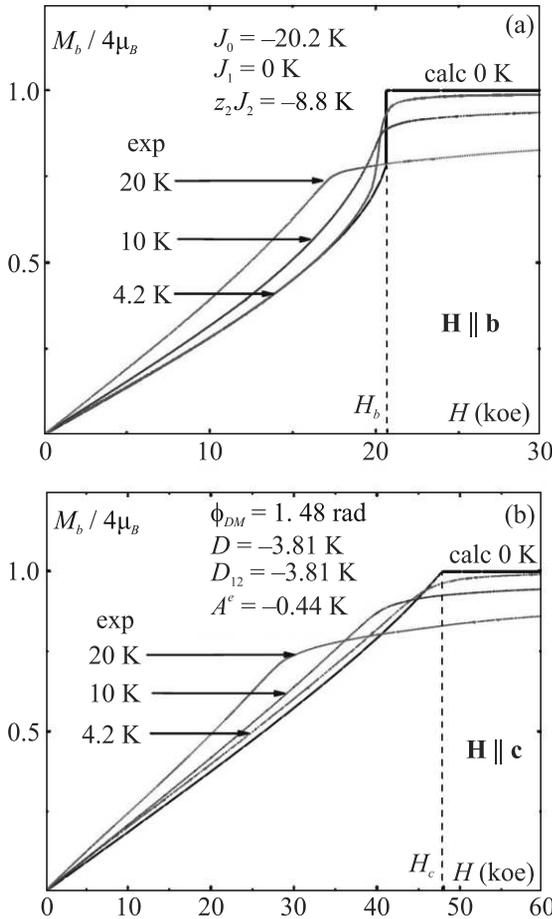


Рис. 3. (Цветной онлайн) Полевые зависимости проекций намагниченности M_b и M_c вдоль трудных направлений в кристалле. Цветные кривые – экспериментальные кривые для разных температур [5], черные – расчетные кривые для $T = 0$ К

тате переориентация \mathbf{M} заканчивается фазовыми переходами первого и второго рода, соответственно.

Практически точное совпадение рассчитанной при $T = 0$ К кривой M_b с экспериментальной кривой намагниченности при $T = 4.2$ К до полей близких к полю перехода первого рода и различие соответствующей зависимости M_c коррелируют с разной температурной зависимостью полей анизотропии, полученной в [5]. При $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$ в низкотемпературной области поле практически не меняется, в то время как при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ зависимость поля анизотропии от температуры при $T \leq 4.2$ К сохраняется. В окрестности перехода первого рода существует гистерезис кривых намагниченности [22]. При конечных температурах состояние с промежуточными значениями углов Θ_n (угловая АВ фаза) и состояние с $\mathbf{M} \parallel \mathbf{b}$ (фаза В) с близкими энергиями смешиваются. Это приводит к увеличению экспериментально наблюдаемой намагниченности при $H < H_b$ и ее уменьшению при $H > H_b$ в окрестности фазового перехода первого рода.

ности при $H < H_b$ и ее уменьшению при $H > H_b$ в окрестности фазового перехода первого рода.

Расчетные кривые соответствуют параметрам анизотропии

$$\begin{aligned} D &= -3.81 \pm 0.03 \text{ K}, & \phi_{DM} &= 1.48 \pm 0.02 \text{ радиана}, \\ D_{12} &= 2.53 \pm 0.05 \text{ K}, & A^D &= 0.21 \pm 0.03 \text{ K}, \\ & & A^b &= 0.23 \pm 0.03 \text{ K}. \end{aligned} \quad (8)$$

Изменения параметров в указанных пределах соответствуют относительному отклонению расчетных кривых на ± 0.03 от приведенных на рис. 3. Отметим почти одноосный вид тензора САО с легкой осью $A^e = -A^D - A^b = -0.44$ К ортогональной вектору \mathbf{D} и близкой к орторомбической оси \mathbf{a} . Ориентация осей анизотропных обменов оказывает сильное влияние на нелинейность кривых намагничивания и поля завершения переориентации. При ориентации $\mathbf{D}_{nn'}$, близкой к орторомбической оси \mathbf{c} , и легкой оси тензора, близкой к оси \mathbf{a} , угол между легкими направлениями намагниченности в плоскости (ac) соседних магнитных цепочек мал, и кривая намагниченности M_c имеет малую нелинейность (рис. 3).

Промежуточные ориентации осей анизотропных взаимодействий относительно кристаллографических осей приводит к эффективному усреднению вкладов от каждой магнитной подрешетки. Поэтому вклад каждого анизотропного взаимодействия E_{ai} при переориентации полного магнитного момента \mathbf{M} определяется изменением его энергии в поле

$$\Delta E_{ai} = E_{ai}(H) - E_{ai}(A),$$

где $E_{ai}(A)$ – энергия в фазе А. На рисунке 4а и б показаны изменения энергии одноионной анизотропии E_a , анизотропных обменов E_{DM} , E_A и диполь-дипольной анизотропии E_{dd} на один ион в полях приложенных вдоль осей \mathbf{b} и \mathbf{c} , соответственно. Изменения энергии анизотропных обменов в поле, приложенном вдоль оси \mathbf{b} , сопоставимы с изменением энергии одноионной анизотропии, а в поле, приложенном вдоль оси \mathbf{c} , суммарное изменение энергии анизотропных обменов даже превышает ее. Таким образом, для корректного описания статических анизотропных свойств мультитов учет двухионных анизотропных взаимодействий является необходимым.

Параметры анизотропных взаимодействий, описывающие эксперимент, зависят от выбора модели и приближений, использованных в расчетах. В рассмотренной модели отсутствуют анизотропные взаимодействия между цепочками и ОА четвертого порядка, влияющая на границы между магнитными

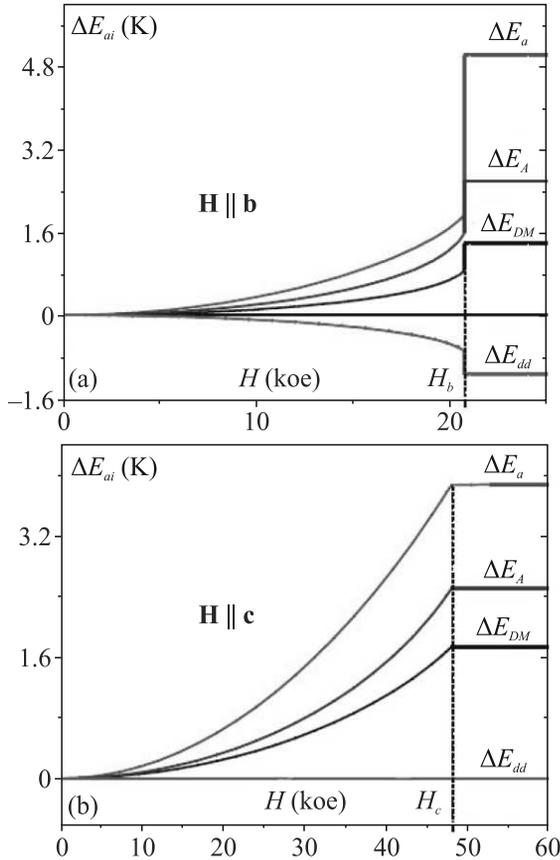


Рис. 4. (Цветной онлайн) Изменение энергии анизотропных взаимодействий (1)–(4) при переориентации намагниченности в поле, приложенном а) вдоль оси **b** и б) вдоль оси **c**

фазами [28], Серьезным допущением, способным заметно изменить величины (8), является выбор схемы изотропного межцепочечного взаимодействия. В теории функционала плотности [3] рассматривались энергии строго коллинеарных магнитных структур и анизотропные взаимодействия не учитывались. Значения энергии межцепочечных обменов, полученные из разностей энергии коллинеарных структур, сравнимы с энергиями неучтенных взаимодействий (рис. 4).

Учет ОА и ДМ взаимодействия в статических и резонансных исследованиях проводился для наиболее детально изученного манганита $LaMnO_3$ со структурой перовскита [27, 29–33]. Были получены близкие значения обеих величин порядка 1 К и отмечена необходимость совместного учета этих взаимодействий для определения как магнитной структуры, так и резонансных свойств – щели АФМР в упорядоченной и ширины линии ЭПР в парамагнитной фазе. Более детальное сравнение с параметрами анизотропии (8) нецелесообразно из-за суще-

ственных структурных различий в этих манганитах. Искажения кислородных октаэдров в $RbMnVO_4$ значительно сильнее [2], что определяет большую величину ОА, а сами октаэдры соединяются не вершинами, а ребрами. Последнее различие определяет главную особенность – двухместиковый некопланарный обмен между ионами Mn^{3+} через ионы кислорода O_1 и O_3 (рис. 1, 2). Если для одностиковых обменов в $LaMnO_3$ направление векторов антисимметричных обменов фиксируется правилом Кеффера

$$\mathbf{D}_{n,n'} \propto [\mathbf{r}_n \times \mathbf{r}_{n'}],$$

где $\mathbf{r}_{n,n'}$ – вектора связей $O - M_{n,n'}$ [18, 27, 34, 35], то при кольцевом некопланарном обмене [36, 37] направление вектора \mathbf{D} не определяется простой суммой от двух независимых обменных путей. В работе [6] был сделан вывод о главной роли внутрицепочечного обмена в основном состоянии через ионы O_3 . В случае такого одностикового обмена направления векторов ДМ взаимодействия в соседних цепочках составляют углы с осью **c** $\Theta_{O_3} \approx \pm 0.52$ радиана, что приводило бы к сильной нелинейности полевой зависимости намагниченности в поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ и фазовому переходу первого рода при H_c . Малая нелинейность $M_c(H)$ указывает на двухместиковый характер внутрицепочечного обмена, когда обмен через ионы O_1 (и, возможно, O_3) реализуется через возбужденные состояния ионов Mn^{3+} [29, 37–41].

Симметричный анизотропный обмен в $LaMnO_3$ в перечисленных работах не учитывался. Влияние обоих типов анизотропных обменов на температурную, угловую и частотную зависимости ширины линии ЭПР исследовалось для квазиодномерных магнетиков с двухместиковым обменом между спинами с $S = 1/2$. При копланарном обмене через два пути вектора антисимметричного обмена ортогональны плоскости взаимодействия [38, 39]. При обмене через симметричные пути, когда суммарное ДМ взаимодействие обращается в ноль, главная компонента тензора САО направлена ортогонально плоскости обменных связей и, так же, как и в $RbMnVO_4$, отрицательна [40–42]. Выбор направления главных осей тензора в плоскости симметрии t является приближением, уменьшающим число параметров анизотропии и, следовательно, упрощающем задачу. В общем случае при некопланарном обмене через различные обменные пути полный антисимметричный обмен может быть суммой неколлинеарных вкладов. Соответствующая сумма тензоров САО даст направления главных осей, не совпадающие с направлением $\mathbf{D}_{n,n'}$. Такой случай рассматривался в цепочечном антиферромагнетике $CuSe_2O_5$ с некопланарными пу-

тями Cu–O–Se–O–Cu обменов [43]. Анализ температурной, частотной и угловой зависимостей ширины линии ЭПР привел к углу между направлением $\mathbf{D}_{n,n'}$ и осью САО, направленной вдоль цепочки, равному $\approx \pi/3$. При этом абсолютные величины параметров анизотропных обменов имели близкие значения $0.05J$ и $0.04J$, где J – доминирующий изотропный обмен в цепочке, соответственно.

Анализ кривых намагниченности вдоль трудных направлений в ферромагнитном кристалле PbMnVO_4 проведен с учетом одноионной анизотропии, антисимметричного и симметричного анизотропных обменов и диполь-дипольного взаимодействия. Полученные величины параметров анизотропных взаимодействий имеют значение для изучения анизотропных и резонансных свойств как данного кристалла, так и других магнетиков со структурой мультита. Они также могут быть полезными для развития теории анизотропных обменов в этих магнетиках. Прежде всего это относится к наиболее активно исследуемого кристалла PbFeVO_4 , поскольку теория ДМ взаимодействия разработана именно для магнетиков с S-ионами [18].

Автор благодарен А. И. Панкрацу, В. И. Зиненко и С. Н. Крыловой за полезные обсуждения работы.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Института физики Сибирского отделения Российской академии наук. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Автор данной работы заявляет, что у него нет конфликта интересов.

1. H. Park and J. Barbier, *Acta Crystallogr. E* **57**, 182 (2001).
2. H. Park, R. Lam, J. E. Greedan and J. Barbier, *Chem. Mater.* **15**, 1703 (2003).
3. H.-J. Koo and M.-H. Whangbo, *Solid State Commun.* **149**, 602 (2009).
4. A. Pankrats, K. Sablina, D. Velikanov, A. Vorotynov, O. Bayukov, A. Eremin, M. Molokeev, S. Popkov, and A. Krasikov, *J. Magn. Magn. Mater.*, **356**, 23 (2014).
5. A. Pankrats, K. Sablina, M. Eremin, A. Balaev, M. Kolkov, and V. Tugarinov, *J. Magn. Magn. Mater.* **414**, 82 (2016).
6. H. Xiang, Y. Tang, S. Shang, and Z. He, *J. Phys: Condens. Matter* **28**, 276003 (2016).
7. M. Curti, M. M. Murshed, T. Bredov, D. W. Bahnemann, T. M. Gesing, and C. B. Mendive, *J. Mater. Sci.* **54**, 13579 (2019).
8. A. Pankrats, M. Kolkov, S. Martynov, S. Popkov, A. Krasikov, A. Balaev, M. Gorev, J. Magn. Magn. Mater. **471**, 416 (2019).
9. J. Head, P. Manuel, F. Orlandi, M. Jeong, M. R. Lees, R. Lee, and C. Greaves, *Chem. Mater* **32**(23), 10184 (2020).
10. M. A. Prosnikov, *Phys. Rev. B* **103**, 094443 (2021).
11. M. A. Prosnikov, M. E. Bai, M. I. Kolkov, A. I. Pankrats, R. V. Pisarev, and P. C. M. Cristianen, *Phys. Rev. Res.* **4**, 013004 (2022).
12. С. Н. Крылова, *Кристаллография*, **68**(5), 799 (2023).
13. M. M. Murshed, A. Rusen, R. X. Fischer, and T. M. Gesing, *Mater. Res. Bull.* **47**, 1323 (2012).
14. A. Pankrats, M. Kolkov, A. Balaev, A. Shabanov, and A. Vasiliev, *J. Magn. Magn. Mater.* **497**, 165997 (2020).
15. А. М. Воротынов, А. И. Панкрац, М. И. Колков, *ЖЭТФ* **160**(5), 670 (2021).
16. I. Dzyaloshinsky, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241 (1958).
17. T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
18. А. С. Москвин, *ЖЭТФ* **159**, 607, (2021).
19. С. Н. Мартынов, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 724 (2022).
20. L. Shekhtman, A. Aharony, and O. Entin-Wohlman, *Phys. Rev. B* **47**(1), 174 (1993).
21. J. Choukroun, J.-I. Richard, and A. Stepanov, *Phys. Rev. Lett.* **87**(12), 127207 (2001).
22. С. Н. Мартынов, *ФТТ* **62**, 1036 (2020).
23. С. Н. Мартынов, *ФТТ* **63**, 1090 (2021).
24. А. Абрагам, Б. Блини, *Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов*, Мир, М. (1972), т. 1, с. 550 [A. Abragam and B. Bleaney, *Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions*, Clarendon Press, Oxford, (1970), v. 1].
25. С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, *Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов переходных групп*, Наука, М. (1972), с. 83.
26. H. J. Gerritsen and E. S. Sabisky, *Phys. Rev.* **132**, 507 (1963).
27. J. Deisenhofer, M. V. Eremin, D. V. Zakharov, V. A. Ivanshin, R. M. Eremina, H.-A. Krug von Nidda, A. A. Muchin, A. M. Balbashov, and A. Loidl, *Phys. Rev. B* **65**, 104440 (2002).
28. S. N. Martynov, *J. Magn. Magn. Mater.* **570**, 170520 (2023).
29. I. Soloviev, N. Hamada, and K. Terakura, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4825 (1996).
30. M. Tovar, G. Alejandro, A. Butera, A. Caneiro, M. T. Causa, F. Prado, and R. D. Sanchez, *Phys. Rev. B.* **60**, 10199 (1999).
31. V. Skumryev, F. Ott, J. M. D. Coey, A. Anane, J.-P. Renard, L. Pinsard-Goudart, and A. Revcolevschi, *Eur. Phys. J. B* **11**, 401 (1999).
32. H. I. Huber, G. Alejandro, A. Caneiro, M. T. Causa, F. Prado, M. Tovar, and S. B. Oseroff, *Phys. Rev. B.* **60**, 12155 (1999).

33. A. Pimenov, M. Biberacher, D. Ivannikov, A. Loidl, V. Yu. Ivanov, A. A. Mukhin, and A. M. Balbashov, *Phys. Rev. B* **62**, 5685 (2000).
34. F. Keffer, *Phys. Rev.* **126**, 896, (1961).
35. А. С. Москвин, *ФТТ* **12**, 3209, (1970).
36. M. V. Eremin and Yu. V. Rakitin, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **15**, L259 (1982).
37. V. K. Voronkova, M. V. Eremin, L. V. Mosina, and Yu. V. Yablokov, *Mol. Phys.* **50**, 379 (1983).
38. D. V. Zakharov, J. Deisenhofer, H.-A. Krug von Nidda, P. Lunkenheimer, J. Hemberger, M. Hoinkis, M. Klemm, M. Sing, R. Klaessen, M. V. Eremin, S. Horn, and A. Loidl, *Phys. Rev. B.* **65**, 134445 (2002).
39. Z. Seidov, T. P. Gavrilova, R. M. Eremina, L. E. Svistov, A. A. Bush, A. Loidl, and H.-A. Krug von Nidda, *Phys. Rev. B.* **95**, 224411 (2017).
40. H.-A. Krug von Nidda, L. E. Svistov, M. V. Eremin, R. M. Eremina, A. Loidl, V. Kataev, A. Validov, A. Prokofiev, and W. Assmus, *Phys. Rev. B.* **65**, 134445 (2002).
41. R. M. Eremina, M. V. Eremin, V. N. Glazkov, H.-A. Krug von Nidda, and A. Loidl, *Phys. Rev. B* **68**, 014417 (2003).
42. S. Tornov, O. Entin-Wohlman, and A. Aharony, *Phys. Rev. B* **60**, 10206 (1999).
43. M. Herak, A. Zorko, D. Arcon, A. Potocnik, M. Klanjek, J. van Tol, A. Ozarovski, and H. Berger, *Phys. Rev. B.* **84**, 184436 (2011).

Свойства криптона при ударно-волновом и квазиизэнтропическом сжатиях в области давлений до 2700 ГПа

М. А. Мочалов^{+∇}, Р. И. Ильяев⁺, С. В. Ерунов^{+∇}, А. О. Бликов^{+∇}, В. А. Огородников^{+∇}, С. Е. Елфимов⁺,
В. А. Аринин⁺, В. А. Комраков⁺, М. И. Лихутов^{+∇1)}, И. П. Максимкин⁺, В. К. Грязнов^{*},
И. Л. Иосилевский^{×°}, П. Р. Левашов^{×°}, Д. Г. Минаков^{×°}, М. А. Парамонов^{×°}

⁺Российский федеральный ядерный центр –
Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики, 607188 Саров, Россия

[∇]Нижегородский государственный технический университет им. Р. Е. Алексеева, 603155 Нижний Новгород, Россия

^{*}Федеральный исследовательский центр химической физики и медицинской химии РАН, 142432 Черноголовка, Россия

[×]Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

[°]Московский физико-технический Институт (Государственный университет), 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 3 апреля 2024 г.

После переработки 26 апреля 2024 г.

Принята к публикации 27 апреля 2024 г.

С применением полусферических генераторов ударных волн на основной адиабате Гюгонио в области давлений $P \approx 140\text{--}255$ ГПа измерены плотность ударно-сжатого жидкого криптона $\rho \approx 9$ г/см³ и температура $T \approx 55000$ К. С использованием устройств сферической геометрии газообразный криптон сжат до плотности $\rho \approx 20$ г/см³ давлением $P \approx 2700$ ГПа при температуре $T \approx 120000$ К. Эксперимент выполнен на рентгенографическом комплексе РГК-Б-Л ВНИИЭФ, состоящем из бетатронов БИМ 234.3000 с граничной энергией 60 МэВ, используемых в мультимпульсном режиме генерации тормозного излучения с многоканальной оптико-электронной системой регистрации рентгеновских изображений. Приведены конструкции экспериментальных устройств, выполнены оценки термодинамических параметров плазмы криптона, достигаемые в использованных устройствах. Выполнен анализ полученных данных и сравнение с данными из других публикаций. Сжатие криптона до плотности $\rho \approx 20$ г/см³ давлением $P \approx 2700$ ГПа является рекордным достижением на данный период времени.

DOI: 10.31857/S1234567824110120, EDN: AVXMAU

1. Введение. Простейшие по своей структуре криогенные жидкости благородных газов аргона, криптона и ксенона являются идеальными для изучения их свойств методом ударного сжатия [1–29]. Высокие начальные плотности жидкостей (например, $\rho_0 = 2.96$ г/см³ в ксеноне при $T_0 = 165$ К) позволяют в физических экспериментах достичь мегабарных давлений. Прозрачность сжиженных газов в видимой области спектра позволяет регистрировать излучение с фронта ударных волн через слой еще несжатого вещества и использовать полученные данные для оценки температуры, которая является дополнительным и часто более чувствительным параметром для проверки различных теорий, чем только давление ударного сжатия. Экспериментальное измерение температуры в ударно-волновых экспериментах важно для построения термодинамически полного уравнения состояния, поскольку дает возможность независимой проверки его парамет-

ров, в частности, поведения теплоемкости при высоких сжатиях. Кроме того, знание температуры существенно для изучения таких явлений, как переходы диэлектрик-металл, плавление, диссоциация и ионизация.

Ранее во ВНИИЭФ исследовались свойства криогенных жидкостей азота, аргона, криптона и ксенона при ударном и квазиизэнтропическом сжатиях до давлений $P \approx 1000$ ГПа [14–28]. Для этих исследований разработаны криогенные экспериментальные устройства плоской, цилиндрической и полусферической геометрии и современные методы диагностики, включающие регистрацию кинематических и термодинамических параметров, коэффициентов отражения и поглощения света и проводимости исследуемых жидкостей. По излучению фронта ударной волны с применением оптической пирометрии измерены температуры в ударно-сжатых сжиженных газах – аргоне, криптоне, ксеноне и азоте – до $T \approx 60000$ К в диапазонах давлений до $P \approx 500$ ГПа. Показано замедление темпа роста температуры в сжиженных

¹⁾e-mail: postmaster@ifv.vniief.ru

благородных газах при увеличении амплитуды ударной волны в области выше (30...40) ГПа, связанное с кинетикой возбуждения электронов в зону проводимости [14–19]. В ходе измерений электропроводности [27, 28] обнаружен эффект резкого роста числа носителей тока – электронов и сопровождающий это явление резкий рост проводимости при давлениях, достигнутых в эксперименте. Полученные данные описаны химической моделью плазмы, учитывающей эффекты кулоновского взаимодействия заряженных частиц, вырождение электронов, изменение вклада связанных состояний при сжатии вещества и короткодействующее отталкивание атомов и ионов на близких расстояниях [29].

Известно [30], что трансформация ударно-волнового сжатия в квазиизэнтропическое заметно снижает термический нагрев образцов и превосходит возможности ударно-волнового эксперимента по величине конечного давления и плотности. Ранее во ВНИИЭФ практическая реализация взрывных устройств цилиндрической геометрии позволила в экспериментах исследовать те области фазовых диаграмм аргона и ксенона, где теоретически предсказываются их структурные переходы или металлизация. Так в [20–22] зарегистрирована высокая сжимаемость жидкого ксенона при давлениях выше $P > 200$ ГПа, которая теоретически обоснована образованием новой более плотноупакованной фазы ксенона при плотностях $\rho > 8$ г/см³. В [22] достигнуто давление сжатия в жидком ксеноне $P \approx 700$ ГПа при плотности $\rho \approx 20$ г/см³. В работах [23–26] экспериментально исследована квазиизэнтропическая сжимаемость жидкого аргона, где достигнуто давление $P \approx 1000$ ГПа при плотности $\rho \approx 9$ г/см³ [26]. Показано, что в жидком аргоне при сжатии до давлений $P \approx 1000$ ГПа аномалии отсутствуют. С использованием совокупности экспериментальных данных по ударно-волновой и квазиизэнтропической сжимаемости, температуре и электропроводности построены эмпирические уравнения состояния, описывающие свойства ксенона и аргона до давлений $P \approx 700$ ГПа и $P \approx 1000$ ГПа соответственно [22–26].

В настоящей работе представлены новые экспериментальные данные, полученные при ударно-волновом нагружении жидкого криптона в диапазоне давлений до $P \approx 250$ ГПа с использованием экспериментальных устройств полусферической геометрии. Эти исследования дополняют информацию о свойствах плазмы криптона и занимают промежуточное положение между данными, полученными ранее во ВНИИЭФ [19] и в Сандийской национальной лаборатории (SNL) [31]. Впервые в области давле-

ний до $P \approx 3000$ ГПа исследовалась квазиизэнтропическая сжимаемость криптона в устройствах сферической геометрии, в которых сжатие осуществляется системой ударных волн, последовательно воздействующих на исследуемое вещество.

Экспериментальные и расчетно-теоретические исследования данной работы имеют не только прикладное, но и важное фундаментальное значение. Это связано, прежде всего, с актуальной проблемой существования и свойств так называемого “плазменного” фазового перехода [32], обусловленного конкуренцией сильного кулоновского притяжения и интенсивного квантового короткодействующего отталкивания, и сопровождающегося в процессе фазового перехода резким скачком степени ионизации плазмы. Гипотетическая возможность реализации такого типа фазовых превращений в плотной и высокотемпературной плазме инертных газов – гелия, аргона и ксенона, наряду с водородом и другими веществами, активно обсуждается как в многочисленных теоретических работах [33–35], так и в специально проводимых с этой целью взрывных экспериментах [36]. Актуальными в связи с этим являются и эксперименты настоящей работы при исследовании плотной плазмы криптона.

2. Измерение сжимаемости и температуры ударно-сжатого жидкого криптона. Техника эксперимента. Исследования сжимаемости, температуры, скорости звука, поглощения и отражения света и электропроводности в ударно-сжатом жидком криптона с использованием плосковолновых нагружающих устройств выполнены ранее во ВНИИЭФ в области давлений до 90 ГПа [19, 28]. В настоящей работе приведены результаты двух новых экспериментов по исследованию термодинамических параметров ударно-сжатого жидкого криптона в области давлений 150–250 ГПа. В этих опытах использованы криогенные устройства полусферического типа, описание которых подробно приведено ранее [14, 16, 17].

Основным элементом полусферических криогенных устройств является измерительный узел, приведенный на рис. 1. Для достижения высоких давлений использовано мощное конденсированное взрывчатое вещество (ВВ) полусферической геометрии, под действием продуктов взрыва которого через воздушный зазор разгонялся стальной ударник, формирующий при столкновении с экраном (1) ударную волну, выходящую затем в жидкий криптон, сжимая и нагревая его. Используемые в настоящей работе устройства отличаются от прежних конструкций только внешним радиусом ВВ.

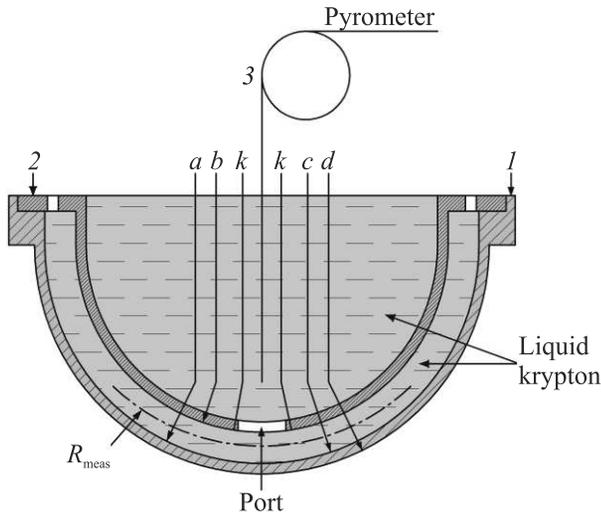


Рис. 1. (Цветной онлайн) Измерительный узел полу-сферического генератора ударных волн (ГУВ): 1 – экран (Al); 2 – основание; 3 – световод; (a), (b) – электроконтактные датчики для измерения скорости ударной волны в жидкости; (c), (d) – электроконтактные датчики для измерения скорости ударной волны в экране (I); k – кварцевое волокно; R_{meas} – радиус измерения скорости ударной волны

Для измерения средней скорости ударной волны (УВ) в экране и жидком криптоне использованы по 12 пар электроконтактов. Дополнительно на основании (2) установлены датчики (k) из кварцевого волокна для измерения скорости УВ в криптоне по излучению с ее фронта. Кроме того, излучение фронта УВ регистрируется пирометром видимого диапазона спектра [37] с использованием высокоскоростного осциллографа через оптическое окно с помощью кварцевого световода, расположенного в объеме жидкости по оси криогенной ячейки. По зарегистрированному излучению измерены спектральные температуры фронта УВ. Обработка экспериментальных данных для устройств полусферической геометрии подробно изложена в работах [14, 16, 17]. Для определения давлений и массовых скоростей в жидком криптоне по измеренному значению скорости в падающей УВ использовался метод отражения [6], в соответствии с которым решалась задача о распаде произвольного разрыва на границе раздела алюминий-криптон. В настоящей работе параметры ударно-сжатого жидкого криптона находились из законов сохранения массы, импульса и энергии на границе распада разрыва, формально соотношенной к радиусу измерения (см. рис. 1) скорости УВ в криптоне R_{meas} . Для этого наряду с измерением скорости УВ в криптоне измерялась скорость УВ в экране экспериментального устройства, значение ко-

торой расчетным способом корректировалось к значению на радиусе R_{meas} . Для оценки состояний алюминия, охлажденного до $T = 120$ К, использовали уравнение состояния [38].

Жидкий криптон заливали в криостат непосредственно перед опытом. Остаточное давление воздуха (после откачки посредством вакуумного насоса) вокруг ячейки с жидким криптоном не превосходило 10 Па. Начальная температура жидкого криптона контролировалась с помощью калиброванного платинового сопротивления и электронного омметра с допускаемой основной погрешностью $\pm 0.16\%$. Контрольное значение температуры жидкого криптона в кювете при атмосферном давлении (среднее из 10 замеров) – $T = 120$ К. Измеренной температуре соответствует плотность жидкого криптона $\rho_0 \approx 2.42$ г/см³, определенная по уравнению состояния [39].

Результаты по ударной сжимаемости жидкого криптона из экспериментов с плоским ГУВ из [19] вместе с данными экспериментов SNL [31] и результатами настоящей работы (см. в табл. 1) приведены на рис. 2. Там же показана линейная аппроксимация всех $D(U)$ -данных:

$$D = 1.7457 + 1.1998U, \quad (1)$$

На вставке (a) рис. 2 показано отклонение $D(U)$ -данных от зависимости (1) в области $U \leq 3$ км/с, на вставке (b) рис. 2 отклонение экспериментальных ΔD -данных от зависимости (1) во всей исследованной области массовых скоростей.

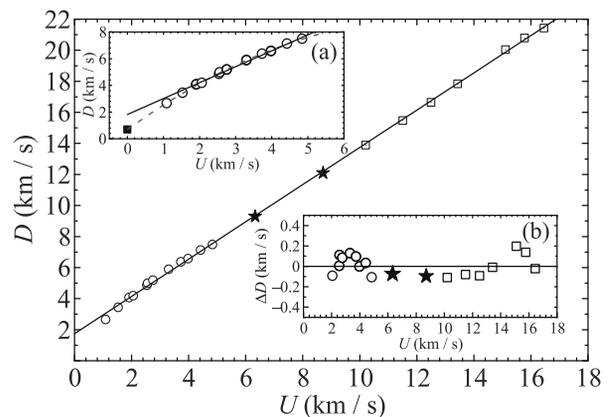


Рис. 2. (Цветной онлайн) Ударная адиабата жидкого криптона в координатах $D(U)$: ★ – настоящая работа; ○ – [19]; □ – [31]; ■ – скорость звука в жидком криптоне на линии насыщения [39]

В таблице 1 также указаны скорректированные параметры состояний в ударно-сжатом алюминии на

Таблица 1. Параметры УВ в элементах полусферических устройств

Экспериментальная скорость УВ волны в экране (Al) на радиусе R_{scr}		Параметры УВ в экране на радиусе R_{meas}			Параметры УВ в жидком криптоне на радиусе R_{meas}				
R_{scr} , мм	D_{exp} , км/с	D , км/с	U , км/с	P , ГПа	R_{meas}	D , км/с	U , км/с	P , ГПа	ρ , г/см ³
33	12.65 ± 0.42	13.03	5.714	203.84	29	9.30 ± 0.17	6.63	142 ± 2	7.58 ± 0.4
21.85	14.16 ± 1.0	15.46	7.66	324.22	17.6	12.1 ± 0.27	8.71	255 ± 3	8.64 ± 0.7

радиусе R_{meas} , из которых рассчитаны изэнтропы его расширения.

Экспериментальные данные по сжимаемости криптона на адиабате Гюгонио в координатах плотность-давление приведены на рис. 3 вместе с зависимостью, рассчитанной по аппроксимации (1).

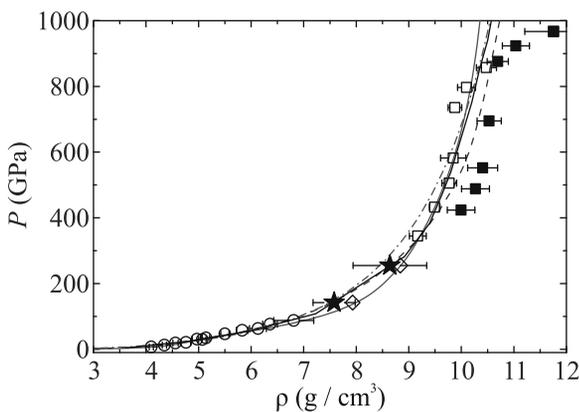


Рис. 3. (Цветной онлайн) Адиабата Гюгонио жидкого криптона. Эксперимент: ★ – настоящая работа; ○ – [19]; □ – на прямой волне [31]; ■ – на отраженной волне [31]. Расчет: красный штрих-пунктир – адиабата Гюгонио, рассчитанная по аппроксимации (1), сплошная черная линия – расчет по методу QMD [31], синий пунктир – SESAME [40], красная линия – модель SANA (настоящая работа), ◇ – расчет по методу QMD (настоящая работа)

В области давлений 20–90 ГПа в экспериментах с ударно-сжатым жидким криптоном [19] измерены яркостные температуры (5-20) кК в красной области спектра ($\lambda = 670$ нм). Там же дополнительно измерены спектральные температуры в фиолетовой ($\lambda = 430$ нм) и зеленой ($\lambda = 500$ нм) областях спектра. В настоящей работе излучение фронта УВ в жидком криптоне с использованием пирометра [37] регистрировалось на пяти длинах волн $\lambda = 406, 450, 498, 550$ и 600 нм, выделяемых интерференционными светофильтрами с полосой пропускания $\Delta\lambda \approx 10$ нм на уровне половины от максимального значения. Предварительно, оптическая ли-

ния калибровалась по источнику эталонного излучения. Для ослабления излучения использовались нейтральные светофильтры, пропускание которых измерено на спектрофотометре. Типичная осциллограмма излучения фронта УВ в жидком криптоне, зарегистрированная, например, в опыте с ГУВ-1, приведена на рис. 4.

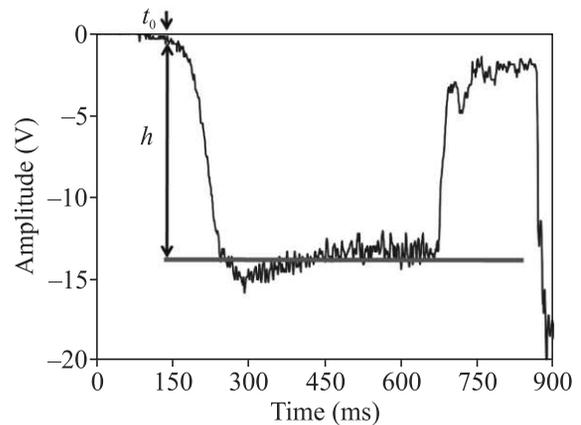


Рис. 4. (Цветной онлайн) Осциллограммы излучения фронта УВ в жидком криптоне ($\lambda = 450$ нм) h – амплитуда излучения, t_0 – начало свечения фронта УВ

Поток теплового излучения для измеренных спектральных температур вычислялся по формуле Планка:

$$N(\lambda, T) = \epsilon C_1 \lambda^5 [\exp(C_2/\lambda T)]^{-1} = C_1 \lambda^5 [\exp(C_2/\lambda T_s)]^{-1}. \quad (2)$$

Здесь ϵ – излучательная способность тела, λ – длина волны, T – истинная температура, T_s – спектральная температура; постоянные $C_1 = 1.19 \cdot 10^{-16}$ Вт · м²/ср и $C_2 = 0.0144$ мК.

Задача нахождения температуры и излучательной способности по спектральным потокам, измеренным в экспериментах, решалась с использованием нелинейного метода наименьших квадратов для модели с двумя параметрами – T и ϵ . Для этого необходимо сделать определенные предположения о характере излучательной способности фронта УВ. В на-

Таблица 2. Температура ударно-сжатого жидкого криптона

λ, нм	ГУВ 1				ГУВ 2			
	T _s , К	T, К	ε	P, ГПа	T _s , К	T, К	ε	P, ГПа
406	26621	37430 ± 4050	0.554 ± 0.086	142	36530	54890 ± 4150	0.555 ± 0.097	255
450	25063				–			
498	24752				35842			
550	29070				38023			
600	22727				30120			

стоящей работе при оценке температуры считалось, что величина излучательной способности в области регистрируемых длин волн $\epsilon = \text{const}$. Значения спектральных температур, измеренные в настоящей работе, и рассчитанные по ним величины термодинамической температуры и излучательной способности в зависимости от давления вместе с данными [19] приведены в табл. 2.

Приведенные данные в зависимости от давления аппроксимированы зависимостью:

$$T(\text{кК}) = 0.581 + 0.3308 \cdot P - 4.646 \cdot 10^{-4} \cdot P^2, \quad (3)$$

где давление P – [ГПа]. Описание измеренных в данной работе спектральных температур функцией Планка приведено на рис. 5.

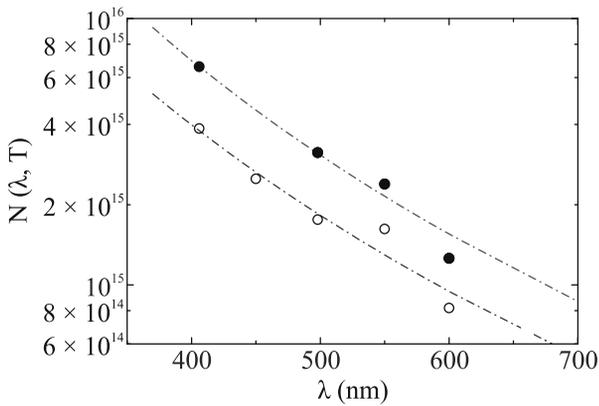


Рис. 5. (Цветной онлайн) Описание спектральных температур в ударно-сжатом жидком криптоне функцией Планка. Настоящая работа: ● – $P \approx 255$ ГПа; ○ – $P \approx 142$ ГПа

Результаты настоящей работы по сжимаемости и температурам ударно-сжатого жидкого криптона дополняют набор экспериментальных данных, представленных ранее в работе [19]. Как следует из рис. 2, настоящие данные, полученные в промежуточной области массовых скоростей, удовлетворительно согласуются с результатами [19] и [31] и могут быть описаны единой аппроксимационной зависимостью (1). Однако в области массовых скоростей до $U \leq 2$ км/с,

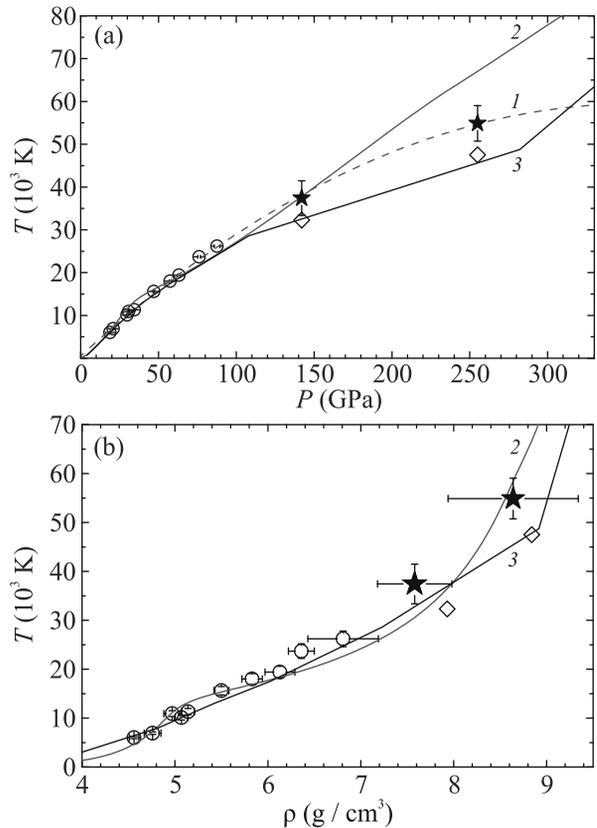


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость температуры ударно-сжатого жидкого криптона от давления (а) и плотности (б). Эксперимент: ★ – настоящая работа; ○ – [19]. Расчет: 1 – аппроксимация данных по формуле (3); 2 – модель SANA (настоящая работа); 3 – QMD [31]; ◇ – QMD (настоящая работа)

с учетом скорости звука в криптоне на линии насыщения ($C_s = 690$ м/с), лучше использовать квадратичную зависимость, как это отмечалось еще в ранней работе [19]. Результаты по температуре ударно-сжатого жидкого криптона из [19] и настоящей работы в области давлений до 300 ГПа, как видно из рис. 6, достаточно хорошо согласуются как с расчетами по методу QMD из [31] и настоящей работы, так и с расчетом по модели SANA (настоящая работа)

та) вместе с совокупностью $P(\rho)$ -данных, представленных на рис. 3.

3. Свойства квазиизэнтропически сжатого криптона. Для исследования квазиизэнтропической сжимаемости криптона разработано сферическое нагружающее устройство, содержащее заряд ВВ массой $m = 18$ кг ТНТ, внутри которого находится камера из стали, рассчитанная на начальное давление до 100 МПа. Особенностью конструкции является комбинированная оболочка внутреннего каскада, состоящая из 2-х слоев – внутреннего из алюминия толщиной 5 мм и наружного – из стали толщиной 1.75 мм. Наличие тонкостенной стальной оболочки во внутреннем каскаде объясняется необходимостью надежного масштабирования снимков быстропротекающего процесса, учитывая “прозрачность” алюминия для жесткого рентгеновского излучения. В то же время наличие алюминия ($Z = 13$) позволяет получить высокий контраст границы металл-газ в сжатом состоянии в эксперименте, учитывая высокое значение массового числа для криптона ($Z = 36$). Ранее, этот принцип контрастирования границы оболочка-газ был использован в экспериментах ВНИИЭФ при исследовании квазиизэнтропической сжимаемости жидкого ксенона в области давлений до $P \approx 720$ ГПа в [20–22]. Геометрия экспериментального устройства приведена на рис. 7. Эксперимент выполнен на рентгенографиче-

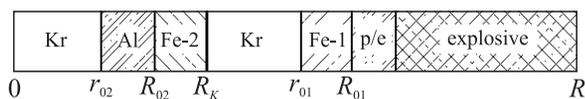


Рис. 7. Геометрия экспериментального устройства. Области: Kr – газообразный криптон; Al – алюминий; Fe-1,2 – сталь; p/e – полиэтилен; explosive – взрывчатое вещество

ском комплексе РГК-Б-Л ВНИИЭФ [41] (см. рис. 8), состоящем из трех бетатронов БИМ 234.3000 с граничной энергией 60 МэВ, два из которых использовались в 3-х импульсном режиме генерации тормозного излучения с многоканальной оптико-электронной системой регистрации рентгеновских изображений. Поле регистрации для этих бетатронов было ограничено отверстием диаметром 55 мм в свинцовых коллиматорах. Центральный бетатрон использован в моноимпульсном режиме с пакетным регистратором изображения, состоящим из 10 плотно сложенных вместе фотохромных АДС-экранов, что позволило получить панорамный снимок с регистрацией всех границ экспериментального устройства.

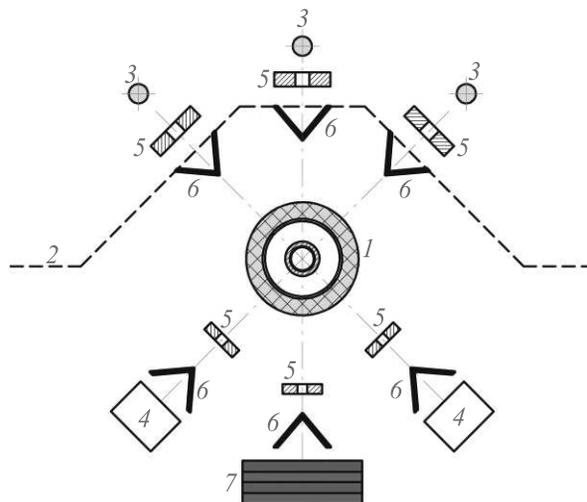


Рис. 8. (Цветной онлайн) Схема эксперимента: 1 – экспериментальное устройство; 2 – защитное сооружение; 3 – источники излучения (бетатроны); 4 – детекторы; 5 – коллиматоры (свинец); 6 – конусы (алюминий); 7 – набор фотохромных экранов

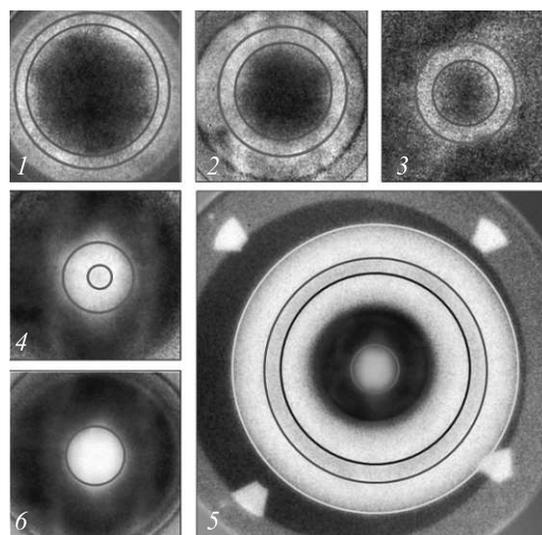


Рис. 9. (Цветной онлайн) Рентгенограммы сжатой полости экспериментального устройства и результаты трассировки границ. Здесь: 1 – $t = 46.43$ мкс; 2 – $t = 46.78$ мкс; 3 – $t = 47.13$ мкс; 4 – $t = 47.54$ мкс; 5 – $t = 47.98$ мкс; 6 – $t = 48.24$ мкс. Трассировка: зеленая линия – внутренняя граница алюминиевой оболочки (ВГО); красная линия – положение ударной волны; желтая линия – наружная граница стальной оболочки (НГО) (Fe-1); коричневая линия – ВГО (Fe-1); черная линия – НГО (Fe-2)

В эксперименте (при начальных параметрах криптона $\rho_0 = 0.139$ г/см³ и $P_0 = 0.004$ ГПа в обоих полостях) получено пять ЭОР-снимков процесса обжатия криптона и один крупномасштабный снимок

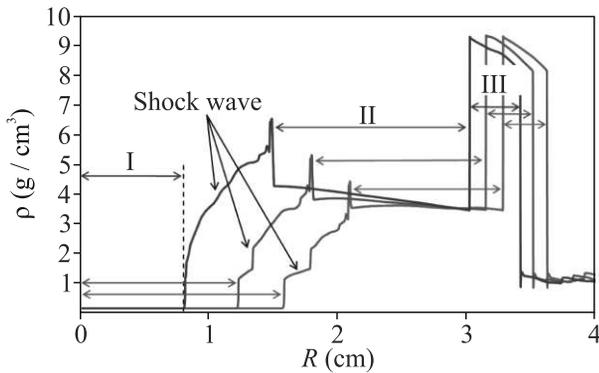


Рис. 10. (Цветной онлайн) Распределения плотности в элементах экспериментального устройства по радиусу в зависимости от времени: зеленая линия – $t = 46.43$ мкс; красная линия – $t = 46.78$ мкс; синяя линия – $t = 47.13$ мкс. Области: I – несжатый газообразный криптон; II – алюминий; III – сталь

процесса на момент времени максимального сжатия ($t_5 = 47.98$ мкс). Оригинальные рентгенограммы, зарегистрированные в эксперименте, показаны на рис. 9 вместе с результатами функционального метода обработки [42], представленными цветными линиями.

Расчет характеристик экспериментального устройства выполнен по одномерной газодинамической программе [43] с использованием УРС материалов, введенных в газодинамический расчетный комплекс РЯФЦ-ВНИИЭФ. В настоящей работе для алюминия использовали УРС [38], а для криптона – УРС SESAME [40].

Спецификой эксперимента является медленное движение ударной волны, что особенно четко проявилось на первых трех рентгенограммах, показанных на рис. 9, где центральная область, ограниченная красной линией, есть не что иное, как область не сжатого газообразного криптона. Это подтверждается и результатами расчетов распределений плотности (см. рис. 10) элементов экспериментального устройства по радиусу полости на времена рентгенографирования. Так на момент третьей фазы рентгенографирования ($t = 47.13$ мкс) несжатая область газообразного криптона составляет $R \approx 1.49$ см. В следующей фазе при $t = 47.54$ мкс несжатая область криптона сокращается до $R \approx 1.17$ см, а уже через $\Delta t \approx 0.44$ мкс в пятой фазе при $t = 47.98$ мкс зафиксировано максимальное сжатие плазмы криптона и последующий разлет (фаза 6) при $t = 48.24$ мкс.

Расчитанное распределение плотности $\rho(R)$ в момент максимального сжатия (пятая фаза сжатия) при $t = 47.98$ мкс показано на рис. 11.

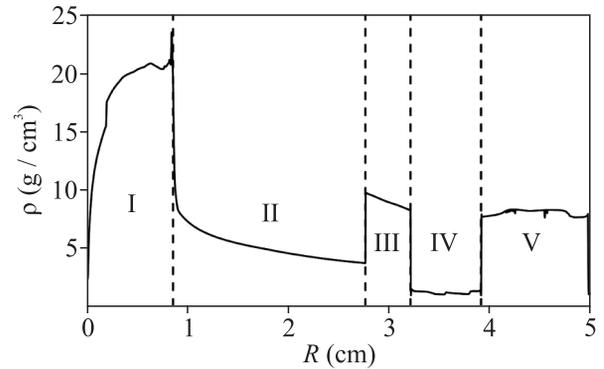


Рис. 11. Распределения плотности в элементах экспериментального устройства по радиусу на момент максимального сжатия ($t = 47.98$ мкс). Область: I – криптон; II – алюминий; III – сталь; IV – криптон; V – сталь (внешняя оболочка)

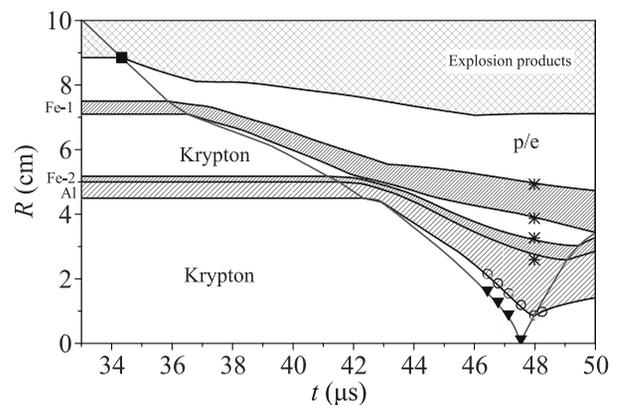


Рис. 12. (Цветной онлайн) Сравнение экспериментальных и рассчитанных $R(t)$ -данных в эксперименте с криптоном. Сплошные черные линии – газодинамический расчет; сплошная красная линия – расчетная траектория первой УВ. Эксперимент: ■ – электроконтактный датчик; * – ВГО и НГО Fe-1,2; ○ – ВГО Al; ▼ – траектория УВ

Использование во внутреннем каскаде оболочки из алюминия, как видно из рентгенограмм 5 и 6 на рис. 9, позволило надежно зарегистрировать полость со сжатой плазмой криптона, включая фазу разлета. Сравнение экспериментальных и рассчитанных $R(t)$ -данных показано на рис. 12. Там же приведена рассчитанная траектория движения первой УВ (красная линия). Из анализа полученных результатов следует – в момент времени $t_{\text{stop}} = 47.98$ мкс зарегистрировано максимальное сжатие плазмы криптона при радиусе остановки Al-оболочки $R_{\text{exp}} = 0.87$ см, отличие которого от рассчитанного $R_{\text{calc}} = 0.85$ см составляет 2.35 %.

Результаты проведенного эксперимента показали, что в момент максимального сжатия плазма крипто-

на сжата до плотности $\rho_{\text{exp}} = 19.24 \text{ г/см}^3$ давлением $P_{\text{calc}} = 2700 \text{ ГПа}$. Отличие экспериментально измеренной плотности сжатого криптона от рассчитанного значения $\rho_{\text{calc}} = 20.62 \text{ г/см}^3$ составляет $\approx 7.2\%$. Рассчитанное значение температуры сжатой плазмы – $T_{\text{calc}} = 118255 \text{ К}$. Кроме момента максимального сжатия, плазма криптона является почти полностью сжатой и в фазе разлета в момент времени $t = 48.24 \text{ мкс}$, что позволяет оценить ее параметры и в этом состоянии. Усредненные по массе термодинамические параметры плазмы криптона в фазе разлета имеют следующие значения: $\rho_{\text{exp}} = 12.67 \text{ г/см}^3$, $P_{\text{calc}} = 970 \text{ ГПа}$ при температуре $T_{\text{calc}} = 93494 \text{ К}$. В этой фазе сжатия экспериментальное значение плотности плазмы криптона на $\approx 6\%$ отличается от рассчитанной величины $\rho_{\text{calc}} = 13.43 \text{ г/см}^3$.

Анализ экспериментальных рентгенограмм, полученных в опыте, показал, что на использованном рентгенографическом комплексе и в статике надежно регистрируется изображение границ алюминиевой оболочки. Поэтому был проведен дополнительный опыт по исследованию сжимаемости криптона с другим начальным давлением ($\rho_0 = 0.209 \text{ г/см}^3$, $P_0 = 0.005 \text{ ГПа}$) в конструкции, приведенной на рис. 7, исключив из нее стальную оболочку, что упростило изготовление внутреннего каскада. Оригинальная рентгенограмма сферического устройства, зарегистрированная в этом эксперименте в момент максимального сжатия (см. рис. 13), демонстрирует высокую степень симметричности сжатых полостей.

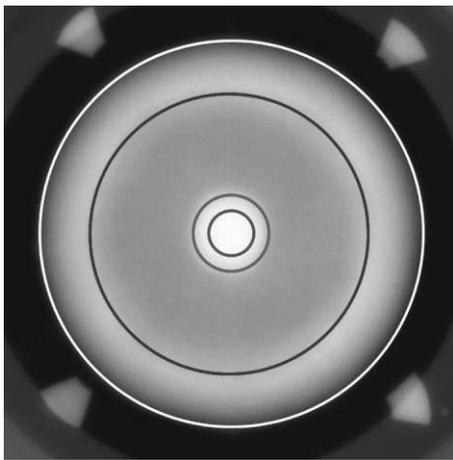


Рис. 13. (Цветной онлайн) Рентгенограмма сжатой полости с криптоном при максимальном сжатии в опыте # 2: белая и синяя линии – НГО и ВГО наружной стальной оболочки соответственно; зеленая и красная линии – НГО и ВГО алюминиевой оболочки

В результате проведенного дополнительного эксперимента плазма криптона в момент максималь-

ного сжатия была сжата до плотности $\rho_{\text{exp}} = 16.5 \text{ г/см}^3$ давлением $P_{\text{calc}} = 1780 \text{ ГПа}$ при температуре $T = 95100 \text{ К}$. Отличие экспериментально измеренной плотности сжатого криптона от рассчитанного значения $\rho_{\text{calc}} = 17.68 \text{ г/см}^3$ составляет $\approx 7.2\%$. Результаты настоящей работы в $P(\rho)$ плоскости показаны на рис. 14.

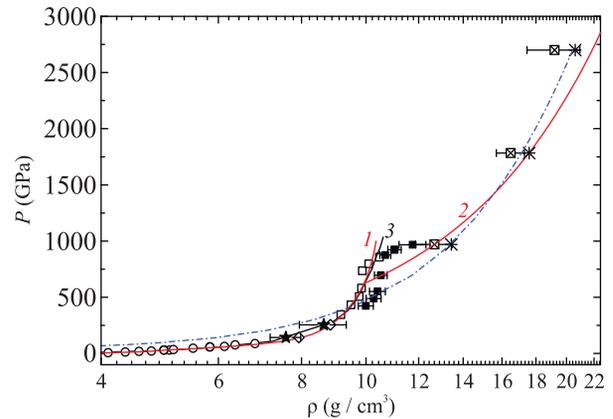


Рис. 14. (Цветной онлайн) Зависимость давления от плотности динамически сжатой плазмы криптона. Эксперимент: ударное сжатие: \star – настоящая работа; \circ – [19]; \square – на прямой волне [31]; \blacksquare – на отраженной волне [31]; квазиизэнтропическое сжатие: \boxtimes – настоящая работа. Расчет: синий штрих-пунктир – изоэнтропа из точки $\rho_{\text{calc}} = 20.62 \text{ г/см}^3$ и $P_{\text{calc}} = 2700 \text{ ГПа}$; линия 1 – адиабата Гюгонно жидкого криптона по модели SAHA (см. текст); линия 2 – изоэнтропа по модели SAHA из нижней экспериментальной точки ($\rho_{\text{exp}} = 12.67 \text{ г/см}^3$ и $P_{\text{calc}} = 970 \text{ ГПа}$); линия 3 – адиабата Гюгонно жидкого криптона – расчет в рамках QMD [31]; \diamond – расчет по методу QMD (настоящая работа); \ast – одномерный расчет (настоящая работа)

Расчеты параметров ударного и квазиизэнтропического сжатия в рамках химической модели плазмы. Для анализа результатов экспериментов, описанных выше, в настоящей работе были проведены расчеты ударного и изэнтропического сжатия плазмы криптона с использованием уравнения состояния неидеальной плазмы по теоретической модели, развитой ранее для описания термодинамики сильно-неидеальной плазмы [44–47]. Для этой цели был модифицирован вариант модели SAHA, хорошо зарекомендовавший себя при описании результатов экспериментов по динамическому сжатию плазмы дейтерия и гелия до давлений $\approx 20 \text{ ТПа}$ [36, 48, 49]. Достоинством этой модели применительно к расчетам высокотемпературной плотной плазмы является то, что в рамках этого подхода (химическая модель плазмы) реализуется расчет равновесного ионизационного состава и термодинамических

функций плазмы, а также ряд важных безразмерных параметров, характеризующих уровень межчастичных корреляций в плазме, таких как параметр кулоновской неидеальности, параметр вырождения электронной компоненты и др. В методике модели SANA плазма описывается как многокомпонентная сильнокоррелированная (неидеальная) смесь атомов, ионов различной кратности и электронов. Последние могут быть частично вырожденными. При решении системы уравнений ионизационного равновесия, описывающих многократную ионизацию газа, учитывается влияние различных “эффектов неидеальности”, включающих как эффект кулоновского взаимодействия ионов и электронов, так и эффект интенсивного короткодействующего отталкивания атомов и ионов (эффект “собственного объема”). Также учитывается сдвиг ионизационного равновесия вследствие частичного вырождения электронов. Помимо этого, настоящая методика включает дополнительную процедуру расчета параметров возможных так называемых “диссоциативно-плазменных” фазовых расслоений в системе, сопровождающихся резким скачкообразным изменением равновесного состава [36, 44, 48, 49].

Особенность расчета термодинамики плазмы криптона в настоящей работе заключалась в том, что для учета эффекта интенсивного короткодействующего отталкивания (эффекта “собственного объема”) использовалась модифицированная модель “мягких сфер” [16, 29, 50]. При этом, для определения соотношения радиусов атома и ионов, а также показателя “жесткости” их отталкивания, применялись результаты расчета электронных структур атома и ионов криптона методом Хартри-Фока в приближении “ограниченного” атома [29, 46, 47]. Ключевые параметры – радиус и степень отталкивания атомов в рамках этого приближения выбирались (“калибровались”) из наилучшего описания холодных кривых криптона. Размер атомов и ионов определялся из равенства

$$\Delta E_i / I_i = \text{const}, \quad (4)$$

где ΔE_i – относительный сдвиг энергии основного состояния атома (или иона) при сжатии сферической атомной ячейки, отнесенный к энергии основного состояния свободного атома (или иона), I_i – энергия ионизации данного атома (или иона).

При этом, если ранее при расчете термодинамических свойств всех инертных газов по модели SANA показатели степенного отталкивания для всех атомов и ионов принимались равными [29, 46], то в настоящей работе методика была модифицирована, так

что теперь не только “собственные размеры” частиц каждого сорта, но и показатели степени их отталкивания (“мягкость”) для атома и всех ионов определялись из расчетов Хартри-Фока. Результаты расчета радиусов и показателей степени отталкивания для атома и ионов криптона представлены на рис. 15.

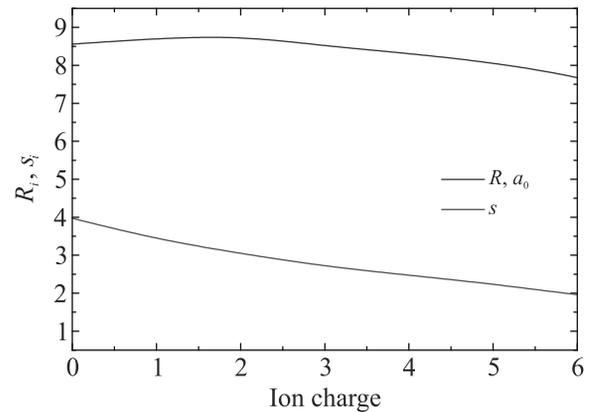


Рис. 15. (Цветной онлайн) Зависимость радиуса (R_i) и степени отталкивания (s_i) в модели мягких сфер для атома (0) и ионов (i) криптона

Расчет по модели SANA в настоящей работе был проведен в двух режимах: в режиме ударного сжатия (до $P \leq 1$ ТПа), и дополнительно в режиме изоэнтропического сжатия в диапазоне $P = 10-30$ ТПа. Результаты этих расчетов в сравнении с экспериментальными данными в координатах давление – плотность приведены на рис. 14. На рисунке 16 приведены ре-

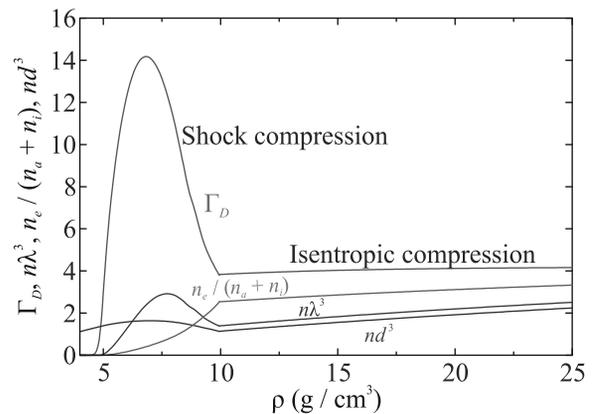


Рис. 16. (Цветной онлайн) Безразмерные параметры, характеризующие состояние неидеальной плазмы криптона на двух участках его динамического сжатия: – ударного ($\rho \leq 10$ г/см³) и квазиизэнтропического сжатия ($\rho \geq 10$ г/см³)

зультаты расчета безразмерных параметров, характеризующих состояние неидеальной плазмы криптона на двух участках его динамического сжатия:

а) ударного сжатия ($\rho < 10 \text{ г/см}^3$); б) квазиизэнтропического сжатия ($\rho > 10 \text{ г/см}^3$):

Γ_D – параметр кулоновской неидеальности ($\Gamma_D \equiv e^2/kT * R_D$);

α – степень ионизации плазмы ($\alpha \equiv n_e/(n_e + \sum n_i)$);

ξ – параметр вырождения свободных электронов ($\xi \equiv n_e \lambda_e^3$);

ζ – плотностной параметр “упаковки” ($\zeta \equiv \sum n_i \sigma_i^3$).

Следует подчеркнуть, что, в отличие от расчетов по модели SAHA, проведенных ранее для плазмы дейтерия и гелия [48, 49], настоящие расчеты для плазмы криптона не предсказывают (см. рис. 14) наличия какого-либо плазменного фазового перехода со скачком ионизации подобно давно обсуждаемому двухстадийному плазменному фазовому переходу в гелии [47] (см. также [36]) или гипотетическому фазовому переходу, предсказанному в плотной неидеальной плазме аргона [51].

Расчеты параметров динамического сжатия плазмы криптона в рамках квантовой молекулярной динамики. Помимо химической модели плазмы, в настоящей работе были проведены расчеты параметров динамического сжатия плазмы криптона посредством “первопринципного” метода квантовой молекулярной динамики (QMD). Методика этого подхода и расчетов в настоящей работе является развитием и продолжением методики, реализованной в работах [36, 48, 49]. Метод QMD не использует (подобно квазихимической методике SAHA) для расчетов никакой феноменологической информации об изучаемом веществе, такой как потенциалы ионизации, спектры энергий возбуждений связанных комплексов, теплоты реакций и т.д. Термодинамика квантовых электронов в QMD описывается с помощью метода функционала плотности (DFT). Результатом такого расчета является неоднородное пространственное распределение электронов при заданных положениях ионов. Динамика и термодинамика последних численно моделируется в рамках метода классической молекулярной динамики (MD). Обе указанные процедуры в настоящих QMD-расчетах реализованы с использованием известного пакета VASP с обменно-корреляционным функционалом в обобщенно-градиентном приближении GGA с параметризацией PBE (см. [36, 48, 49]). В данной работе использовалось 256 атомов криптона, учитывалось 8 валентных электронов, обменно-корреляционный функционал был выбран в приближении PBE. Все расчеты проводились в каноническом ансамбле, где температура ионов T_i контроли-

ровалась с помощью термостата Нозе–Гувера. Равновесные термодинамические характеристики вычислялись на равновесном участке моделирования. Это определяло статистическую погрешность моделирования. Непосредственными термодинамическими величинами, получаемыми в методе QMD в результате описанной выше процедуры “атомистического” моделирования, являются две главные сумматорные величины – давление $P(T, \rho)$ и внутренняя энергия $U(T, \rho)$, как функции плотности и температуры. Результаты этих расчетов представлены в $P(\rho)$ -координатах на рис. 14 и в табл. 3 ниже. Расчеты параметров динамического сжатия в рамках QMD, проведенные в настоящей работе, предсказывают для двух точек на ударной адиабате с теми же начальными параметрами, что и в настоящем эксперименте, следующие значения плотности ρ и температуры T :

- для точки с давлением 142 ГПа: $P = 142 \text{ ГПа}$, $\rho_{QMD} = 7.93 \text{ г/см}^3$ ($\rho_{\text{exp}} = 7.58 \pm 0.4 \text{ г/см}^3$), $T_{QMD} = 32.3 \text{ кК}$;

- для точки с давлением 255 ГПа: $P = 255 \text{ ГПа}$, $\rho_{QMD} = 8.84 \text{ г/см}^3$ ($\rho_{\text{exp}} = 8.64 \pm 0.7 \text{ г/см}^3$), $T_{QMD} = 47.5 \text{ кК}$.

Для двух же экспериментальных точек, полученных в рамках квазиизэнтропического сжатия, в рамках как QMD, так и по модели SAHA, были реализованы два варианта расчета теоретических величин: а) – температуры, соответствующей согласно теории QMD и SAHA, паре величин – экспериментальной плотности ρ_{exp} и расчетному давлению P_{calc} (УРС SESAME [40]), б) – давлению, соответствующему, согласно теории QMD и SAHA, паре величин – экспериментальной плотности ρ_{exp} и расчетной температуре T_{calc} (УРС SESAME [40]). Результаты такого сопоставления теории и эксперимента представлены в табл. 4.

Резюмируя сравнение расчетных данных, полученных по модели SAHA и в рамках теории QMD, можно заключить, что обе расчетные методики дают результаты, находящиеся в удовлетворительном согласии с экспериментальными данными, соответствующими ударному сжатию криптона (адиабате Гюгонно) до давлений $P \leq 1 \text{ ТПа}$. В то же время обе расчетные методики (SAHA и QMD) предсказывают заметное расхождение экспериментальных и расчетных данных для эксперимента с квазиизэнтропическим сжатием до давления $P_{\text{calc}} \approx 970 \text{ ГПа}$ и плотности $\rho_{\text{exp}} \approx 12.7 \text{ г/см}^3$, и значительное расхождение для эксперимента с максимальным квазиизэнтропическим сжатием до давления $P_{\text{calc}} \approx 2700 \text{ ГПа}$ и плотности $\rho_{\text{exp}} \approx 20 \text{ г/см}^3$.

Таблица 3. Расчеты параметров динамического сжатия в рамках квантовой молекулярной динамики (QMD) и модели SAHA. (*) – расчет ρ_{calc} , P_{calc} и T_{calc} с использованием UPC SESAME

	SESAME			EOS SAHA		EOS QMD	
	ρ_{exp} , г/см ³	$P_{\text{calc}}(*)$, ГПа	$T_{\text{calc}}(*)$, К	$T_{\text{SAHA}}(\rho_{\text{exp}}, T_{\text{calc}})$, кК	$P_{\text{SAHA}}(\rho_{\text{exp}}, T_{\text{calc}})$, ГПа	$T_{\text{QMD}}(\rho_{\text{exp}}, P_{\text{calc}})$, кК	$P_{\text{QMD}}(\rho_{\text{exp}}, T_{\text{calc}})$, ГПа
1	12.67	970	93494	156.7	604	122	780
1(*)	13.43	970	93494			115	
2	16.5	1783	95100	197.6			
2(*)	17.68	1783	95100				
3	19.24	2700	118255	242.5	1471	180	2080
3(*)	20.62	2700	118255			140	

Поскольку плотность плазмы криптона непосредственно измеряется в эксперименте, в то время как давление вычисляется, можно предположить, что отмеченное выше расхождение объясняется не ошибкой эксперимента в измерении плотности плазмы, а скорее нарастающим различием по мере роста плотности (напомним, сильнонеидеальной, двух-трехкратно ионизованной и заметно вырожденной плазмы, см. рис. 16) методики расчета ВНИИЭФ с УРС криптона [40] с методиками расчета УРС SAHA и QMD.

Одной из возможных причин такого расхождения может быть неадекватность УРС криптона [40], использованного в расчетах ВНИИЭФ, который, как видно из рис. 3 (синий пунктир), предсказывает более высокую сжимаемость в области плотностей $\rho_{\text{exp}} \geq 9 \text{ г/см}^3$, чем это следует из новых данных [31]. Возможно, следует также провести сравнительный полный расчет динамики сжатия для экспериментального устройства еще и с помощью УРС SAHA.

Заключение. Мы провели новые эксперименты по исследованию сжимаемости и температуры ударно-сжатого жидкого криптона, которые дополняют набор экспериментальных данных, представленных ранее в работах ВНИИЭФ [19] и SNL [31]. Новые $D(U)$ -данные удовлетворительно согласуются с результатами [19] и [31] и вся совокупность результатов может быть описана единой аппроксимационной зависимостью.

Расчеты давления и температуры ударно-сжатого жидкого криптона в рамках модифицированной химической модели плазмы с использованием универсального кода SAHA в области давлений до 100 ГПа показывают удовлетворительное согласие с экспериментальными данными. Результаты по температуре ударно-сжатого жидкого криптона из ранней работы ВНИИЭФ [19] и настоящей работы в области давлений до 300 ГПа хорошо согласуются с расчетом SNL из [31].

Эксперименты настоящей работы по квазиизэнтропическому сжатию криптона показали, что практически сразу после фокусировки ударной волны в центре оболочки через короткий промежуток времени реализуется максимальное сжатие и последующий разлет. По-существу, сжатие в использованном устройстве мало чем отличается от плоско-волновых экспериментов SNL по двукратной сжимаемости жидкого криптона, что и демонстрирует факт согласия данных настоящей работы при давлении $P \approx 970 \text{ ГПа}$ с результатами SNL.

Новые данные по квазиизэнтропической сжимаемости криптона расширили область исследования его свойств до давлений $P \approx 2700 \text{ ГПа}$, что на данный момент времени является достижением мирового уровня.

Сравнение результатов расчета, проведенного в рамках двух теоретических подходов, показывает высокую степень неопределенности нашего знания температуры квазиизэнтропически сжатого криптона, в очередной раз подчеркивая острую необходимость дополнения существующей методики регистрации сжимаемости плазмы независимыми измерениями ее температуры.

Авторы выражают благодарность сотрудникам, принимавшим участие в организации, проведении экспериментов и обработке полученных данных: С. Е. Елфимову, Е. В. Кулакову, А. С. Пупкову, Д. П. Турутину, А. И. Гуркину, М. В. Логинову, Д. А. Линяеву, Г. С. Яндубаеву.

Финансирование работы. Настоящая работа выполнена в рамках научной программы Национального центра физики и математики по Государственному контракту #Н.4ц.241.4Д.23.1085 и при финансовой поддержке Минобрнауки России по созданию молодежных лабораторий (научная тема #FSWE-2024-0004 “Газодинамика и физика взрыва”).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. M. van Thiel and B. Alder, *J. Chem. Phys.* **44**, 1056 (1966).
2. R. N. Keeler, M. van Thiel, and B. J. Alder, *Physica* **31**, 1437 (1965).
3. M. Ross, W. Nellis, and A. Mitchell, *J. Chem. Phys.* **68**, 532 (1979).
4. W. J. Nellis, M. van Thiel, and A. C. Mitchell, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 816 (1982).
5. M. Ross, *Phys. Rev. A* **8**, 1466 (1973).
6. W. Seitz and W. Wackerle, *Bull. Amer. Phys. Soc.* **17**, 1093 (1972).
7. R. D. Dick, R. H. Warnes, and J. Skalyo, *J. Chem. Phys.* **53**(5), 1648 (1970).
8. P. L. Lagus and T. J. Ahrens, *J. Chem. Phys.* **59**(7), 3517 (1973).
9. В. Н. Зубарев, Г. С. Телегин, *ДАН СССР* **142**(2), 309 (1962).
10. W. Nellis and A. Mitchell, *J. Chem. Phys.* **73**, 6137 (1980).
11. R. D. Dick, *J. Chem. Phys.* **52**, 6021 (1970).
12. H. B. Radousky, W. J. Nellis, M. Ross, D. C. Hamilton, and A. C. Mitchell, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2419 (1986).
13. W. J. Nellis, H. B. Radousky, D. C. Hamilton, A. C. Mitchell, and N. C. Holmes, *J. Chem. Phys.* **93**(3), 2244 (1991).
14. М. А. Мочалов, М. В. Жерноклетов, Р. И. Илькаев, А. Л. Михайлов, В. Е. Фортов, *ЖЭТФ* **137**(1), 77 (2010).
15. Ф. В. Григорьев, С. Б. Кормер, О. Л. Михайлова, М. А. Мочалов, В. Д. Урлин, *ЖЭТФ* **88**, 1271 (1985).
16. В. К. Грязнов, М. В. Жерноклетов, И. Л. Иосилевский, А. Н. Шуйкин, А. Л. Михайлов, Р. И. Илькаев, А. Е. Ковалев, М. А. Мочалов, С. И. Киришанов, С. И. Григорьев, А. Б. Межевов, М. Г. Новиков, *Свойства жидкого аргона при ударном сжатии в области давлений 130-530 ГПа. Сборник докладов: VII Харитоновские тематические научные чтения*, под ред. д-ра технических наук А. Л. Михайлова, РФЯЦ-ВНИИЭФ, Саров (2005), с. 326.
17. M. V. Zernokletov, R. I. Il'kaev, S. I. Kirshanov, T. S. Lebedeva, A. L. Mikhaylov, M. A. Mochalov, A. N. Shuikin, and V. E. Fortov, *Experimental measurement of compressibility and temperature in shock-compressed liquid xenon in pressure range up to 350 GPa. Shock Compression of Condensed Matter-2003*, ed. by M. D. Furnish, M. D. Gupta, and J. W. Forbes, AIP, Oregon (USA) (2004), p. 129.
18. V. E. Fortov, V. K. Gryaznov, V. B. Mintsev, V. Ya. Ternovoi, I. L. Iosilevski, M. V. Zhernokletov, and M. A. Mochalov, *Contribution to Plasma Physics* **41**(2-3), 215 (2001).
19. В. Д. Глуходедов, С. И. Киришанов, Т. С. Лебедева, М. А. Мочалов, *ЖЭТФ* **116**(2(8)), 551 (1999).
20. В. Д. Урлин, М. А. Мочалов, О. Л. Михайлова, *Математическое моделирование* **3**, 42 (1991).
21. V. D. Urlin, M. A. Mochalov, O. L. Mikhailova, *High Pressure Research* **8**, 595 (1992).
22. В. Д. Урлин, М. А. Мочалов, О. Л. Михайлова, *ТВТ* **38**(2), 227 (2000).
23. И. А. Адамская, Ф. В. Григорьев, О. Л. Михайлова, М. А. Мочалов, А. И. Соколова, В. Д. Урлин, *ЖЭТФ* **93**(2(8)), 647 (1987).
24. О. Л. Михайлова, М. А. Мочалов, В. Д. Урлин, *Математическое моделирование* **4**(12), 162 (1992).
25. В. Д. Урлин, М. А. Мочалов, О. Л. Михайлова, *ЖЭТФ* **111**(6), 2099 (1997).
26. В. А. Аринин, О. Л. Михайлова, М. А. Мочалов, В. Д. Урлин, *Письма в ЖЭТФ* **87**(4), 240 (2008).
27. Л. А. Гатилов, В. Д. Глуходедов, Ф. В. Григорьев, С. Б. Кормер, Л. В. Кулешова, М. А. Мочалов, *ПМТФ* **1**, 99 (1985).
28. V. D. Glukhodedov, S. I. Kirshanov, T. S. Lebedeva, and M. A. Mochalov, *Electric conductivity of liquid argon, krypton and xenon under shock compression up to pressure of 90 GPa. Shock Compression of Condensed Matter - 1999*, ed. by M. D. Furnish, L. C. Chhabildas, and R. S. Hixson, AIP, Utah (USA) (2000), p. 983.
29. В. Е. Фортов, В. Я. Терновой, М. В. Жерноклетов, М. А. Мочалов, А. Л. Михайлов, А. С. Филимонов, А. А. Пяллинг, В. Б. Минцев, В. К. Грязнов, И. Л. Иоселевский, *ЖЭТФ* **124**, 288 (2003).
30. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, *Физика ударных волн и высокотемпературных газодинамических явлений*, 3-е изд., испр., Физматлит, М. (2008), 652 с.
31. T. R. Mattsson, S. Root, Ann Mattsson, L. Schulenburger, R. J. Magyar, and D. G. Flicker, *Phys. Rev.* **90**, 184105 (2014).
32. Г. Э. Норман, А. Н. Старостин, *ТВТ* **8**, 413 (1970).
33. В. Эбелинг, А. Фёрстер, В. Фортов, В. Грязнов, А. Полищук, *Теплофизические свойства горячей плотной плазмы*, НИЦ "Регулярная и хаотическая динамика", Ижевск (2007), 405 с.
34. W. L. Quan, Q. F. Chen, Z. J. Fu, X. Sun, W. Zheng, and Y. J. Gu, *Phys. Rev. E* **91**, 023106 (2015).
35. H. Dienemann, G. Clemens, and W. D. Kraeft, *Ann. Phys.* **37**, 6, 444 (1980).
36. М. А. Мочалов, Р. И. Илькаев, В. Е. Фортов и др., *ЖЭТФ* **163**, 439 (2023).
37. M. V. Zhernokletov, T. S. Lebedeva, A. B. Medvedev, M. A. Mochalov, A. N. Shuykin, V. E. Fortov, *Thermodynamic parameters and equation of state of low-density SiO2 aerogel*, in *Shock Compression of Condensed Matter - 2001*, ed. by M. D. Furnish, N. N. Thadhani, and Y. Horie, AIP, Georgia (USA) (2001), p. 763.
38. Д. Г. Гордеев, Л. Ф. Гударенко, М. В. Жерноклетов, В. Г. Куделькин, М. А. Мочалов, *ФГВ* **44**(2), 61 (2008).

39. В. А. Рабинович, А. А. Вассерман, В. И. Недоступ, Л. С. Векслер, *Теплофизические свойства неона, аргона, криптона и ксенона*, Изд-во стандартов, М. (1976), 636 с.
40. SESAME: The Los Alamos National Laboratory Equation of State. Database Stanford P. Lyon, James D. Johnson, Group T-1, LA-UR-92-3407 (1995).
41. Yu. P. Kuropatkin, V. D. Mironenko, V. N. Suvorov et al. (Collaboration), in *11th IEEE Pulsed Power Conf., Digest of Technical Papers*, ed. by G. Cooperstein and I. Vitkovitsky, Baltimor, Maryland, USA (1997), p. 1669.
42. V. A. Arinin and B. I. Tkachenko, *Pattern Recognition and Image Analysis* 19, **63** (2010).
43. Н. Ф. Гаврилов, Г. Г. Иванова, В. И. Селин, В. Н. Софронов, ВАНТ Сер.: Методики и программы численные решения задач математической физики **3**, 11 (1982).
44. V. Gryaznov and I. Iosilevskiy, *J. Phys. A: Math. Theor.* **42**, 214007 (2009).
45. V. Gryaznov, I. Iosilevskiy, and V. Fortov, *Plasma Phys. Control. Fusion* **8** 014012 (2015).
46. В. К. Грязнов, И. Л. Иосилевский, В. Е. Фортов, в кн. *Ударные волны и экстремальные состояния вещества*, под ред. В. Е. Фортова, Л. В. Альтшулера, Р. Ф. Трунина, А. И. Фунтикова, Наука, М. (2000), с. 342.
47. В. Эбелинг, А. Фёрстер, В. Фортов и др., *Теплофизические свойства горячей плотной плазмы*, НИИЦ “Регулярная и хаотическая динамика”, Ижевск (2007), 405 с.
48. М. А. Мочалов, Р. И. Ильяев, В. Е. Фортов и др., *ЖЭТФ* **59** (2021).
49. М. А. Мочалов, Р. И. Ильяев, В. Е. Фортов и др., *ЖЭТФ* **160**, 735 (2021).
50. D. A. Young, *A soft-sphere model for liquid metals*, UCRL-52352, LLNL, Univ. California (1977), 15 p.
51. W. L. Quan, Q. F. Chen, Z. J. Fu, X. W. Sun, J. Zheng, and Y. J. Gu, *Phys. Rev. E* **91**, 023106 (2015).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 119

Выпуск 12

25 июня 2024

*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.ru>

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

© Российская академия наук, 2024

© Редколлегия журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2024

Массы u , d и s кварков

А. А. Осипов¹⁾

Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

Поступила в редакцию 3 мая 2024 г.

После переработки 3 мая 2024 г.

Принята к публикации 15 мая 2024 г.

Исходя из выражений для квадратов масс псевдоскалярных мезонов m_π^2 и m_K^2 , полученных с точностью до второго порядка по нарушению киральной симметрии, определяются отношения масс легких кварков: m_s/m_d и m_u/m_d . Фит теоретических выражений m_π^2 и m_K^2 по их феноменологическим значениям ведет к функциональной зависимости между величинами m_s/m_d и m_u/m_d , которая описывается алгебраической кривой третьего порядка. Дополнительное ограничение возникает, если привлечь результат вычислений на решетке $m_s/m_d = 27.23(10)$, представленный FLAG для случая четырех кварковых ароматов. Это существенно уменьшает погрешность ($\sim 2\%$) для величины отношения $m_u/m_d = 0.455(8)$. Затем мы получаем абсолютные значения масс кварков.

DOI: 10.31857/S1234567824120012, EDN: ECIDGV

Токовые массы u , d и s кварков являются фундаментальными параметрами Стандартной модели, и поэтому определение их численных значений относится к числу первостепенных задач современной физики частиц. В квантовой хромодинамике (КХД) они отвечают за явное нарушение киральной $SU(3)_L \times SU(3)_R$ симметрии, которое описывается гамильтонианом

$$H_m = \sum_{q=u,d,s} m_q \bar{q}q. \quad (1)$$

Произведение $m_q \bar{q}q$ инвариантно относительно преобразований ренормгруппы (в приближении главных логарифмов). Известно, что на энергетическом масштабе $\mu \simeq 1$ ГэВ (в \overline{MS} -схеме вычитаний) массы легких кварков равны $m_u \simeq 4.2$ МэВ, $m_d \simeq 7.5$ МэВ, $m_s \simeq 150$ МэВ [1] (см. также [2–5]). Поскольку $m_q/\mu \ll 1$, H_m можно рассматривать, как малое возмущение в окрестности кирального предела $m_q = 0$.

Отношение кварковых масс $m_q(\mu)/m_{q'}(\mu)$ в \overline{MS} -схеме не зависит от выбора точки вычитания μ , и может быть получено из массовых формул псевдоскалярных мезонов стандартными методами алгебры токов [6]

$$\begin{aligned} m_{\pi^+}^2 &= B_0(m_u + m_d) + \gamma_{\pi^+}, \\ m_{\pi^0}^2 &= B_0(m_u + m_d) + \gamma_{\pi^0}, \\ m_{K^+}^2 &= B_0(m_u + m_s) + \gamma_{K^+}, \\ m_{K^0}^2 &= B_0(m_d + m_s) + \gamma_{K^0}. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь B_0 – величина, пропорциональная $SU(3)$ кварковому конденсату $B_0 = -\langle \bar{q}q \rangle / F^2$, F – константа распада пиона в киральном пределе; $m_{\pi,K}$ – феноменологические значения мезонных масс; $\gamma_{\pi,K}$ – электромагнитный вклад в собственную энергию псевдоскаляров. Согласно теореме Дашена [7] в лидирующем приближении по m_q имеют место равенства: $\gamma_{K^0} = \gamma_{\pi^0} = 0$, $\gamma_{\pi^+} = \gamma_{K^+} = m_{\pi^+}^2 - m_{\pi^0}^2$. Тогда приходим к известным формулам Вайнберга

$$\begin{aligned} \frac{m_u}{m_d} \stackrel{\text{LO}}{=} \frac{m_{K^+}^2 - m_{K^0}^2 + 2m_{\pi^0}^2 - m_{\pi^+}^2}{m_{K^0}^2 - m_{K^+}^2 + m_{\pi^+}^2} &= 0.56, \\ \frac{m_s}{m_d} \stackrel{\text{LO}}{=} \frac{m_{K^+}^2 + m_{K^0}^2 - m_{\pi^+}^2}{m_{K^0}^2 - m_{K^+}^2 + m_{\pi^+}^2} &= 20.18. \end{aligned} \quad (3)$$

Систематические вычисления следующей (NLO) поправки к результату Вайнберга [8, 9] показали, что выход за рамки алгебры токов ведет к функциональной зависимости отношений $x = m_u/m_d$ и $y = m_s/m_d$. Согласно низкоэнергетической теореме [8] кривая $f(x, y) = 0$ является эллипсом. Напротив, фитирование массовых формул, полученных с точностью до первой поправки к результату алгебры токов (2), показывает, что x и y принадлежат (с учетом приближений сделанных в [9]) кривой второго порядка, каноническая форма которой есть парабола. Поскольку вид функции $f(x, y)$ важен для извлечения теоретической информации о величинах отношений кварковых масс x и y , имеет смысл более подробно остановиться на обоих методах, чтобы понять их плюсы и минусы. Изучению этого вопроса и посвящена настоящая заметка.

¹⁾e-mail: aaosipov@jinr.ru

В основе нашего анализа лежат формулы

$$\begin{aligned} m_{\pi^+}^2 &= B_0(m_u + m_d)[1 + \Delta(m_u + m_d)] + \gamma_{\pi^+}, \\ m_{K^+}^2 &= B_0(m_u + m_s)[1 + \Delta(m_u + m_s)] + \gamma_{K^+}, \\ m_{K^0}^2 &= B_0(m_d + m_s)[1 + \Delta(m_d + m_s)] + \gamma_{K^0}, \end{aligned} \quad (4)$$

в которых учтен NLO вклад в собственную энергию псевдоскалярных мезонов. Эти соотношения могут быть получены в $1/N_c$ киральной теории возмущений ($1/N_c\chi$ РТ) [10, 11], и тогда параметр $\Delta = 8B_0(2L_8 - L_5)/F^2$ выражается через низкоэнергетические константы эффективного кирального лагранжиана. К формулам (4) мы приходим и в модели Намбу–Иона-Лазинио, используя правила счета, принятые в $1/N_c\chi$ РТ: $1/N_c, p^2, m_q = \mathcal{O}(\delta)$. В этом случае $\Delta = \delta_M/(2M_0)$ [12], где M_0 – щель в фермионном спектре, а безразмерная константа δ_M определяется всей совокупностью параметров модели. В дальнейшем величина параметра Δ будет фиксироваться исходя из современных оценок КХД на решетке. Следует также отметить, что величины параметров Δ и B_0 не влияют на вид функции $f(x, y)$.

Подчеркнем, что при выводе формул (4), помимо разложения по степеням масс кварков и импульсов, вершины эффективного мезонного лагранжиана классифицировались в соответствии с их поведением в пределе большого числа цветовых степеней свободы N_c . Это позволило расширить группу симметрии теории до $U(3)_L \times U(3)_R$, включив в рассмотрение η' -мезон, и как следствие, учесть известное решение $U(1)$ -проблемы [13–18], и подавить процессы, нарушающие правило Цвейга. Благодаря $1/N_c$ разложению, в выражении (4) отсутствует вклад киральных логарифмов, который имеет следующий порядок малости $\mathcal{O}(\delta^3)$. Это важная деталь позволяет избавиться от неоднозначности, возникающей при вычислениях x и y , которая связана с нефизической симметрией лагранжиана киральной теории возмущений относительно преобразований Каплана–Манохара [9].

Выход за рамки алгебры токов ведет к нарушению теоремы Дашена. Это, в первую очередь, касается вкладов γ_{π^+} и γ_{K^+} . Для нейтральных мод по-прежнему можно считать, что в (4) $\gamma_{K^0} = \gamma_{\pi^0} = 0$. Вклад виртуальных фотонов в собственную энергию заряженного пиона находим из формулы

$$\gamma_{\pi^+} = (m_{\pi^+}^2 - m_{\pi^0}^2) - (\bar{m}_{\pi^+}^2 - \bar{m}_{\pi^0}^2). \quad (5)$$

Чистый КХД-вклад мал $(\bar{m}_{\pi^+}^2 - \bar{m}_{\pi^0}^2) \sim (m_d - m_u)^2$ и может быть вычислен в χ РТ, которая дает оценку $\bar{m}_{\pi^+} - \bar{m}_{\pi^0} = 0.17(3)$ МэВ [8]. Отсюда следует, что

$$\gamma_{\pi^+} = 1.21(1) \times 10^{-3} \text{ ГэВ}^2 \quad [19, 20]. \quad (6)$$

В случае заряженного каона отклонение от теоремы Дашена ($\gamma_{K^+} = \gamma_{\pi^+}$) можно охарактеризовать параметром ϵ [21], а именно,

$$\gamma_{K^+} = \gamma_{\pi^+} + \epsilon(m_{\pi^+}^2 - m_{\pi^0}^2). \quad (7)$$

В недавнем обзоре результатов, полученных различными коллаборациями, моделирующими КХД на решетке, FLAG [22] приводит следующие усредненные значения ϵ

$$\epsilon = 0.79(6) \quad (N_f = 2 + 1 + 1), \quad (8)$$

$$\epsilon = 0.73(17) \quad (N_f = 2 + 1). \quad (9)$$

В дальнейшем мы будем использовать первую из оценок. Она имеет меньшую ошибку и отвечает симуляциям с четырьмя кварковыми ароматами, $m_u = m_d \neq m_s \neq m_c$. Это дает

$$\gamma_{K^+} = 2.21(8) \times 10^{-3} \text{ ГэВ}^2, \quad (10)$$

что, при сравнении с (6), указывает на существенное нарушение теоремы Дашена.

Система трех уравнений (4) имеет четыре свободных параметра (например, $m_d B_0, m_d \Delta, x, y$). По этой причине результатом ее решения будет связь $f(x, y) = 0$. Чтобы найти функцию $f(x, y)$, рассмотрим два отношения

$$\begin{aligned} r_x &= \frac{m_{K^+}^2 - m_{K^0}^2 + m_{\pi^+}^2 - \gamma_{K^+} - \gamma_{\pi^+}}{m_{K^0}^2 - m_{K^+}^2 + m_{\pi^+}^2 + \gamma_{K^+} - \gamma_{\pi^+}} \\ &= \frac{x + m_d \Delta [y(x-1) + x(x+1)]}{1 + m_d \Delta [y(1-x) + 1 + x]}, \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} r_y &= \frac{m_{K^+}^2 + m_{K^0}^2 - m_{\pi^+}^2 - \gamma_{K^+} + \gamma_{\pi^+}}{m_{K^0}^2 - m_{K^+}^2 + m_{\pi^+}^2 + \gamma_{K^+} - \gamma_{\pi^+}} \\ &= \frac{y + m_d \Delta [y(y+x) + y-x]}{1 + m_d \Delta [y(1-x) + 1 + x]}, \end{aligned} \quad (12)$$

где на втором шаге мы использовали формулы (4). С одной стороны, из экспериментальных значений масс π^+, K^+, K^0 мезонов и полученных выше оценок (6) и (10), получаем $r_x = 0.498(5)$, $r_y = 19.32(6)$, с другой стороны, исключая зависимость от параметра $m_d \Delta$ в (11) и (12), приходим к уравнению

$$(y^2 - 1)(1 - xr_x) = (1 - x^2)(yr_y - 1). \quad (13)$$

Это плоская алгебраическая кривая третьего порядка (кубика) рода $g = 1$. Она имеет три независимые ветви: две гиперболические и одну прямолинейную (гиперболического типа). Именно последней ветви принадлежит точка $(x, y) = (r_x, r_y)$.

Результат (13) не зависит от выбора отношений r_x, r_y . Любая произвольно выбранная пара

$$r_\alpha = \frac{(\alpha_P, \bar{m}_P^2)}{(\bar{\alpha}_P, \bar{m}_P^2)}, \quad r_\beta = \frac{(\beta_P, \bar{m}_P^2)}{(\bar{\beta}_P, \bar{m}_P^2)}, \quad (14)$$

где $\bar{m}_P^2 = m_P^2 - \gamma_P$, и $(\alpha_P, \bar{m}_P^2) = \alpha_{K^+} \bar{m}_{K^+}^2 + \alpha_{K^0} \bar{m}_{K^0}^2 + \alpha_{\pi^+} \bar{m}_{\pi^+}^2$, после исключения зависимости от Δ приведет к уравнению

$$\begin{aligned} & (\alpha_P, \mu_P^2)(\beta_P, \mu_P) - (\alpha_P, \mu_P)(\beta_P, \mu_P^2) \\ & + r_\alpha [(\bar{\alpha}_P, \mu_P)(\beta_P, \mu_P^2) - (\bar{\alpha}_P, \mu_P^2)(\beta_P, \mu_P)] \\ & + r_\beta [(\bar{\beta}_P, \mu_P^2)(\alpha_P, \mu_P) - (\bar{\beta}_P, \mu_P)(\alpha_P, \mu_P^2)] \\ & = r_\alpha r_\beta [(\bar{\beta}_P, \mu_P^2)(\bar{\alpha}_P, \mu_P) - (\bar{\beta}_P, \mu_P)(\bar{\alpha}_P, \mu_P^2)]. \end{aligned} \quad (15)$$

Здесь $\mu_P = m_i + m_j$, индексы (i, j) соответствуют кварковому составу конкретного мезонного состояния P : $(u, d) \rightarrow \pi^\pm$, $(u, s) \rightarrow K^\pm$, $(d, s) \rightarrow K^0, \bar{K}^0$.

Зависимость от произвольных параметров α_P , β_P , $\bar{\alpha}_P$, $\bar{\beta}_P$ факторизуется. Для этого r_α и r_β в (15) необходимо выразить через r_x и r_y . В результате уравнение примет вид

$$\mathcal{F}(\alpha_P, \beta_P, \bar{\alpha}_P, \bar{\beta}_P, r_x, r_y) \times [(y^2 - 1)(1 - xr_x) - (1 - x^2)(yr_y - 1)] = 0.$$

Если функция $\mathcal{F} \neq 0$, то имеет место уравнение (13). В противном случае, r_α и r_β не являются независимыми переменными. Таким образом, вид кривой (14) не зависит от выбора пары r_α, r_β . Более того, в случае, когда $\bar{\alpha}_P = \bar{\beta}_P$, как это, например, имеет место в (11), (12), отношения приводят к уравнению (13) независимо от того, производится δ -разложение отношений (14) в ряд или нет.

Действительно, δ -разложение дает

$$r_\alpha = k_\alpha [1 + l_\alpha(m_d \Delta) + \mathcal{O}(\delta^2)], \quad (16)$$

где коэффициенты k_α и l_α являются функциями отношений кварковых масс x, y и параметров $\alpha_P, \bar{\alpha}_P$

$$k_\alpha = \frac{(\alpha_P, \mu_P)}{(\bar{\alpha}_P, \mu_P)}, \quad l_\alpha = \frac{1}{m_d} \left[\frac{(\alpha_P, \mu_P^2)}{(\alpha_P, \mu_P)} - \frac{(\bar{\alpha}_P, \mu_P^2)}{(\bar{\alpha}_P, \mu_P)} \right].$$

Очевидно, что если рассмотреть два элемента r_α и r_β , то можно исключить зависимость от параметра $m_d \Delta$ и, таким образом, найти уравнение, связывающее y и x

$$k_\alpha k_\beta (l_\alpha - l_\beta) = k_\alpha l_\alpha r_\beta - k_\beta l_\beta r_\alpha. \quad (17)$$

Если $\bar{\alpha}_P = \bar{\beta}_P$, (17) описывает кубическую кривую (13). Если же $\bar{\alpha}_P \neq \bar{\beta}_P$, различные пары r_α, r_β ведут к различным алгебраическим кривым. Некоторые следствия такого поведения изучались в [12, 23]. Наибольший интерес здесь представляет случай $l_\alpha = l_\beta$. Тогда из (17) следует, что $r_\alpha/r_\beta = k_\alpha/k_\beta$, т.е. в данном двойном отношении NLO вклады отсутствуют.

Это составляет содержание хорошо известной низкоэнергетической теоремы [8]. Например, рассмотрим киральное разложение следующих отношений

$$\begin{aligned} r_1 &= \frac{m_{K^+}^2 - \gamma_{K^+}}{m_{\pi^+}^2 - \gamma_{\pi^+}} \\ &= \frac{m_s + m_u}{m_d + m_u} [1 + \Delta(m_s - m_d) + \mathcal{O}(\delta^2)], \\ r_2 &= \frac{m_{K^0}^2 - m_{K^+}^2 + \gamma_{K^+}}{m_{K^0}^2 - m_{\pi^+}^2 + \gamma_{\pi^+}} \\ &= \frac{m_d - m_u}{m_s - m_u} [1 + \Delta(m_s - m_d) + \mathcal{O}(\delta^2)]. \end{aligned} \quad (18)$$

У них $l_1 = l_2$, и как следствие

$$\frac{r_1}{r_2} = \frac{m_s^2 - m_u^2}{m_d^2 - m_u^2} \equiv Q_1^2. \quad (19)$$

Очевидно, что здесь переменные x и y принадлежат эллипсу. В этом случае мы имеем три степени свободы $m_d \Delta, x, y$ для фитирования двух феноменологических значений r_1, r_2 . Безразмерный параметр $m_d \Delta$ отвечает за положение точки на кривой (напомним, что в случае кубической кривой для этого необходимо фиксировать значения двух параметров: $m_d \Delta$ и $m_d B_0$). Уравнение эллипса (19) в переменных r_x, r_y принимает вид

$$(y^2 - 1)(1 - r_x^2) = (1 - x^2)(r_y^2 - 1). \quad (20)$$

Из сравнения уравнений (13) и (20) (см. рис. 1), видно, что обе кривые содержат одни и те же параметры r_x и r_y . Разница в том, что в случае эллипса они образуют общий фактор, который определяет главную полуось данной геометрической фигуры

$$Q_1 = \sqrt{\frac{r_y^2 - r_x^2}{1 - r_x^2}} = 22.28(15). \quad (21)$$

В приведенной численной оценке указана погрешность, которая вызвана ошибкой в величине ϵ (8). Этот результат находится в прекрасном согласии с оценкой $Q_{GL} = 22.1(7)$ [19], где $Q_{GL} \equiv (m_s^2 - m_{ud}^2)/(m_d^2 - m_u^2)$, и $m_{ud} = (m_u + m_d)/2$, полученной из экспериментальных данных по $\eta \rightarrow 3\pi$ распадам. Он также согласуется с оценкой FLAG: $Q_{GL} = 22.5(5)$ [22]. Высокая точность численной оценки (21) объясняется прецизионными данными современных вычислений КХД на решетке для величины ϵ .

В случае кубики параметры r_x и r_y независимы. Как следствие, отношение кварковых масс Q_1^2 меняется вдоль кубической кривой и, поэтому ее определение требует дополнительного предположения, которое, как мы покажем, в случае физических значений масс кварков ведет к результату $Q_1 = 22.24(16)$.

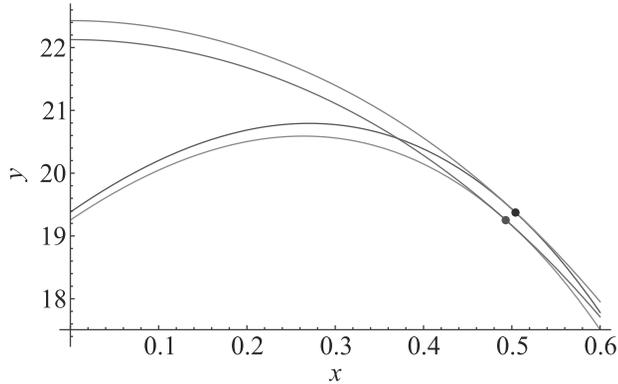


Рис. 1. (Цветной онлайн) Функция $y = m_s/m_d$ от $x = m_u/m_d$ в NLO приближении для случая, когда выполняется низкоэнергетическая теорема Гассера–Лойтвилера (эллипс, верхние кривые), и когда выполняются массовые формулы (кубика, нижние кривые). Поскольку теорема Дашена нарушена, для каждого из случаев изображены две кривые, охватывающие интервал $\epsilon = 0.79(6)$. Кривые имеют общую касательную в точке (r_x, r_y) . Воображаемая горизонтальная линия $y = r_y$ пересекает кубическую кривую в точках (r_x, r_y) и $(0, r_y)$

Предположение связано с использованием отношения $S = m_s/m_{ud} = 27.23(10)$ [22], которое известно из КХД расчетов на решетке, и малочувствительно к поправкам, связанным с нарушением теоремы Дашена. Электромагнитный вклад в эту величину составляет $\simeq 0.18\%$ [24], т.е. действительно очень мал. Знание S позволяет существенно ограничить область допустимых значений для x и y и таким образом повысить точность теоретических расчетов величины отношения m_u/m_d . Эта идея не нова. Она уже использовалась в [19], где авторам на основе кварковых отношений $Q_{GL} = 22.1(7)$ и $S = 27.23(10)$ удалось установить, что $m_u/m_d = 0.44(3)$. Теперь эту оценку можно улучшить благодаря высокой точности (8).

Результат наших расчетов представлен на рис. 2. Он демонстрирует прекрасное согласие данных, полученных независимо как на основе низкоэнергетической теоремы, так и с использованием кубической кривой

$$\begin{aligned} m_u/m_d &= 0.455(8) \quad (\text{кубика}), \\ m_u/m_d &= 0.456(8) \quad (\text{эллипс}). \end{aligned} \quad (22)$$

Как мы уже отмечали, величина кваркового конденсата $\langle \bar{q}q \rangle(\mu)$ связана с низкоэнергетической константой $B_0(\mu)$, и зависит от ренормгруппового масштаба μ в \overline{MS} схеме вычитаний. Однако произведение $m_q(\mu)B_0(\mu)$ инвариантно относительно преобразований ренормгруппы. Поскольку это произведение

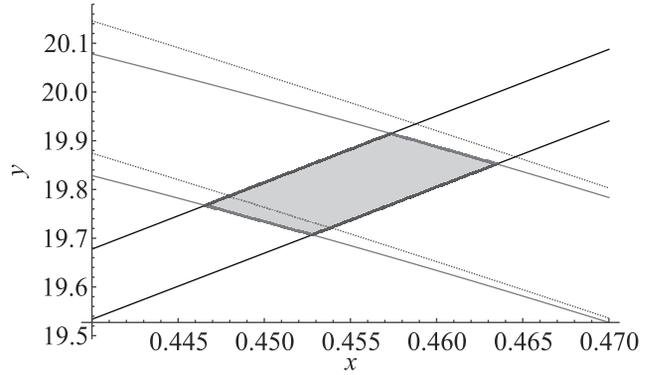


Рис. 2. (Цветной онлайн) Допустимые значения для отношений кварковых масс $x = m_u/m_d$ и $y = m_s/m_d$. Сравниваются эллипс (пунктирные линии, отвечающие области $Q_1 = 22.24(16)$) и кубика (сплошные линии, отвечающие области $\epsilon = 0.79(6)$). Тонкие прямые линии выделяют область $S = 27.23(10)$, полученную FLAG в результате обработки решеточных данных для $N_f = 2 + 1 + 1$ [22]. Пересечение полос, отвечающих рассматриваемым значениям S и кубики (закрашено), выделяет область физических значений для отношений x и y

является одним из внутренних параметров кубики, мы можем оценить массы отдельных кварков, если известно B_0 , и наоборот. Решеточные оценки $B_0(\mu)$ в настоящее время не отличаются высокой точностью. Для наших расчетов мы воспользуемся результатом $B_0(2 \text{ ГэВ}) = 2.682(36)(39) \text{ ГэВ}$ [26], суммарная ошибка которого сравнительно мала $\sim 2\%$.

Чтобы найти абсолютные значения масс кварков, необходимо решить систему трех уравнений (4). Для этого, при заданном значении $B_0(2 \text{ ГэВ})$, мы варьируем параметр Δ так, чтобы решение принадлежало выделенной (закрашенной) области на рис. 2. Соответствующие результаты собраны в табл. 1.

В первой строке таблицы представлены результаты решения системы уравнений (4), отвечающие значениям $B_0 = 2.682(53) \text{ ГэВ}$. Чтобы получить представление о роли погрешности, вносимой величиной B_0 , мы приводим также результаты расчетов, выполненных при строго фиксированном значении $B_0 = 2.66 \text{ ГэВ}$ (см. вторую строку табл. 1). Для этого мы взяли среднее арифметическое центральных значений $B_0 = 2.682(53) \text{ ГэВ}$ [26] и ЕТМ коллаборации $B_0 = 2.64(20) \text{ ГэВ}$ [27]. В третьей строке приведены значения, распространяемые PDG [25], а четвертая и пятая строки представляют оценки FLAG [22], сделанные для случая четырех и трех ароматов кварков соответственно. Они получены путем усреднения результатов различных решеточных коллабораций в соответствии с критериями отбора FLAG.

Таблица 1. Массы легких кварков m_u , m_d , m_s , усредненное по изоспину значение $m_{ud} = (m_u + m_d)/2$ (все в [МэВ]), и отношения масс кварков m_u/m_d , Q_1 , $R = (m_s - m_{ud})/(m_d - m_u)$. Все величины соответствуют шкале $\mu = 2$ ГэВ в \overline{MS} -схеме вычитаний

Источник	Условия	m_u	m_d	m_{ud}	m_s	m_u/m_d	Q_1	R
Данная статья	$B_0 = 2.682(53)$ ГэВ	2.14 ± 0.07	4.70 ± 0.12	$3.42(7)$	93.13 ± 2.25	$0.455(8)$	$22.23(16)$	$35.02(61)$
PDG [25]	$B_0 = 2.66$ ГэВ	2.16 ± 0.03	4.74 ± 0.03	$3.447(2)$	93.85 ± 0.41	$0.455(8)$	$22.23(16)$	$35.02(61)$
FLAG [22]	—	$2.16^{+0.49}_{-0.26}$	$4.67^{+0.48}_{-0.17}$	$3.45^{+0.35}_{-0.15}$	$93.4^{+8.6}_{-3.4}$	$0.474^{+0.056}_{-0.074}$	—	—
	$N_f = 2+1+1$	2.14 ± 0.08	4.70 ± 0.05	$3.410(43)$	93.44 ± 0.68	$0.465(24)$	$22.5(5)$	$35.9(1.7)$
	$N_f = 2+1$	2.27 ± 0.09	4.67 ± 0.09	$3.364(41)$	92.03 ± 0.88	$0.485(19)$	$23.3(5)$	$38.1(1.5)$

Сравнение результатов, представленных в первых двух строчках табл. 1, показывает, что ошибка $\simeq 2\%$ в величине B_0 вместе с существующей $\simeq 1.5\%$ погрешностью в определении значений ϵ и S ведет к суммарной ошибке $\simeq 3\%$ для масс кварков. Этой точности достаточно, чтобы утверждать, что наши результаты полностью согласуются с данными, представленными PDG, а также средними значениями, приведенными FLAG. Кроме того, из этого можно заключить, что используемое для расчетов δ -разложение, лежащее в основе исходной формулы для нашего анализа (4), оказывается эффективным инструментом для расчета масс легких кварков.

Поскольку в литературе имеется большое количество оценок кварковых масс, отнесенных к масштабу $\mu = 1$ ГэВ, мы приведем соответствующие результаты наших вычислений. В начале заметки мы указали результат Вайнберга для масс кварков. Он позволяет оценить величину константы $B_0(1 \text{ ГэВ}) \simeq 1.58$ ГэВ. Действительно, формулы (2) при данном значении B_0 дают $m_u = 4.1$ МэВ, $m_d = 7.4$ МэВ, $m_s = 149$ МэВ. Учет NLO поправки приводит к следующим оценкам (для разрешенной области рис. 2): $m_u = 3.63(5)$ МэВ, $m_d = 7.98(4)$ МэВ, $m_s = 158.0(7)$ МэВ. По ним можно судить и о величине NLO вклада в массы легких кварков, который здесь колеблется от 11 до 6%.

Подводя итог, можно сделать вывод, что кубика является еще одним полезным источником для извлечения теоретической информации о массах легких кварков. С одной стороны, данная кривая в области физических масс кварков прекрасно согласуется с требованием низкоэнергетической теории Гассера–Лойтвилера, с другой стороны, она позволяет оценить не только отношения масс кварков, но и их абсолютные значения. Полученные нами оценки представляются разумными и в принципе их точность будет расти вместе с уменьшением погрешности в определении низкоэнергетической константы B_0 .

Я благодарен Д. И. Казакову, В. А. Осипову, О. В. Теряеву и Б. Хиллер, за интерес к резуль-

татам данного исследования и стимулирующие обсуждения.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Объединенного института ядерных исследований. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Автор данной работы заявляет, что у него нет конфликта интересов.

1. S. Weinberg, Trans. New York Acad. Sci. **38**, 185 (1977).
2. H. Leutwyler, Phys. Lett. B **48**, 45 (1974).
3. H. Leutwyler, Nucl. Phys. B **76**, 413 (1974).
4. M. A. Shifman, A. I. Vainshtein, and V. I. Zakharov, Nucl. Phys. B **147**, 385 (1979).
5. Б. Л. Иоффе, УФН **171**, 1273 (2001).
6. M. Gell-Mann, R. Oakes, and B. Renner, Phys. Rev. **175**, 2195 (1968).
7. R. Dashen, Phys. Rev. **183**, 1245 (1969).
8. J. Gasser, H. Leutwyler, Nucl. Phys. B **250**, 465 (1985).
9. D. B. Kaplan and A. V. Manohar, Phys. Rev. Lett. **56**, 2004 (1986).
10. H. Leutwyler, Phys. Lett. B **374**, 163 (1996).
11. H. Leutwyler, Phys. Lett. B **378**, 313 (1996).
12. A. A. Osipov, Phys. Rev. D **108**, 016014 (2023).
13. E. Witten, Nucl. Phys. B **160**, 57 (1979).
14. G. Veneziano, Nucl. Phys. B **159**, 213 (1979).
15. C. Rosenzweig, J. Schechter, and G. Trahern, Phys. Rev. D **21**, 3388 (1980).
16. K. Kawarabayashi and N. Ohta, Nucl. Phys. B **175**, 477 (1980).
17. P. Di Vecchia and G. Veneziano, Nucl. Phys. B **171**, 253 (1980).
18. P. Di Vecchia, F. Nicodemi, R. Pettorino, and G. Veneziano, Nucl. Phys. B **181**, 318 (1981).
19. G. Colangelo, S. Lanz, H. Leutwyler, and E. Passemar, Phys. Rev. Lett. **118**, 022001 (2017).
20. G. Colangelo, S. Lanz, H. Leutwyler, and E. Passemar, Eur. Phys. J. C **78**, 947 (2018).

21. S. Aoki, Eur. Phys. J. C **77**, 112 (2017).
22. S. Aoki, Eur. Phys. J. C **82**, 869 (2022).
23. A. A. Osipov, JETP Lett. **115**(6), 305 (2022).
24. A. Bazavov, C. Bernard, N. Brown et al. (Fermilab Lattice and MILC Collaborations), Phys. Rev. D **98**, 074512 (2018).
25. R. L. Workman, V. D. Burkert, V. Crede et al. (Particle Data Group), Prog. Theor. Exp. Phys. **2022**, 083C01 (2022).
26. S. Borsanyi, S. Dürr, Z. Fodor, S. Krieg, A. Schäfer, E. E. Scholz, and K. K. Szabó, Phys. Rev. D **88**, 014513 (2013).
27. R. Baron, P. Boucaud, P. Dimopoulos et al. (ETM Collaboration), JHEP **1008**, 097 (2010).

Природа оптического усиления в микростержнях ZnO малого диаметра с модами шепчущей галереи

А. П. Тарасов¹⁾, Л. А. Задорожная, В. М. Каневский

Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова,
Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 4 апреля 2024 г.

После переработки 2 мая 2024 г.

Принята к публикации 5 мая 2024 г.

Благодаря достаточно высоким порогам лазерной генерации, стимулированное излучение в относительно небольших микрокристаллических лазерах ZnO часто считается следствием инверсии населенностей в электронно-дырочной плазме (ЭДП). В настоящей работе вопрос природы оптического усиления в таких излучателях исследован на примере микростержней ZnO с диаметрами 1–6 мкм, синтезированных методом модифицированного термического испарения и демонстрирующих лазерную генерацию на модах шепчущей галереи (МШГ) в ближнем ультрафиолетовом диапазоне. Показано, что оптическое усиление в таких объектах не является следствием инверсии населенностей в ЭДП ни при низкой, ни при комнатной температурах. Вместо этого, основным процессом, приводящим к усилению, является процесс типа экситон-электронного рассеяния. В отличие от случая крупных МШГ-микрорезонаторов ZnO, в небольших микростержнях этот процесс оказывается доминирующим в широком диапазоне температур.

DOI: 10.31857/S1234567824120024, EDN: HMXNNM

Введение. Оксид цинка – широкозонный полупроводник, известный своей высокой экситонной энергией связи и обладающий высоким коэффициентом оптического усиления в ближней ультрафиолетовой (УФ) области [1, 2]. Среди различных микрокристаллических лазеров на основе ZnO наиболее перспективными с точки зрения достижения низких порогов лазерной генерации и высоких оптических добротностей являются микролазеры с модами шепчущей галереи (МШГ). Вследствие полного внутреннего отражения и, как результат, низких оптических потерь, такие микролазеры демонстрируют гораздо лучшую энергоэффективность в сравнении с их аналогами на модах Фабри–Перо [3–5].

Одной из проблем, касающихся УФ МШГ-микролазеров на основе ZnO, является вопрос о механизмах оптического усиления в них. Особенно остро эта проблема стоит для случая комнатной температуры (КТ), когда стабильность экситонов может быть нарушена, а значительное температурное уширение часто не позволяет точно идентифицировать тип излучения. В частности, при КТ оптическое усиление часто приписывается как экситонным механизмам [6–9], так и процессам в электронно-дырочной плазме (ЭДП) [3, 9–11]. При этом сделанные предположения о типе излучения часто оказываются про-

тиворечивы, что вызывает вопросы и сложности у исследователя при изучении данного вопроса.

В этом смысле одними из наиболее спорных являются МШГ-микролазеры на основе относительно небольших микрокристаллов ZnO, например, микростержней с диаметрами порядка 5 мкм и меньше. Формально из-за того, что пороги лазерного эффекта в таких резонаторах бывают достаточно высоки (сотни кВт/см² при наносекундной УФ накачке) оптическое усиление в них часто приписывается инвертированной ЭДП [9–11]. К такому предположению подталкивают и исследования нанолазеров ZnO с модами Фабри–Перо [12, 13], а также случайных лазеров ZnO [14], в которых пороги лазерного эффекта также обычно довольно высоки и для которых инверсия населенностей в ЭДП также считается основным механизмом усиления. Однако, с другой стороны, спектральное поведение вынужденного излучения при КТ в небольших МШГ-микролазерах ZnO очень схоже со случаем их более крупных аналогов, в которых процессы рассеяния электрон-дырочных пар играют основную роль [15]. Все это вызывает сомнения и сложности при трактовке излучения в небольших МШГ-микрорезонаторах на основе ZnO и поощряет их дальнейшие исследования.

В настоящей работе указанный вопрос изучается на примере микростержней ZnO с небольшим диаметром (1–6 мкм), демонстрирующих лазерную гене-

¹⁾e-mail: tarasov.a@crys.ras.ru

рацию на МШГ в ближнем УФ диапазоне. Путем исследования излучения при различных интенсивностях фотовозбуждения и температурах мы показываем, что в таких микролазерах имеет место механизм, по природе аналогичный тому, который характерен более крупным МШГ-микролазерам при КТ – рассеяние электрон-дырочных пар (экситонов) на свободных электронах [15]. Отличие заключается в том, что в небольших микрорезонаторах этот процесс реализуется в более широком интервале температур.

Эксперимент. Микростержни ZnO были синтезированы на подложках сапфира (0001) с помощью модифицированного метода термического испарения. В качестве прекурсора использовали гранулы цинка чистотой 99.999% (Alfa Aesar, США). Синтез проводился в кварцевой трубке диаметром 52 мм в течение 30 мин при температуре 1020 °С. Возбуждение фотолюминесценции (ФЛ) микростержней осуществлялось 3-й гармоникой импульсного Nd:YAG-лазера (длина волны, длительность импульса и частота следования составляют соответственно 355 нм, 10 нс и 15 Гц). Размер пятна возбуждения на поверхности образца составлял ~100 мкм. Излучение лазера падало на образец (массив микростержней) под углом ~45°; регистрация осуществлялась под углом ~10° относительно нормали к образцу. Для увеличения соотношения сигнал-шум использовали накопление сигнала (50–200 импульсов). Более подробную информацию о методах синтеза и исследования можно найти в [16, 17].

Результаты. Синтезированная структура представляла собой массив микростержней ZnO (см. рис. 1). Микростержни обладали четким гексагональным сечением, узкой ножкой и более толстой и массивной верхней частью. Диаметры верхней части лежали в диапазоне ~1–6 мкм. Длины микростержней составляли ~30–60 мкм. Многие наиболее крупные (5–6 мкм в диаметре) микростержни имели следы травления в виде ямок часто гексагональной формы на торцевой грани (плоскость (001)) своей верхней части.

Для исследования эмиссионных свойств отдельных стержней часть микрокристаллов была соскоблена на чистую кремниевую подложку. Затем интересующий нас микростержень изолировался от других кристаллов; облучалась преимущественно более толстая часть стержня. На вставке в рис. 1 показан снимок одного из таких стержней, сделанный с помощью оптического микроскопа. Эволюция спектров краевого излучения (КрИ) одиночного стержня диаметром толстой части ~3.5 мкм и длиной ~58 мкм

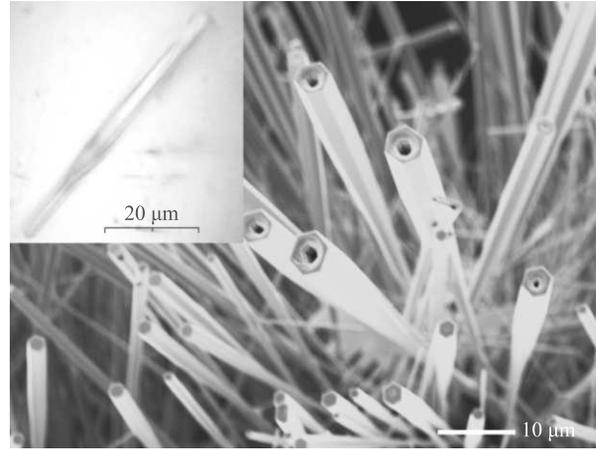


Рис. 1. (Цветной онлайн) Микрофотографии массива микростержней ZnO (основное изображение; растровая электронная микроскопия) и отдельного стержня (вставка; оптическая микроскопия)

при различных плотностях мощности возбуждения ρ_{exc} и КТ показана на рис. 2а. При начальных уровнях возбуждения наблюдается одна полоса люминесценции с длиной волны в максимуме 391.7 нм. При росте ρ_{exc} с длинноволновой стороны полосы появляется набор узких линий с длинами волн 392.50, 394.15 и 395.80 нм, обозначенных на рис. 2а как L1, L2 и L3, соответственно, с шириной на полувысоте (FWHM) 0.2–0.4 нм, что говорит о начале лазерной генерации в стержне.

На рисунке 2b построены графики зависимости интенсивности излучения I_{L2} в области наиболее интенсивной лазерной линии L2 от ρ_{exc} и широкой люминесцентной полосы $I_{\text{lum}}(\rho_{\text{exc}})$. В области $\rho_{\text{exc}} \sim 0.21$ МВт/см² на зависимости $I_{L2}(\rho_{\text{exc}})$ заметен излом, что соответствует появлению лазерных линий. Зависимость $I_{\text{lum}}(\rho_{\text{exc}})$, линейная в начальном диапазоне уровней возбуждения, проявляет тенденцию к насыщению при увеличении ρ_{exc} выше 0.8 МВт/см². Кроме того, спектральная область с лазерной генерацией (область усиления) проявляет красное смещение при росте уровня возбуждения. Это отражается поведением интенсивностей лазерных линий и их отношения. Так, с этим связано затухание интенсивности линии L1 с ростом ρ_{exc} и поведение отношения интенсивностей I_{L2}/I_{L3} для соседних линий L2 и L3, изображенное на вставке в рис. 2b. Видно, что начальный рост отношения I_{L2}/I_{L3} постепенно замедляется и сменяется падением, что соответствует началу относительного роста более длинноволновой линии и, в целом, красному смещению профиля усиления. Таким образом, мы наблюдаем картину МШГ-лазирования с характерным красным смеще-

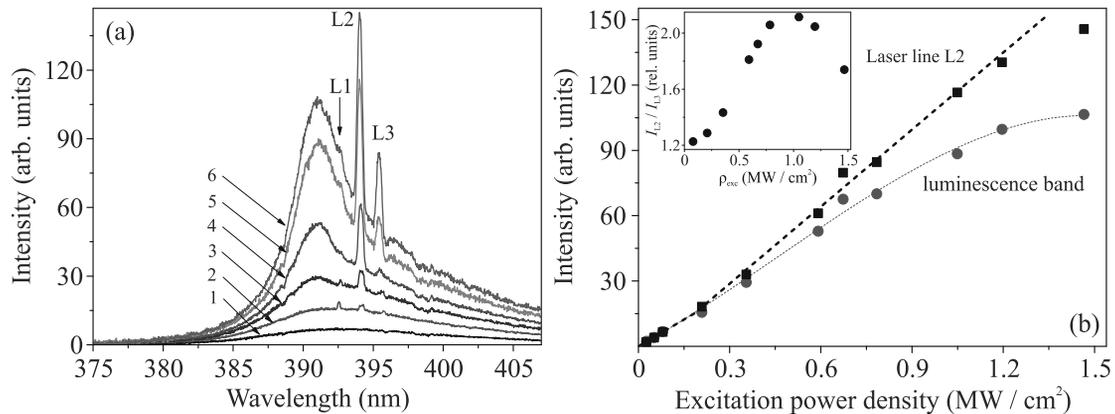


Рис. 2. (Цветной онлайн) Эволюция спектров КРИ микростержня ZnO при КТ при увеличении интенсивности фотовозбуждения: 1 – 0.08; 2 – 0.21; 3 – 0.35; 4 – 0.59; 5 – 1.05; 6 – 1.47 МВт/см² (а) и зависимости интенсивностей люминесцентной полосы (красные кружки) и лазерной линии L2 (черные квадраты) от ρ_{exc} (б). На вставке рис. (б) построена зависимость отношения I_{L2}/I_{L3} от ρ_{exc} . Линии на рис. (б) проведены для удобства визуализации данных эксперимента

нием профиля усиления (другой тип лазерного эффекта на МШГ в ZnO не проявляет красного смещения [6, 8, 9, 15]).

В микростержнях ZnO лазерная генерация наблюдается с участием двух основных типов оптических мод: мод Фабри–Перо и МШГ. В исследуемом случае моды Фабри–Перо можно исключить ввиду их явного несоответствия наблюдаемому лазерному спектру. Действительно, расстояние $\Delta\lambda \sim 1.65$ нм между модами Фабри–Перо должно соответствовать длине резонатора не более 10–15 мкм, принимая во внимание дисперсию ZnO [1, 18–21], что гораздо меньше длины исследованного микростержня. Возбуждение МШГ в данном случае подтверждается простым анализом на основе модели планарного гексагонального резонатора [9, 22]. В рамках этой модели длина волны МШГ ТЕ-поляризации с номером N (в ближкравеой области моды с ТМ-поляризацией обычно более слабые [20, 23]) описывается выражением:

$$\lambda_N(D) = \frac{1.5\sqrt{3}nD}{N + \frac{6}{\pi} \tan^{-1}(n\sqrt{3n^2 - 4})}, \quad (1)$$

где D – диаметр гексагонального резонатора, n – показатель преломления для ТЕ-поляризации. Исследуемому случаю хорошо удовлетворяет $n(\lambda)$ из [20], давая для линий L1, L2 и L3 номера мод $N = 57, 56$ и 55 , соответственно, при диаметре резонатора 3.7 мкм, что близко к размеру более толстой части стержня, определенного с помощью оптической микроскопии.

Для исследования низкотемпературных спектров КРИ массива микростержней была выбрана область образца вблизи его края, где число лазерующих мик-

ростержней было относительно небольшим. На рисунке 3 показана эволюция КРИ массива микро-

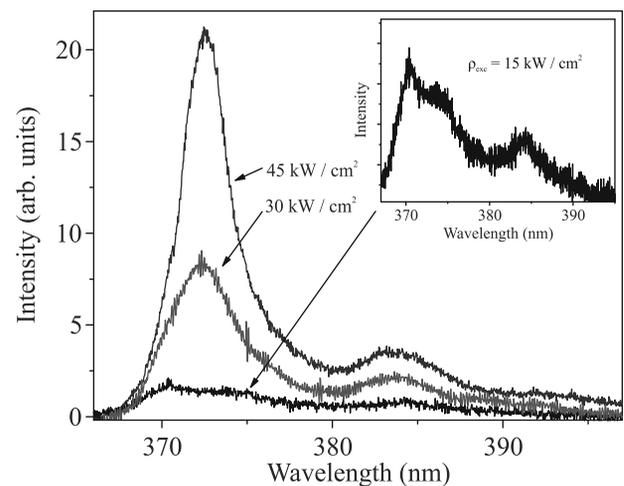


Рис. 3. (Цветной онлайн) Эволюция спектров КРИ массива стержней при увеличении интенсивности фотовозбуждения при $T \sim 80$ К. На вставке – спектр при $\rho_{exc} \sim 15$ кВт/см²

стержней при $T \sim 80$ К и небольшом росте плотности мощности фотовозбуждения ρ_{exc} . При наименьшем значении ρ_{exc} картина КРИ образца (см. вставку на рис. 3) типична для микрокристаллов ZnO при данной температуре [15, 24–26]. В частности, визуально четко различимы 3 полосы с максимумами на 370.2 нм (3.349 эВ), 374 нм (3.315 эВ) и 383.6 нм (3.232 эВ), обусловленные соответственно рекомбинацией связанных экситонов, смесью первого фононного повторения излучения свободного экситона (X-LO) и излучения с участием поверхност-

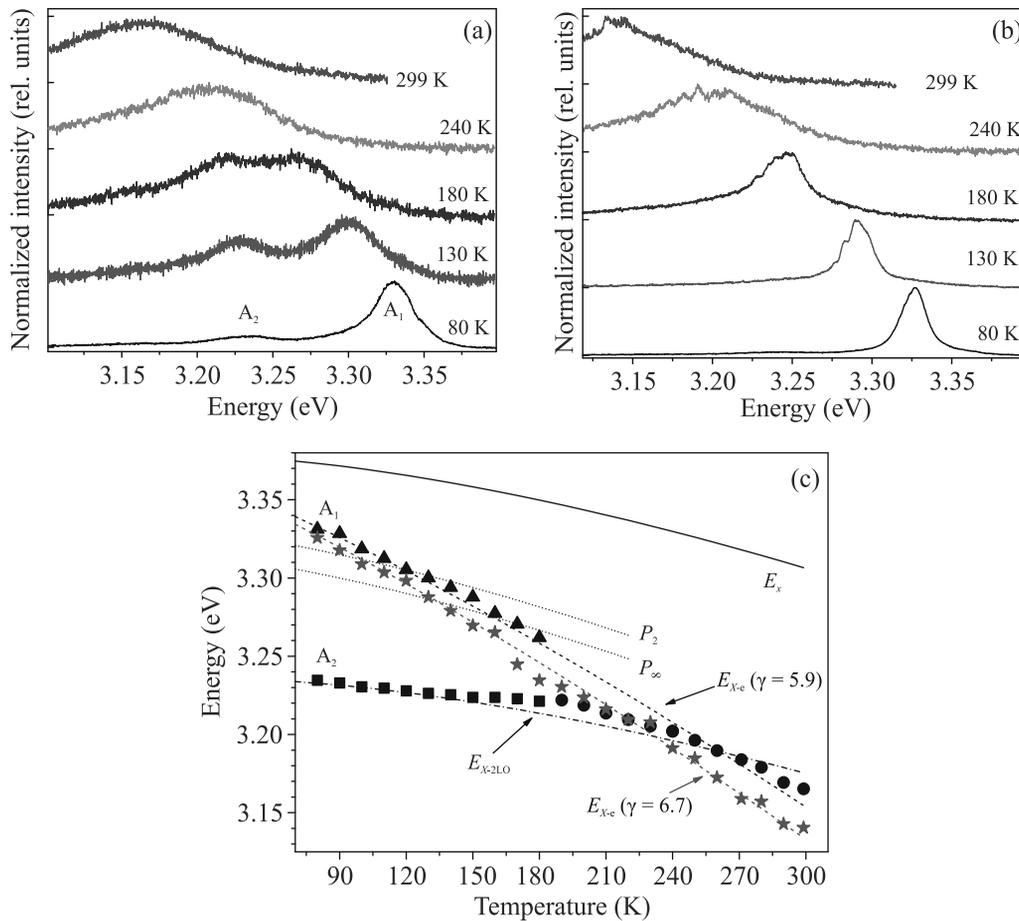


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры КрИ микростержней ZnO в режиме УСИ (а) и лазерной генерации (б), зарегистрированные при различных температурах; (с) – зависимости энергии фотонов от температуры для полос А1 (черные треугольники), А2 (черные квадраты) и объединенной полосы (черные кружки) в режиме УСИ и лазерной полосы (красные звезды). Также показаны теоретические энергии для процессов X-X (точечный пунктир), X-e (пунктирная линия) и X-2LO (штрихпунктирная линия), а также энергия $E_X(T)$ [24] (сплошная линия)

ных состояний, а также главным образом второго (X-2LO) фотонного повторения свободного экситона [15, 24–26]. Учитывая небольшую долю удельной поверхности (соотношение поверхности и объема) микрокристаллитов, вклад фононных повторений полос, обусловленных поверхностными дефектами, в области длин волн выше ~ 380 нм, вероятно, невелик [27]. При $\rho_{\text{exc}} \sim 20$ кВт/см² появляется полоса в области 371.9 нм (3.334 эВ). При увеличении ρ_{exc} эта полоса демонстрирует быстрый сверхлинейный рост и сужение, проявляя, таким образом, стимулированный характер.

Исследование температурного поведения КрИ микростержней ZnO было проведено в двух разных режимах: режиме усиленного спонтанного излучения (УСИ) и режиме лазерной генерации. На рисунке 4 приведены спектры КрИ образца в режимах УСИ (рис. 4а) и лазерной генерации (рис. 4б)

при некоторых различных температурах, построенные в зависимости от энергии фотонов. Полученные данные позволили построить и проанализировать зависимости энергий основных наблюдаемых полос КрИ от температуры. В частности, на рис. 4с построены такие зависимости в режиме УСИ при $\rho_{\text{exc}} \approx 0.05$ МВт/см² (рис. 4с, черные фигуры) и лазерной генерации при $\rho_{\text{exc}} = 0.3$ МВт/см² (рис. 4с, красные звезды). В режиме УСИ регистрировались и отслеживались две основные полосы: полоса стимулированного излучения (А1 на рис. 4а, с) и полоса, идентифицированная как X-2LO при 80 К (А2 на рис. 4а, с). При измерении в режиме лазерной генерации для определения положения максимума проводилось взвешенное усреднение по всем наблюдаемым лазерным линиям по формуле $E_{\text{max}} = \sum_n E_n \times I_n / \sum_n I_n$, где E_n и I_n – энергия и интенсивность n -й лазерной линии, соответственно.

Чтобы на основе анализа спектрального положения полосы понять, какие механизмы задействуются в излучении, необходимо знать экситонную энергию $E_X(T)$ и/или ширину запрещенной зоны $E_g(T)$ данного образца. В данной работе мы имеем дело со структурой, состоящей из достаточно крупных микрокристаллитов, изготовленной в обычных условиях без применения дополнительного допирования. Кроме того, структура спектра краевой люминесценции образца при низкой температуре и положение отдельных полос в спектре типичны для массивного и микрокристаллического ZnO, что позволяет использовать полученные для этого случая данные в настоящем исследовании. На рисунке 4с сплошной линией показана экситонная энергия $E_X(T)$, измеренная для массивного кристалла ZnO в [24]. Основываясь на $E_X(T)$, можно анализировать различные экситонные процессы. Так, на рис. 4с точечным пунктиром построено положение так называемой P -полосы, возникающей при рекомбинации экситона после его рассеяния на другом экситоне (X - X рассеяние). Энергия P -полосы дается выражением:

$$P_n(T) = E_X(T) - E_b \left(1 - \frac{1}{n^2} \right) - \frac{3}{2} k_B T, \quad n = 2, \dots, \infty, \quad (2)$$

где n – возбужденное состояние одного из рассеянных экситонов [26]. Из рисунка 4с видно, что полоса стимулированного излучения как в режиме УСИ, так и в режиме лазерной генерации, при низкой температуре не следует температурной зависимости для P -полосы. При температурах менее ~ 120 К полоса (в обоих режимах) находится с коротковолновой стороны от энергетического “коридора”, заключенного между энергиями $P_2(T)$ и $P_\infty(T)$. При этом в режиме лазерной генерации положение полосы более длинноволновое.

При $T \sim 190$ К полоса УСИ сливается с более длинноволновой полосой, положение которой практически идеально описывается уравнением для X -2LO:

$$E_{X-2LO}(T) = E_X(T) - 2E_{LO} + 1/2k_B T, \quad (3)$$

где E_{LO} – энергия LO-фонона (72 мэВ в ZnO) [26]. Это подтверждает заключение о природе этой полосы, сделанное выше. Заметим, что, судя по рис. 4с, X -2LO излучение формирует значительную долю излучения микростержней при КТ. Это коррелирует с более ранними результатами, в которых полоса люминесценции при КТ, не смещающаяся при увеличении интенсивности фотовозбуждения, приписывается именно процессу X -2LO [8, 15, 17].

При той же температуре ($T \sim 190$ К) полоса лазерной генерации лишь слегка отклоняется в сторону меньших энергий. При $T > 190$ К максимум единственной полосы в режиме УСИ примерно следует вдоль теоретической кривой (3), немного отклоняясь в длинноволновую сторону при температурах близких к КТ.

Анализ температурного хода полос УСИ и лазерного излучения выявляет линейную зависимость их энергии по температуре относительно энергии $E_X(T)$. Известно, что такую зависимость демонстрирует излучение экситонов, рекомбинировавших при рассеянии на свободных носителях – электронах и дырках (X - e и X - h рассеяние соответственно) [26, 28]. При этом в связи с более пологим законом дисперсии дырок по сравнению с электронами в ZnO, их состояния обладают меньшими энергиями при тех же квазиимпульсах и заняты с большей вероятностью. Как следствие, процесс X - e рассеяния в структурах ZnO оказывается более определяющим. Энергия фотона $E_{X-e}(T)$, испущенного в ходе X - e процесса подчиняется соотношению:

$$E_{X-e}(T) = E_X(T) - \gamma k_B T, \quad (4)$$

где γ – коэффициент, зависящий от соотношения эффективных масс экситона и электрона [26, 28]. С энергетическими диаграммами процессов (2)–(4) можно ознакомиться, например, в [5, 26]. На рисунке 4с пунктиром проведены кривые (4), соответствующие режимам УСИ и лазерной генерации. При этом соответствующие значения γ составляют 5.9 и 6.7. Значение $\gamma = 5.9$ соответствует экспериментальным данным для микрокристаллического ZnO [15, 29] и удовлетворяет теории [26, 28]. Во втором случае (режим лазерной генерации) лишь иллюстрируется подчинение зависимости (4) – значение γ завышено из-за длинноволнового смещения лазерной полосы в связи с нагревом образца в результате мощной накачки и увеличением эффективной температуры носителей. Тем не менее, ясно видно, что полоса лазерной генерации следует кривой (4) во всем исследованном диапазоне температур. Небольшое отклонение температурного хода лазерной полосы от теоретической зависимости (4) в диапазоне температур 170–220 К может быть связано с конкуренцией X - e и X -2LO процессов – так же, как наблюдалось в случае крупных микростержней с МШГ [15].

Обсуждение. Наблюдаемая нами спектральная картина, проявляющаяся в присутствии широкой полосы люминесценции в области 390–392 нм, которая не демонстрирует активного смещения при росте уровня возбуждения, наряду со смещающейся

лазерной полосой, наблюдалась и ранее в других исследованиях МШГ-микролазеров на основе ZnO [9–11]. Так, например, в значительной степени схожая картина была описана в работе [10], где также исследовался лазерный эффект на МШГ в микро-стержнях ZnO с небольшим диаметром (~ 3.4 мкм). При этом пороги лазерной генерации в наблюдаемом нами случае и в [10] также оказываются одного порядка – 0.21 МВт/см² в данной работе и ~ 0.38 МВт/см² в [10]. Такие лазеры нельзя назвать низкопороговыми. Более того, столь высокие значения плотности мощности не позволяют исключить формирование ЭДП в микрокристаллах. Для оценки плотности электрон-дырочных пар n_{e-h} , создаваемой накачкой, часто пользуются выражением $n_{e-h} = \rho_{\text{exc}} \tau (\hbar \omega_{\text{exc}} l)^{-1}$, где $\hbar \omega_{\text{exc}}$ – энергия возбуждающего фотона; τ – время жизни электрон-дырочной пары; l – глубина проникновения возбуждающих фотонов. Действительно, подставляя значения $\tau \sim 100$ пс и $l \sim 100$ нм [30], при $\rho_{\text{exc}} = 0.21$ МВт/см² получаем $n_{e-h} \sim 10^{18}$ см⁻³, т.е. порядка теоретического значения порога Мотта в ZnO [31]. Конечно, такая оценка отражает не все факторы, влияющие на величину n_{e-h} . Так, например, остаются неучтенными эффективность преобразования накачки в люминесценцию и диффузия электрон-дырочных пар, учет которых приведет к уменьшению оценочного значения n_{e-h} . Тем не менее, она позволяет допустить формирование ЭДП. На основании такого допущения часто делается заключение о возможности формирования инверсии населенности в ЭДП с последующей прямой рекомбинацией и лазерованием [5, 9, 10]. Более того, до настоящего времени и в общем случае любых МШГ-микролазеров ZnO, проявляющих красное смещение, этот механизм усиления предполагался основным при КТ [3, 9–11]. Тем не менее, величины n_{e-h} может не хватать для инверсии населенности в ЭДП [32]. Кроме того, оценки проведенные с помощью методов теории многих тел [14, 31] позволяют понять, что даже в условиях интенсивной накачки, когда плотность пар n_{e-h} достаточно велика, и, как следствие, существенен эффект ренормализации запрещенной зоны, значения E_g микрокристаллов не достигают столь коротковолновых значений, какие принимает положение лазерной полосы при КТ [33]. В этом случае при отсутствии инверсии населенностей в ЭДП предполагается возможным принципиальная неизменность механизма рассеяния, приводящего к усилению. При этом экситонный процесс рассеяния (в том числе, $X-e$ и $X-2LO$) может плавно сменяться на аналогичный процесс в ЭДП с участием кулоновски-скореллированных электрон-

дырочных состояний [32]. Похоже, это и имеет место в случае небольших МШГ-микролазеров на основе микростержней ZnO, как показывает настоящее исследование. Таким образом, механизмы оптического усиления в небольших и крупных МШГ-микролазерах ZnO [15] оказываются схожи. Тем не менее, можно заметить и существенные отличия между ними. Так, в [15] было показано, что в случае микростержней большого диаметра (10–20 мкм) с МШГ, при низких температурах (до ~ 170 К) усиление реализуется за счет процесса $X-X$ рассеяния, аналогично микрокристаллам и массивным образцам ZnO [26, 28, 29]. Кроме того, процесс $X-2LO$ также может создавать заметное усиление, особенно при пониженных температурах (вплоть до ~ 180 – 200 К), и конкурировать с процессом $X-e$ [15, 17]. Усиление же в микростержнях с малым диаметром в широком диапазоне температур создается в результате процесса типа $X-e$. Причиной этого, по-видимому, являются высокие плотности электрон-дырочных пар, которые необходимо создать в микрорезонаторе небольшого размера для достижения величины усиления, достаточной для преодоления потерь. Это приводит к значительной ионизации экситонов и невозможности $X-X$ процесса даже при низких температурах.

Полоса спонтанного излучения в области 390–392 нм, не смещающаяся с ростом уровня фотовозбуждения, формируется в результате $X-2LO$ процесса (или его аналога в режиме ЭДП). Таким образом, она, действительно, имеет экситонную природу, как предположено в [10]. Отметим, что эта полоса наблюдается во многих микроструктурах ZnO, в том числе с МШГ, и может проявлять стимулированный характер [6–10]. При этом ее часто связывают с процессом экситон-экситонного рассеяния [6, 7]. Однако, как показывается в настоящей работе и в [15, 17], эта полоса не имеет к отношению к $X-X$ процессу. То, что она сохраняет линейный ход после начала лазерной генерации при отсутствии сужения, может говорить о том, что это излучение происходит главным образом из областей микрокристалла, отличных от лазерующих. По-видимому, присутствие в спектре этого излучения одновременно с лазерным делает излом на зависимости $I_{L2}(\rho_{\text{exc}})$ менее явным.

Заключение. В работе исследован лазерный эффект в микростержнях ZnO с небольшим диаметром (1–6 мкм). Мы показали, что оптическое усиление для этого процесса в диапазоне температур 80–300 К, как и в случае более крупных МШГ-микролазеров (с диаметрами до 20 мкм) [15], обеспечивается процессом рассеяния электрон-дырочных пар (экситонов) на электронах, а не инверсией населенности в

электронно-дырочной плазме, как широко считалось ранее. Кроме того, показано, что люминесцентная полоса в области 390–392 нм при комнатной температуре, не смещающаяся с увеличением интенсивности возбуждения, представляет собой главным образом второе фоновое повторение излучения свободного экситона, по крайней мере, при относительно невысоких накачках. Таким образом, в совокупности с нашими предыдущими исследованиями, можно говорить о том, что процессы рассеяния электрон-дырочных пар (экситонов) ответственны за оптическое усиление в МШГ-микролазерах на основе ZnO.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда # 23-29-00535 (<https://rscf.ru/project/23-29-00535/>).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. H. Morkoc and U. Ozgur, *Zinc oxide: fundamentals, materials and device technology*, Wiley-VCH, Weinheim (2009).
2. C. F. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, Springer, Berlin (2012).
3. H. Dong, B. Zhou, J. Li, J. Zhan, and L. Zhang, *J. Materiomics* **3**, 255 (2017).
4. А. П. Тарасов, Ч. М. Брискина, В. М. Маркушев, Л. А. Задорожная, А. С. Лавриков, В. М. Каневский, Письма в ЖЭТФ **110**, 750 (2019) [JETP Lett. **110**, 739 (2019)].
5. A. Tashiro, Y. Adachi, and T. Uchino, *J. Appl. Phys.* **133**, 221101 (2023).
6. R. Chen, B. Ling, X. W. Sun, and H. D. Sun, *Adv. Mater.* **23**, 2199 (2011).
7. J. Dai, C. X. Xu, X. Y. Xu, J. T. Li, J. Y. Guo, and Y. Lin, *APL Mater.* **1**, 032105 (2013).
8. T. Michalsky, M. Wille, C. P. Dietrich, R. Roder, C. Ronning, R. Schmidt-Grund, and M. Grundmann, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 211106 (2014).
9. C. Xu, J. Dai, G. Zhu, G. Zhu, Y. Lin, J. Li, and Z. Shi, *Las. Photon. Rev.* **8**, 469 (2014).
10. J. Dai, C. X. Xu, P. Wu, J. Y. Guo, Z. H. Li, and Z. L. Shi, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 011101 (2010).
11. J. Dai, C. Xu, T. Nakamura, Y. Wang, J. Li, and Y. Lin, *Opt. Express* **22**, 28831 (2014).
12. M. A. Versteegh, D. Vanmaekelbergh, and J. I. Dijkhuis, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 157402 (2012).
13. M. Wille, C. Sturm, T. Michalsky, R. Röder, C. Ronning, R. Schmidt-Grund, and M. Grundmann, *Nanotechnology* **27**, 225702 (2016).
14. T. Nakamura, K. Firdaus, and S. Adachi, *Phys. Rev. B* **86**, 205103 (2012).
15. A. P. Tarasov, A. E. Muslimov, and V. M. Kanevsky, *Materials* **15**, 8723 (2022).
16. Л. Н. Демьянец, Л. Е. Ли, А. С. Лавриков, С. В. Никитин, Кристаллография **55**, 149 (2010) [Crystallogr. Rep. **55**, 142 (2010)].
17. L. A. Zadorozhnaya, A. P. Tarasov, A. S. Lavrikov, and V. M. Kanevsky, *Comp. Opt.* **48**, to be published (2024).
18. X. W. Sun and H. S. Kwok, *J. Appl. Phys.* **86**, 408 (1999).
19. M. A. Zimmmer, J. Bao, F. Capasso, S. Müller, and C. Ronning, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 051101 (2008).
20. J. Liu, S. Lee, Y. Ahn, J. Y. Park, K. H. Koh, and K. H. Park, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 263102 (2008).
21. А. П. Тарасов, А. С. Лавриков, Л. А. Задорожная, В. М. Каневский, Письма в ЖЭТФ **115**, 554 (2022) [JETP Lett. **115**, 502 (2022)].
22. L. Sun, H. Dong, W. Xie, Z. An, X. Shen, and Z. Chen, *Opt. Express* **18**, 15371 (2010).
23. J. Wiersig, *Phys. Rev. A* **67**, 023807 (2003).
24. L. Wang and N. C. Giles, *J. Appl. Phys.* **94**, 973 (2003).
25. J. V. Foreman, J. G. Simmons, W. E. Baughman, J. Liu, and J. O. Everitt, *J. Appl. Phys.* **113**, 133513 (2013).
26. C. Klingshirn, J. Fallert, H. Zhou, J. Sartor, C. Thiele, F. Maier-Flaig, D. Schneider, and H. Kalt, *Phys. Status Solidi* **247**, 1424 (2010).
27. А. П. Тарасов, И. Д. Веневцев, А. Э. Муслимов, Л. А. Задорожная, П. А. Родный, В. М. Каневский, Квантовая электроника **51**, 366 (2021) [Quantum Electron. **51**, 366 (2021)].
28. C. Klingshirn, *Phys. Status Solidi B* **71**, 547 (1975).
29. R. Matsuzaki, H. Soma, K. Fukuoka, K. Kodama, A. Asahara, T. Suemoto, Y. Adachi, and T. Uchino, *Phys. Rev. B* **96**, 125306 (2017).
30. U. Ozgur, Y. I. Alivov, C. Liu, A. Teke, M. A. Reshchikov, S. Dogan, V. Avrutin, S. J. Cho, and H. A. Morkoc, *J. Appl. Phys.* **98**, 41301 (2005).
31. M. A. Versteegh, T. Kuis, H. T. C. Stoof, and J. I. Dijkhuis, *Phys. Rev. B* **84**, 035207 (2011).
32. C. Klingshirn, R. Hauschild, J. Fallert, and H. Kalt, *Phys. Rev. B* **75**, 115203 (2007).
33. А. П. Тарасов, Л. А. Задорожная, А. Э. Муслимов, Ч. М. Брискина, В. М. Каневский, Письма в ЖЭТФ **114**, 596 (2021) [JETP Lett. **114**, 517 (2021)].

Фототермическая конверсия и лазерно-индуцированные трансформации в сплавных кремний-германиевых наночастицах

С. О. Гурбатов^{1*}, А. В. Шевлягин⁺, А. Ю. Жижченко⁺, Е. Б. Модин[×], А. А. Кучмижак⁺, С. И. Кудряшов^{°1)}

⁺Институт автоматки и процессов управления Дальневосточного отделения РАН, 690041 Владивосток, Россия

*Дальневосточный федеральный университет, 690041 Владивосток, Россия

[×]CIC NanoGUNE BRTA, Avda Tolosa 76, 20018 Donostia-San Sebastian, Spain

[°]Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 23 апреля 2024 г.

После переработки 8 мая 2024 г.

Принята к публикации 14 мая 2024 г.

Сплавные наночастицы $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ контролируемого состава были получены методом наносекундной лазерной абляции в изопропанолe кремний-германиевых мишеней. Синтезированный продукт демонстрирует поликристаллическую структуру и одномодальное распределение по размеру с преимущественным содержанием частиц микронного диаметра, а также сохраняет стехиометрию состава использованных для синтеза мишеней. Нано-термометрия с использованием регистрации и анализа сигнала комбинационного рассеяния света от единичных сплавных наночастиц размером около 200 нм демонстрирует трехкратно увеличенную (в сравнении с наночастицами чистого кремния) эффективность нагрева наноматериала с составом $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ лазерным излучением с длиной волны 785 нм, попадающей в первое “окно прозрачности” биологических тканей. Стимулированные непрерывным инфракрасным излучением диффузия атомов кремния к поверхности (при нагреве на 650 К) и их окисление приводит к постепенной трансформации сплавных наночастиц в германиевые кластеры, инкапсулированные в SiO_x матрицу.

DOI: 10.31857/S1234567824120036, EDN: IACONZ

1. Наночастицы, демонстрирующие резонансный характер взаимодействия с падающим на них оптическим излучением, активно используются в задачах создания передовых сенсорных и оптоэлектронных устройств [1, 2], катализаторов химических реакций [3], а также в различных диагностических и терапевтических приложениях персонализированной медицины, являющейся общемировым трендом в лечении социально-значимых заболеваний [4]. К таким перспективным подходам, в частности, можно отнести гипертермию опухолевых тканей, при которой внедренные в них наночастицы подвергаются воздействию инфракрасным (ИК) лазерным излучением, попадающим в так называемые “окна прозрачности” биологических тканей (например, NIR-I: 0.65–0.95 мкм или NIR-II: 1–1.4 мкм). Поглощенное наночастицами излучение конвертируется в тепло, осуществляя локальное термическое воздействие на окружающие опухолевые ткани, приводя к их разрушению [5]. Таким образом, получение биосовместимых наноматериалов, обеспечивающих эффективное

фототермическое преобразование на указанных длинах волн лазерного воздействия, является крайне важной прикладной задачей для дальнейшего развития методов фотогипертермии опухолей.

Кремниевые (Si) наночастицы в последнее время активно рассматриваются в качестве перспективной замены дорогостоящим и зачастую токсичным наночастицам из благородных металлов в передовых задачах биовизуализации и гипертермии онкологических заболеваний [6–9]. К высокопроизводительным методам получения таких наночастиц можно отнести разнообразные протоколы химического синтеза, характерными чертами которого является возможность формирования монодисперсных наноматериалов заданного размера и с идеальной кристаллической структурой [10]. Вместе с тем использование ряда зачастую токсичных химических прекурсоров в процессе синтеза наноматериалов ставит вопросы об их биосовместимости при использовании на живых объектах, требуя отработки дополнительных нетривиальных протоколов очистки продукта. Альтернативным способом получения наночастиц кремния является активно развивающийся в последнее десяти-

¹⁾e-mail: alex.iacp.dvo@mail.ru; sikidr@lebedev.ru

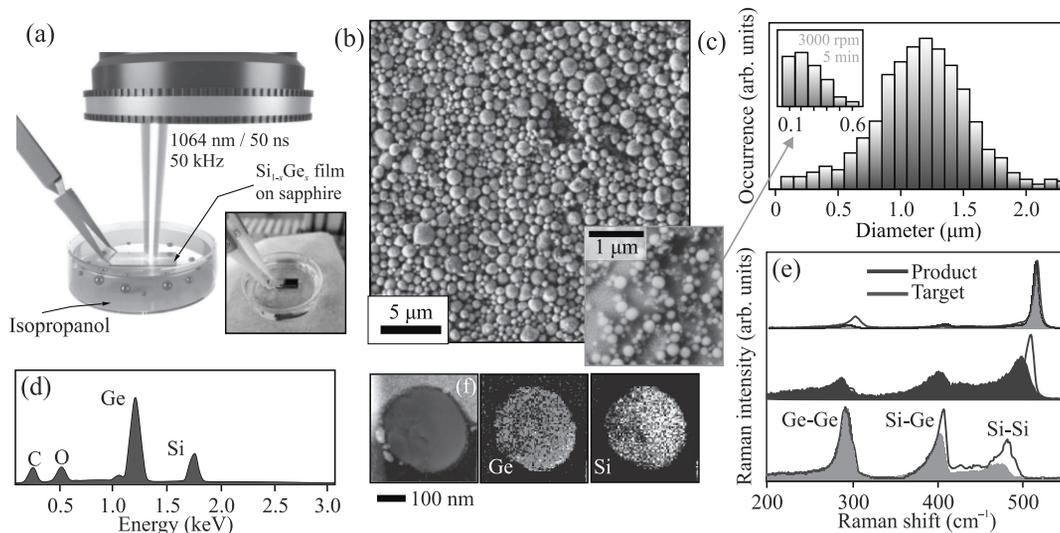


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Схематическое изображение процесса получения наночастиц $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ при абляции пленок сплава на сапфировой подложке. На вставке приведено оптическое изображение мишени после лазерной абляции. (b) – СЭМ-снимок полученных наночастиц $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$, а также (c) – их распределение по размерам. На вставке рисунков (b), (c) приведены СЭМ-снимок и распределение наночастиц по размерам в продукте, полученном после центрифугирования исходной суспензии при скорости вращения 3000 об/мин (845 g). (d) – Репрезентативный ЭДРС-спектр мишени $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$. (e) – Спектры КРС для кремний-германиевых мишеней с различной стехиометрией и получаемых из них методом лазерной абляции в изопропанолe сплавных частиц. (f) – ПЭМ-снимок, а также результаты картирования распределения германия и кремния в единичной наночастице $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ диаметром около 300 нм

летие метод лазерной абляции в жидкости, продемонстрировавший свою эффективность в задачах получения химически чистых наноматериалов, пригодных для ряда практических приложений тераностики, включая биовизуализацию и терапию опухолей [11–13]. Вместе с тем в спектральных диапазонах, соответствующих “окнам прозрачности” биотканей, нанокристаллический кремний демонстрирует довольно слабое оптическое поглощение, вследствие чего, эффективность фототермической конверсии лазерного излучения наночастицами Si оказывается относительно невысокой. Для решения данной задачи были предложены протоколы лазерной абляции в жидкости, позволяющие получать легированные халькогенами кремниевые наночастицы [14], а также гибридные металл-кремниевые наноструктуры [15–20]. Следует отметить, что в обоих случаях, как правило, требуется использование дополнительных химических прекурсоров в процессе лазерного синтеза, что может негативным образом сказаться на биосовместимости и токсичности получаемых материалов. Резонансная термализация наночастиц Si может быть достигнута при согласовании длины волны накачки (λ_{pump}) и характерного диаметра (D) наночастицы, обеспечивающего возбуждение размерных резонансов Ми [21], однако для указанных длин волн лазерного излучения в “окнах прозрачности” биотка-

ней требуемый размер наночастиц составляет более 200 нм (например, для основного дипольного магнитного резонанса Ми $D = 210$ нм при $\lambda_{\text{pump}} = 785$ нм [22]). Вместе с тем с ростом размера наночастиц ухудшается эффективность преодоления ими гистогематических барьеров, затрудняя попадание наноматериала в опухолевые клетки [5]. В сравнении с кремнием, в указанных спектральных диапазонах германий характеризуется существенно большей величиной мнимой части диэлектрической проницаемости, отвечающей за эффективность поглощения лазерного излучения (и тем самым, эффективность фототермической конверсии), а также более высокими значениями действительной части, потенциально обеспечивая возможность создания Ми-резонансных наночастиц меньшего размера [23]. Однако в настоящее время отсутствуют работы по синтезу сплавных кремний-германиевых наночастиц методом лазерной абляции в жидкости, а также исследованию эффективности их фототермической конверсии.

В данной работе с использованием спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС) проводится сравнительная оценка эффективности фотоиндуцированной термализации лазерным излучением ($\lambda_{\text{pump}} = 785$ нм) единичных кремниевых и сплавных ($\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$) наночастиц, полученных методом лазерной абляции в изопропанолe. Систематические ис-

следования подтвердили перспективность использования кремний-германиевых наночастиц для задач гипертермии, а также позволили выявить нетривиальные структурные и фазовые трансформации, индуцированные в таких сплавных наночастицах под действием ИК лазерного облучения.

2. Формирование наночастиц $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ осуществлялось методом жидкофазной лазерной абляции поликристаллических кремний-германиевых пленок-мишеней толщиной 2.5–3 мкм, нанесенных на сапфировые подложки методом термического со-осаждения в вакуумной камере с базовым давлением 10^{-6} Торр при постоянной температуре 500 °С. Стехиометрия пленок регулировалась соотношением скоростей атомарных потоков кремния и германия, которые были откалиброваны при помощи кварцевого измерителя толщины. Абляция изготовленных мишеней производилась в химически чистом изопропаноле (ХЧ, 99 %) с использованием излучения волоконного ИК-лазера (длина волны – 1064 нм, длительность в импульсе – 50 нс, частота следования импульсов – 50 кГц) со средней мощностью в 168 мВт, фокусирующейся на поверхность мишени в пятно с латеральным размером около 20 мкм. Гальванометрический сканнер использовался для развертки лазерного пучка по участку поверхности мишени (размером $3 \times 15 \text{ мм}^2$) со скоростью около 10 мм/с при латеральном смещении между соседними линиями сканирования в 20 мкм (рис. 1а). Данные параметры обеспечивали абляцию поверхности пленки без повреждения сапфировой подложки.

Морфологические, фазовые и структурные свойства полученных наночастиц исследовались методом сканирующей (СЭМ; Carl Zeiss, Ultra 55+) и просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ; Titan 60-300, Thermo Fisher) с использованием энерго-дисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДРС) для оценки химического состава (X-мап, Oxford Instruments). Микро-спектроскопия комбинационного рассеяния света (КРС) использовалась для анализа корреляции между структурно-фазовыми свойствами мишеней и полученных из них наночастиц, а также для оценки эффективности лазерно-индуцированного нагрева наночастиц (Integra Spectra II, NT-MDT). Спектроскопия КРС осуществлялась с использованием циркулярно-поляризованного излучения лазеров накачки с длинами волн 473 и 785 нм, фокусирующегося объективом с числовой апертурой $\text{NA} = 0.9$. Мощность падающего излучения накачки КРС контролировалась при помощи калиброванного фотоприемника,

анализ спектров осуществлялся с использованием решеточного спектрометра (Shamrock 303i, Andor Technologies) с охлаждаемой ПЗС-камерой (i-Dus, Andor Technologies).

3. СЭМ-изображение на рис. 1b иллюстрирует типичную морфологию продукта, полученного при абляции $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ мишеней в изопропанол. Как видно, сгенерированные при абляции мишени наночастицы имеют близкую к сферической форму, а также довольно широкий разброс по размеру в диапазоне 0.1–2.0 мкм (рис. 1b, c). Репрезентативный ЭДРС-спектр мишени $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ приведен на рис. 1d. Сравнение КРС-спектров мишени и полученных из нее нанопорошков, нанесенных из суспензий на стеклянные подложки, приведено на рис. 1e для трех выбранных типов мишеней с низким ($\text{Si}_{0.85}\text{Ge}_{0.15}$), средним ($\text{Si}_{0.65}\text{Ge}_{0.35}$) и относительно высоким ($\text{Si}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$) содержанием германия. Представленные КРС-спектры содержат 3 основных пика рассеяния, связанных с фоновыми колебаниями кремниевой (Si-Si; $\approx 480 \text{ см}^{-1}$), кремний-германиевой (Si-Ge; $\approx 400 \text{ см}^{-1}$) и германиевой (Ge-Ge; $\approx 280 \text{ см}^{-1}$) кристаллических подрешеток, а также низкоинтенсивные пики (~ 420 и $\sim 450 \text{ см}^{-1}$), обусловленные локальными колебательными модами Si-Si, вызванными флуктуациями количества атомов Ge вблизи атомов Si [24]. Для мишени с большим содержанием германия, основные пики демонстрируют смещение в область меньших частот, что находится в соответствии с теоретическими и экспериментальными оценками [25, 26], однако точное определение количества германия в сплаве исключительно по данным КРС спектроскопии требует учета наличия аморфных включений, среднего размера нано-кристаллитов, а также остаточных напряжений в кристаллической решетке. В связи с этим содержание германия в мишенях оценивалось по данным ЭДРС, в то время как КРС спектроскопия использовалась для сравнения химического и фазового состава мишени и полученного продукта, как правило, демонстрирующих существенную корреляцию. Сужение пиков КРС для наночастиц с высоким содержанием германия может свидетельствовать об их более высокой кристалличности (в сравнении с мишенью), являющейся следствием индуцированных лазером процессов плавления и рекристаллизации материала на суб-микросекундных временных интервалах. Абляция мишени также может приводить к некоторому перераспределению составляющих частицу элементов в процессе формирования и рекристаллизации, что объясняет разницу в КРС спектрах

мишени и продукта. Данный вывод отчасти подтверждается результатами более детального анализа распределения кремния и германия внутри одной репрезентативной наночастицы размером ≈ 450 нм методом картирования сигнала ЭДРС с высоким разрешением, реализованным в ПЭМ (рис. 1f). Так, на полученной карте можно идентифицировать локальные области вблизи поверхности наночастицы с незначительным увеличением концентрации германия. Вместе с тем приведенные наблюдения могут носить несистемный характер, который нельзя обобщить на продукт в целом, вследствие невозможности проведения систематических измерений для большей выборки единичных наночастиц, в то время как ключевым выводом проведенного ЭДРС-анализа с высоким разрешением является сохранение исходной стехиометрии состава мишени в получаемых из нее методом лазерной абляции наночастиц.

Описанный способ создания сплавных $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ наночастиц контролируемого состава с использованием недорогого волоконного лазерного источника позволяет получить готовую суспензию наноматериала с одномодальным распределением по размерам, однако максимум этого распределения приходится на размерный диапазон около 1 мкм. Вместе с тем, полупроводниковые наночастицы с размером 0.1–0.3 мкм представляют большой практический интерес, вследствие возможности возбуждения в таких наночастицах размерных резонансов Ми в видимой и ближней ИК области спектра. Кроме того, ввиду меньшего размера, такие наночастицы способны легче преодолевать гистогематические барьеры, что обеспечивает возможность их адресной доставки к опухолевым тканям для последующего проведения фототерапии [27]. Систематические исследования показали, что центрифугирование изготовленной суспензии наночастиц при скорости вращения 3000 об/мин (845 г) в течение 5 мин позволяет эффективно отделить осадок, содержащий микроразмерные частицы, от супернатанта, демонстрирующего аналогичное одномодальное распределение со средним размером около 200 нм (вставка на рис. 1b, c). Данные наночастицы были использованы для всех дальнейших экспериментов.

4. В данной работе была проведена сравнительная оценка эффективности нагрева лазерным излучением с длиной волны 785 нм, находящейся в центре “окна прозрачности” биологических тканей XNIR-I, единичных кремниевых и кремний-германиевых наночастиц состава $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ с характерным размером 200 ± 30 нм. Суспензии кремниевых наночастиц

для сравнительных экспериментов изготавливались методом лазерной абляции мишеней монокристаллического кремния в изопропанол. Затем полученные суспензии наночастиц наносились на покрытые пленкой золота стеклянные подложки, а распределение и размер наночастиц оценивались с использованием СЭМ. Концентрация наночастиц в суспензиях подбиралась таким образом, чтобы обеспечить формирование осадка в виде единичных наночастиц на подложке, подвергающихся облучению сфокусированным лазерным излучением варьирующей интенсивности (рис. 2a). Индуцированный лазером нагрев наночастиц приводил к сдвигу полос КРС на величину $\Delta\Omega(T)$, по которой можно оценить локальную температуру T в соответствии с выражением [28]:

$$\Delta\Omega_{\text{Si-Si}}(T) = A \left(1 + \frac{2}{\exp\left(\frac{h\Omega_0}{2kT}\right) - 1} \right) + B \left(1 + \frac{3}{\exp\left(\frac{h\Omega_0}{3kT}\right) - 1} + \frac{3}{\left(\exp\left(\frac{h\Omega_0}{3kT}\right) - 1\right)^2} \right), \quad (1)$$

где $\Omega_0 = 528 \text{ см}^{-1}$, $A = -2.96 \text{ см}^{-1}$, $B = -0.174 \text{ см}^{-1}$, $h = 1.05 \cdot 10^{-34} \text{ Дж} \cdot \text{с}$, $k = 1.38 \cdot 10^{-23} \text{ Дж/К}$. Вместе с тем для сплавных наночастиц с относительно высоким содержанием германия, теоретические оценки имеют ограниченную точность, вследствие чего калибровка зависимости $\Delta\Omega(\Delta T)$ предварительно осуществлялась при нагреве исходной кремний-германиевой мишени, а также подложки с нанесенными наночастицами в ячейке, продуваемой аргоном, с калиброванным термоэлектрическим элементом и измерением КРС спектров при низкой интенсивности лазерной накачки $\approx 0.3 \text{ мВт/мкм}^2$, не вызывающей существенного нагрева наночастиц, который можно было бы зарегистрировать по смещению полос КРС. Описанные эксперименты показали, что, во-первых, зависимость $\Delta\Omega(\Delta T)$ для полосы КРС Si-Si имеет практически одинаковый наклон как для мишени, так и для сплавных наночастиц, полученных из нее методом лазерной абляции (за исключением точки отсчета, которая определяется концентрацией германия), во-вторых, для исследованных $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ наночастиц измеренная зависимость $\Delta\Omega(\Delta T)$ хорошо согласуется с оценками, проведенными в соответствии с выражением (1) для диапазона температур $\Delta T = 0\text{--}600 \text{ К}$, что соответствует величине смещения пика КРС Si-Si в диапазоне $0\text{--}12 \text{ см}^{-1}$. Репрезентативная серия спектров КРС единичной наночастицы $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ диаметром $\approx 220 \pm 20$ нм при ее накачке лазерным излучением с увеличивающейся в диапазоне $0.39\text{--}3.3 \text{ мВт/мкм}^2$

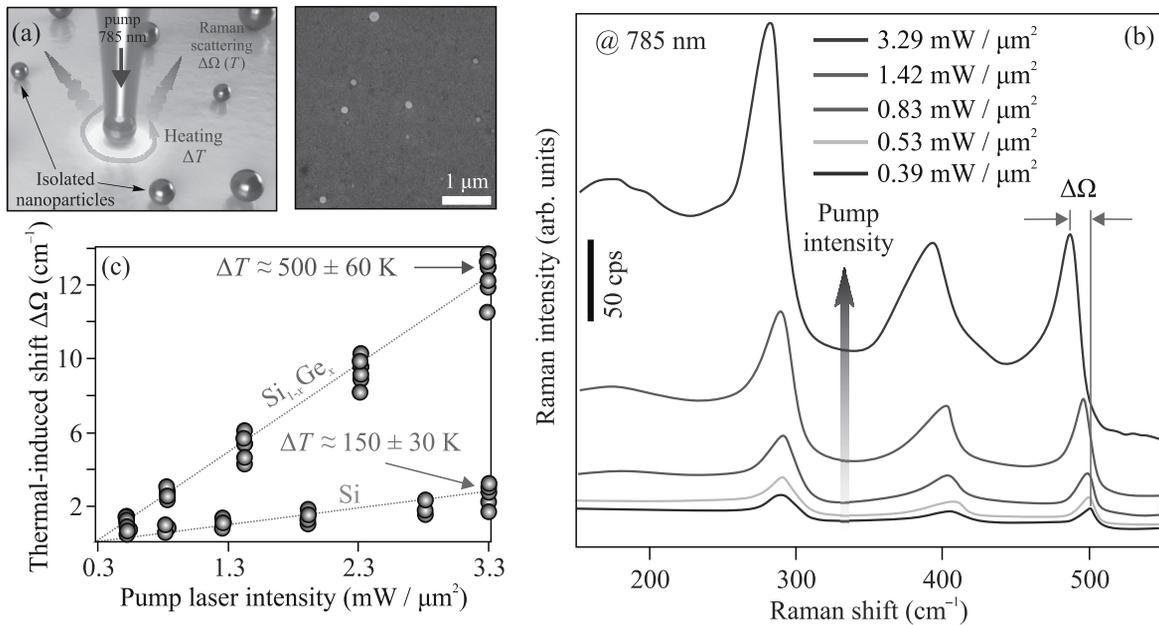


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Схематическое изображение процесса измерения эффективности нагрева единичных кремний-германиевых наночастиц лазерным излучением с длиной волны 785 нм по величине смещения полосы КРС Si-Si $\Delta\Omega$, а также СЭМ-снимок, показывающий типичный вид образца для измерений, с нанесенными наночастицами. (b) – Серия спектров КРС единичной наночастицы $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$, полученная при ее накачке лазерным излучением с увеличивающейся плотностью мощности от 0.39 до 3.3 мВт/мкм². (c) – Смещение пика КРС (Si-Si) единичных Si и $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ наночастиц с размерами в диапазоне 200 ± 30 нм от интенсивности накачки лазерным излучением с длиной 785 нм

мощностью приведена на рис. 2b, демонстрируя описанное выше смещение всех основных полос КРС в сторону меньших частот. Усредненная по множественным измерениям сравнительная зависимость $\Delta\Omega$ от плотности мощности лазерной накачки КРС, полученная для $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ и Si наночастиц приведена на рис. 2c. Анализ приведенных данных и пересчет соответствующих термоиндуцированных смещений полос КРС позволяет оценить эффективность нагрева сплавных наночастиц, достигающих $\Delta T \approx 500 \pm 60$ К при максимальной плотности мощности в 3.3 мВт/мкм², что практически в 3 раза превышает величину нагрева чистых кремниевых наночастиц аналогичного размера ($\Delta T \approx 150 \pm 30$ К).

5. При индуцированном ИК лазерным воздействием нагреве единичных кремний-германиевых наночастиц выше $\Delta T > 650$ К наблюдается их необратимая структурная и фазовая трансформация, проявляющаяся на спектрах КРС в виде практически полного исчезновения пиков Si-Ge и Si-Si, а также смещения в сторону больших частот и сужением полуширины пика Ge-Ge. Указанная структурная трансформация наблюдается систематически для сплавных наночастиц, независимо от их начальной стехиометрии. Для более детального изучения

динамики данного эффекта наночастицы подвергались непрерывному облучению излучением с длиной волны 785 нм, обеспечивающим их контролируемый по сигналу КРС нагрев до 820 К. В это же время, низкоинтенсивное лазерное излучение с длиной волны 473 нм использовалось для периодической регистрации динамического изменения КРС спектра наночастицы, обеспечивая за счет небольшой глубины проникновения излучения в вещество возможность отслеживать приповерхностные структурные и фазовые трансформации.

Полученные описанным образом спектры КРС единичной наночастицы $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ позволяют определить природу происходящих трансформаций, спустя различные временные интервалы после начала ее нагрева 785-нм излучением по изменению отношения относительной интенсивности пиков КРС Si-Si и Ge-Ge (рис. 3a). Данная величина как функция времени нагрева наночастицы приведена на рис. 3b, демонстрируя немонотонный характер. Так, на начальной стадии, длящейся порядка 5 мин, наблюдается обогащение кремнием приповерхностной области наночастицы, которое затем сменяется монотонным уменьшением интенсивности пика КРС Si-Si, вплоть до практически полного его исчезновения из

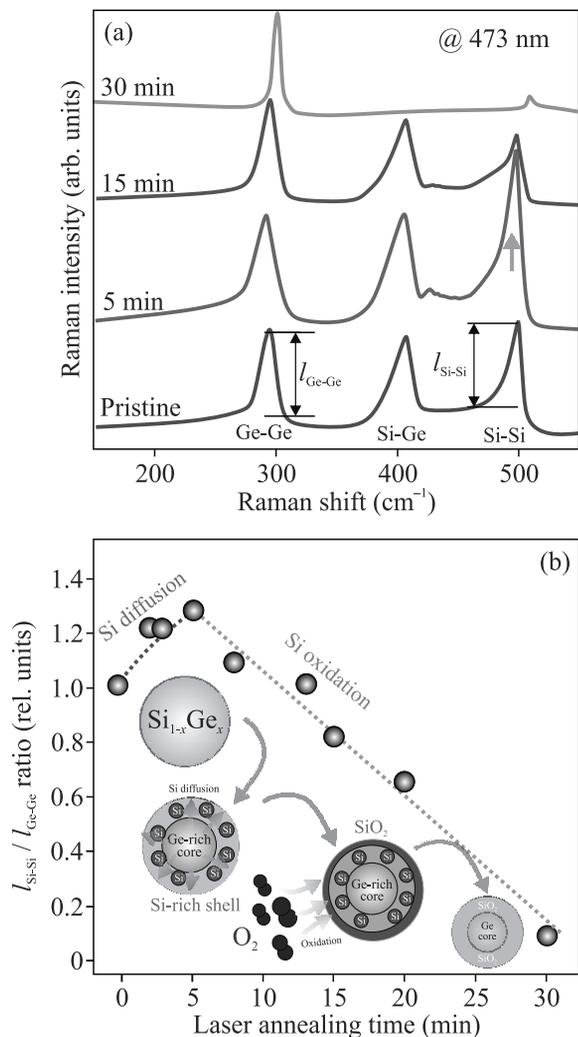


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Серия спектров КРС единичной наночастицы $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$, зарегистрированная по рассеянию лазерного излучения с длиной волны 473 нм, спустя различное время сначала ее отжига под воздействием непрерывного излучения с длиной волны 785 нм. (b) – Отношение интенсивностей пиков КРС Si-Si и Ge-Ge как функция времени лазерного отжига единичной наночастицы $\text{Si}_{0.45}\text{Ge}_{0.55}$ при ≈ 820 К

соответствующего спектра наночастицы при нагреве в течение 30 мин. Возникающая терминальная трансформация свидетельствует о разрушении сплавной структуры наночастицы, проявляясь в спектре КРС в виде интенсивной полосы $\sim 300 \text{ см}^{-1}$, соответствующей по положению и полуширине монокристаллическому германию, а также малоинтенсивной полосы $\sim 510 \text{ см}^{-1}$, предположительно, соответствующей кремнию, находящемуся в поликристаллическом и/или деформированном состоянии.

Анализ полученных результатов позволяет предложить следующую феноменологическую модель,

объясняющую наблюдаемые структурные и фазовые изменения сплавных кремний-германиевых наночастиц при их непрерывном нагреве ИК лазерным излучением. На начальном этапе лазерного нагрева происходит преимущественная диффузия атомов кремния на поверхность наночастицы (рис. 3а, б), которая выражается в увеличении интенсивности пика КРС для колебаний Si-Si. Спустя некоторое время, определяемое соотношением между диаметром наночастицы и диффузионной длиной для атомов кремния при данной температуре, на поверхности наночастицы запускается процесс преимущественного окисления кремния, приводящий к уменьшению интенсивности соответствующего пика КРС. В результате диффузии и окисления кремния, с одной стороны, происходит изменение стехиометрии в сплаве кремний-германий в сторону уменьшения содержания кремния, а с другой стороны – образование у наночастицы оксидной оболочки. Конечной стадией является формирование наночастицы со структурой оболочка-ядро, которая представляет собой нанокристаллическую фракцию германия, инкапсулированную в оболочку из оксида кремния. Следует отметить, что описанная феноменологическая картина согласуется с экспериментальными результатами, полученными при стимулированном ультрафиолетовым излучением термическом окислении тонких пленок сплава кремний-германий [29], а также с термодинамическими расчетами, указывающими, что в широком диапазоне концентрации германия в сплаве именно кремний окисляется в первую очередь [30].

6. В заключение, в данной работе продемонстрирована возможность одностадийного синтеза сплавных кремний-германиевых частиц контролируемого состава методом наносекундной лазерной абляции соответствующих мишеней в изопропанол. Показано, что синтезированный продукт повторяет стехиометрию исходных кремний-мишеней, а метод центрифугирования суспензий позволяет выделить фракцию продукта со средним диаметром около 200 нм. Анализ данных КРС показал, что сплавные наночастицы демонстрируют в 3 раза большую, чем у аналогичных по размеру чистых кремниевых частиц, эффективность нагрева под воздействием непрерывного лазерного излучения с длиной волны 785 нм, находящейся в центре “окна прозрачности” биологических тканей NIR-I. Важной особенностью синтезированных частиц является их фазовая и структурная трансформация под воздействием индуцированного ИК излучением нагрева, заключающаяся в изменении стехиометрии наночастицы в сторону уменьшения содержания кремния и образовании на терми-

нальной стадии нагрева наночастицы со структурой оболочка-ядро, которая представляет собой нанокристаллическую фракцию германия, инкапсулированную в оболочку из оксида кремния. Данное явление определяется конкуренцией между процессами диффузии и термического окисления кремния, зависящих от температуры термализации наночастицы, и имеет два важных с практической точки зрения аспекта. Во-первых, для сплавных кремний-германиевых наночастиц возможна трансформация их структуры и химического состава под воздействием лазерного излучения, что является важным для создания перестраиваемых элементов фотоники. Во-вторых, поскольку известно, что как сплав кремний-германия, так и его продукты распада в биологических жидкостях и тканях не оказывают существенно токсикологического эффекта [31], то обнаруженное в данной работе инкапсулирование материала наночастиц в оксидную матрицу в процессе нагрева потенциально повышает их биосовместимость. Таким образом, синтезированный в данной работе продукт демонстрирует высокий потенциал для развития методов фотогипертермии опухолей, а также создания передовых устройств фотоники.

Финансирование работы. Работа финансировалась за счет гранта Российского научного фонда (проект # 21-79-10304).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. M. Segev-Bar and H. Naick, *ACS Nano* **7**(10), 8366 (2013).
2. J. A. Schuller, E. S. Barnard, W. Cai, Y. C. Jun, J. S. White, and M. L. Brongersma, *Nature Mater.* **9**(3), 193 (2010).
3. D. Astruc, *Chem. Rev.* **120**(2), 461 (2020).
4. J. Xie, S. Lee, and X. Chen, *Adv. Drug Deliv. Rev.* **62**(11), 1064 (2010).
5. D. K. Chatterjee, P. Diagaradjane, and S. Krishnan, *Therapeutic Delivery* **2**(8), 1001 (2011).
6. A. V. Kabashin, A. Singh, M. T. Swihart, I. N. Zvestovskaya, and P. N. Prasad, *ACS Nano* **13**(9), 9841 (2019).
7. S. V. Zaboltnov, A. V. Skobelkina, E. A. Sergeeva, D. A. Kurakina, A. V. Khilov, F. V. Kashaev, T. P. Kaminskaya, D. E. Presnov, P. D. Agrba, D. V. Shuleiko, P. K. Kashkarov, L. A. Golovan, and M. Y. Kirillin, *Sensors* **20**, 4874 (2020).
8. M. Sandzhieva, D. Khmelevskaia, D. Tatarinov, L. Logunov, K. Samusev, A. Kuchmizhak, and S. V. Makarov, *Nanomaterials* **12**(21), 3916 (2022).
9. A. Y. Kharin, V. V. Lysenko, A. Rogov, Y. V. Ryabchikov, A. Geloan, I. Tishchenko, O. Marty, P. G. Sennikov, R. A. Kornev, I. N. Zvestovskaya, A. V. Kabashin, and V. Y. Timoshenko, *Adv. Opt. Mater.* **7**, 1801728 (2019).
10. A. A. Rempel, O. V. Ovchinnikov, I. A. Weinstein, S. V. Rempel, Yu. V. Kuznetsova, A. V. Naumov, M. S. Smirnov, I. Yu. Eremchev, A. S. Vokhmintsev, and S. S. Savchenko, *Russ. Chem. Rev.* **93**(4), RCR5114 (2024).
11. A. A. Bubnov, A. V. Syui, A. A. Popov, G. V. Tikhonovskii, N. S. Pokryshkin, and V. Yu. Timoshenko, *Physics of Atomic Nuclei* **86**(12), 2743 (2023).
12. V. Y. Nesterov, O. I. Sokolovskaya, L. A. Golovan, D. V. Shuleiko, A. V. Kolchin, D. E. Presnov, P. K. Kashkarov, A. V. Khilov, D. A. Kurakina, M. Yu. Kirillin, E. A. Sergeeva, and S. V. Zaboltnov, *Quantum Electron.* **52**(2), 160 (2022).
13. N. S. Pokryshkin, I. D. Kuchumov, V. G. Yakunin, and V. Y. Timoshenko, *Bull. Lebedev Phys. Inst.* **50**(Suppl 10), S1163 (2023).
14. A. A. Nastulyavichus, I. N. Saraeva, A. A. Rudenko, R. A. Khmel'nitskii, A. L. Shakhmin, D. A. Kirilenko, and S. I. Kudryashov, *Part. Part. Syst. Charact.* **37**(5), 2000010 (2020).
15. S. O. Gurbatov, V. Puzikov, A. Cherepakhin, E. Mitsai, N. Tarasenko, A. Shevlyagin, A. Sergeev, S. A. Kulinich, and A. A. Kuchmizhak, *Optics & Laser Technology* **147**, 107666 (2022).
16. S. O. Gurbatov, V. Puzikov, D. Storozhenko, E. Modin, E. Mitsai, A. Cherepakhin, A. Shevlyagin, A. V. Gerasimenko, S. A. Kulinich, and A. A. Kuchmizhak, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**(2), 3336 (2023).
17. S. Gurbatov, V. Puzikov, E. Modin, A. Shevlyagin, A. Gerasimenko, E. Mitsai, S. A. Kulinich, and A. A. Kuchmizhak, *Materials* **15**, 8091 (2022).
18. E. N. Gerasimova, E. Uvarov, V. V. Yaroshenko, O. Epifanovskaya, A. Shakirova, L. S. Logunov, O. Vlasova, A. Parodi, A. A. Zamyatnin, A. S. Timin, S. V. Makarov, and M. V. Zyuzin, *ACS Appl. Nano Mater.* **6**, 18848 (2023).
19. S. O. Gurbatov, A. Y. Zhizhchenko, V. Y. Nesterov, E. B. Modin, S. V. Zaboltnov, and A. A. Kuchmizhak, *ACS Applied Nano Materials* **7**(9), 10779 (2024).
20. A. Al-Kattan, G. Tselikov, K. Metwally, A. A. Popov, S. Mensah, and A. V. Kabashin, *Nanomaterials* **11**, 592 (2021).
21. A. I. Kuznetsov, A. E. Miroshnichenko, M. L. Brongersma, Y. S. Kivshar, and B. Luk'yanchuk, *Science* **354**(6314), aag2472 (2016).
22. P. A. Dmitriev, D. G. Baranov, V. A. Milichko, S. V. Makarov, I. S. Mukhin, A. K. Samusev, A. E. Krasnok, P. A. Belov, and Y. S. Kivshar, *Nanoscale* **8**, 9721 (2016).

23. E. Mitsai, M. Naffouti, T. David, M. Abbarchi, L. Hassayoun, D. Storozhenko, A. Mironenko, S. Brat-skaya, S. Juodkazis, S. Makarov, A. Kuchmizhak, *Nanoscale* **11**(24), 11634 (2019).
24. D. Rouchon, M. Mermoux, F. Bertin, and J. M. Hartmann, *J. Cryst. Growth* **392**, 66 (2014).
25. H. Burke and I. Herman, *Phys. Rev. B* **48**, 15016 (1993).
26. M. I. Alonso and K. Winer, *Phys. Rev. B* **39**, 10056 (1989).
27. J. Xu, M. Song, Z. Fang, L. Zheng, X. Huang, and K. Liu, *J. Control. Release* **353**, 699 (2023).
28. M. Balkanski, R. Wallis, and E. Haro, *Phys. Rev. B* **28**, 1928 (1983).
29. V. Craciun, A. H. Reader, D. E. Vandenhoudt, S. P. Best, R. S. Hutton, A. Andrei, and I. W. Boyd, *Thin Solid Films* **255**(1–2), 290 (1995).
30. D. C. Paine, C. Caragianis, and A. F. Schwartzman, *J. Appl. Phys.* **70**(9), 5076 (1991).
31. S. K. Kang, G. Park, K. Kim, S. W. Hwang, H. Y. Cheng, J. H. Shin, S. J. Chung, M. Kim, L. Yin, J. C. Lee, K. M. Lee, and J. A. Rogers, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **7**(17), 9297 (2015).

Гигантский эффективный g -фактор в присутствии спиновых бифуркаций в поляритонных конденсатах

А. Бочин⁺, И. Честнов⁺, А. Налитов^{*1)}

⁺Физико-технический мегафакультет, Университет ИТМО, 197101 С.-Петербург, Россия

^{*}Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 20 апреля 2024 г.

После переработки 2 мая 2024 г.

Принята к публикации 3 мая 2024 г.

Предсказана гигантская восприимчивость поляритонных конденсатов к внешнему магнитному полю в области спиновой бифуркации. Спин-анизотропные поляритон-поляритонные взаимодействия приводят к спонтанному формированию эллиптически поляризованного конденсата. Подобное поведение неравновесной системы вблизи критической точки имеет сходство со свойствами фазовых переходов второго рода. Предсказанный эффект усиления поля может быть использован для возбуждения топологически нетривиальных боголюбовских возбуждений поляритонного конденсата.

DOI: 10.31857/S1234567824120048, EDN: LHKTSB

Одним из важных проявлений взаимодействия света с веществом является магнитооптический эффект, заключающийся в снятии вырождения электромагнитных мод внешним магнитным полем. Так, например, эффект Зеемана для электронных возбуждений в диэлектриках и полупроводниках приводит к расщеплению круговых поляризаций, проявляющемуся через магнитооптический эффект Фарадея и керровское вращение [1]. Кроме того, локальное нарушение симметрии обращения времени в магнитном поле открывает возможность создания топологических фотонных состояний, способных распространяться без рассеяния [2, 3].

В оптическом диапазоне воздействие магнитного поля на излучение достаточно слабо. Однако в режиме сильной связи со средой магнитооптические эффекты могут быть существенно усилены благодаря возникновению гибридных квазичастиц, таких как экситонные поляритоны. Так недавно использование магнитного поля позволило продемонстрировать существование топологически нетривиальных поляритонных состояний в решетках оптических микрорезонаторов [4]. Более того, для увеличения силы магнитооптической связи, характеризуемой величиной эффективного g -фактора, могут быть, например, использованы микрорезонаторы с ферромагнитными средами [5].

Однако весь потенциал систем с сильной связью и экситонных поляритонов в частности раскрывается

в нелинейном режиме при формировании макроскопического когерентного состояния, известного также как бозонный конденсат. Так спин-анизотропное взаимодействие между поляритонами приводит к эффекту ларморовской прецессии псевдоспина конденсата вокруг самоиндуцированного поля даже в отсутствии внешнего магнитного поля [6, 7].

В термодинамическом пределе внешнее и эффективное самоиндуцированное магнитные поля антиколлинеарны и в точности компенсируют друг друга, пока внешнее поле не превышает некоторого критического значения. Данное явление получило название спинового эффекта Мейснера [8]. Однако в неравновесных конденсатах, формируемых нерезонансной накачкой, спиновая поляризация и порождаемое ею эффективное магнитное поле могут формироваться спонтанно в результате действия механизма, известного как спиновые бифуркации [9]. Похожим образом резонансно возбуждаемые неравновесные поляритонные состояния также демонстрируют спонтанную спиновую поляризацию и спиновую мультистабильность [10]. Отметим, однако, что взаимосвязь между равновесной экранировкой внешнего магнитного поля в режиме спинового эффекта Мейснера и спонтанным выбором знака поляризации, присущим диссипативным конденсатам, по-прежнему является предметом дискуссии [11, 12].

Для создания топологических оптических состояний реальное магнитное поле можно заменить эффективным калибровочным [13] и зеемановским [14] полями, возникающими в пространственно струк-

¹⁾e-mail: anton.nalitov@gmail.com

турированных системах. Так на примере решетки спин-поляризованных конденсатов было показано, что в присутствии индуцированного поляритон-поляритонным взаимодействием эффективного поля структура спектра возбуждений становится топологически нетривиальной, что приводит к образованию однонаправленных краевых состояний [15]. Однако описанный сценарий требует сохранения вырождения спиновых состояний в отсутствие поля, что подразумевает высокую чувствительность системы к внешним нарушающим симметрию факторам. Данные соображения обосновывают исследование возможности использования этой чувствительности для управления зонными топологическими инвариантами в поляритонных решетках.

В данной работе показано, что эффективное поле поляритонного конденсата может быть не только сонаправлено с внешним зеемановским полем, но и существенно превосходить его по величине. Сопутствующий этому эффект усиления зеемановского поля может быть также интерпретирован в терминах гигантского эффективного g -фактора. При этом эффект усиления максимален в окрестности критической точки, соответствующей бифуркации спинового состояния конденсата.

Рассматриваемая система представляет собой конденсат экситонных поляритонов, описываемый обобщенным диссипативным уравнением Гросса-Питаевского для двухкомпонентного параметра порядка: $\Psi = (\Psi_+, \Psi_-)^T$:

$$i\dot{\Psi}_{\pm} = -\frac{i}{2}(i\Delta + W - \Gamma - \eta N_{\text{pol}}) \Psi_{\pm} - \frac{1}{2}(\varepsilon + i\gamma) \Psi_{\mp} + \frac{1}{2}(\alpha_1 |\Psi_{\pm}|^2 + \alpha_2 |\Psi_{\mp}|^2) \Psi_{\pm}, \quad (1)$$

где компоненты $\Psi_{+(-)}$ соответствуют двум круговым поляризациям, правой и левой, Γ – скорость затухания поляритонов, W – скорость вынужденного рассеяния из резервуара в конденсат, η – коэффициент насыщения накачки, пропорционального полной населенности конденсата N_{pol} , ε и γ – расщепление энергий и коэффициентов затухания двух линейно поляризованных мод, и, наконец, $\alpha_{1(2)}$ – параметры взаимодействия поляритонов с сонаправленными и обратными круговыми поляризациями.

Руководствуясь подходом, предложенным в работе [9], мы описываем систему классическим псевдоспином $\mathbf{S} = \Psi^\dagger \boldsymbol{\sigma} \Psi / 2$, определенным через вектор Паули $\boldsymbol{\sigma}$. При этом величина S пропорциональна заселенности конденсата, тогда как направление вектора псевдоспина характеризует спиновую поляризацию. Легко заметить, что псевдоспин \mathbf{S} напрямую

связан с параметрами Стокса излучения, испускаемого микрорезонатором: $S = S_0$, $S_x = S_1$, $S_y = S_2$, $S_z = S_3$. Динамика компонент псевдоспина описывается системой уравнений:

$$\dot{S}_x = (W - \eta S - \Gamma)S_x - \gamma S - (\alpha S_z + \Delta)S_y, \quad (2a)$$

$$\dot{S}_y = (W - \eta S - \Gamma)S_y + \varepsilon S_z + (\alpha S_z + \Delta)S_x, \quad (2b)$$

$$\dot{S}_z = (W - \eta S - \Gamma)S_z - \varepsilon S_y. \quad (2c)$$

По аналогии с классическим спином в магнитном поле псевдоспин \mathbf{S} вращается вокруг оси z благодаря совместному действию зеемановского расщепления Δ во внешнем магнитном поле, приложенном нормально к плоскости микрорезонатора, и самоиндуцированного эффективного поля αS_z [6, 7]. Последнее пропорционально параметру взаимодействия $\alpha = \alpha_1 - \alpha_2 > 0$, который отличен от нуля ввиду сильной спиновой анизотропии поляритон-поляритонных взаимодействий.

Далее переходим к безразмерной форме системы (2):

$$\dot{s}_x = (p - s)s_x - gs - (as_z + \delta)s_y, \quad (3a)$$

$$\dot{s}_y = (p - s)s_y + s_z + (as_z + \delta)s_x, \quad (3b)$$

$$\dot{s}_z = (p - s)s_z - s_y, \quad (3c)$$

вводя эффективное расщепление $\delta = \Delta/\varepsilon$, безразмерное время $\tau = t\varepsilon$ и пару безразмерных параметров $a = \alpha/\eta$ и $g = \gamma/\varepsilon$. Аналогичным образом вводятся эффективная мощность накачки $p = (W - \Gamma)/\varepsilon$ и нормированный псевдоспин $\mathbf{s} = \eta\mathbf{S}/\varepsilon$.

В отсутствие внешнего приложенного поля $\delta = 0$ два линейно поляризованных ($s_z = s_y = 0$) тривиальных стационарных решения системы (3) описываются выражениями $s_{\pm}(p) = p \pm g$. Оба решения лежат на оси x . При этом $s_x = \mp s_{\pm}^{(0)}$. При $g > 0$ (верхняя по энергии поляритонная мода затухает быстрее нижней) s_- -состояние всегда динамически неустойчиво к малым возмущениям по Ляпунову. При этом более заселенное состояние s_+ напротив устойчиво при накачках ниже критической величины $p_c = (1 - ag + g^2)/a$, соответствующей критической заселенности конденсата $s_c = (g^2 + 1)/a$.

При $p = p_c$ состояние s_+ теряет устойчивость в бифуркации типа вилки, имеющей суперкритический характер при $a > g - g^{-1}$ и субкритический в обратном случае (см. бифуркационную диаграмму на рис. 1a). Смена устойчивости сопровождается появлением пары нетривиальных эллиптически поляризованных ($s_z \neq 0$) состояний с компонентами псевдоспина

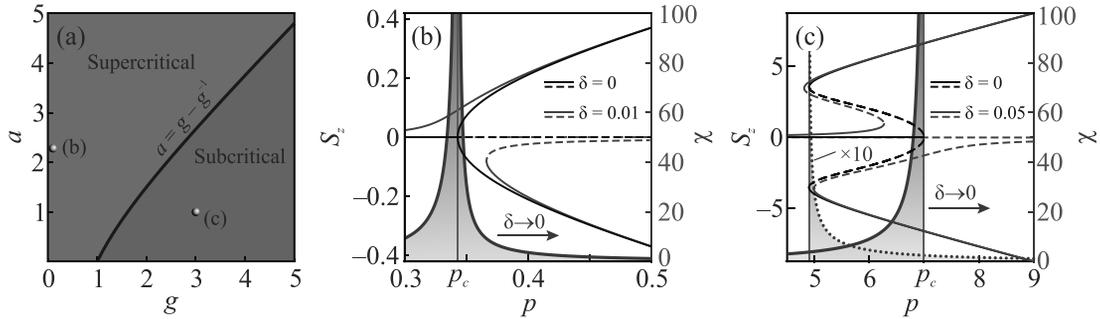


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Фазовая диаграмма спонтанной бифуркации типа вилки, нарушающей симметрию, при $\delta = 0$. (б) – Проекция псевдоспина s_z (левая ось) и восприимчивость χ (правая ось) в суперкритическом режиме при $g = 0.1$ и $a = 2.28$ [9]. Сплошные линии соответствуют устойчивым состояниям, а штриховые – динамически неустойчивым решениям. (с) – То же, что и на панели (б), но в субкритическом режиме при $g = 3$ и $a = 1$. Пунктирная синяя кривая соответствует усилению поля χ верхнего устойчивого эллиптически поляризованного состояния, которое возникает при бифуркации типа складки

$$s_x = (p - s)s/g, \quad s_y = (p - s)s_z, \quad (4a)$$

$$s_z = \pm \frac{s}{g} \sqrt{\frac{g^2 - (p - s)^2}{1 + (p - s)^2}}, \quad (4b)$$

и величиной s , определяемой положительным корнем квадратного уравнения

$$\left(\frac{a}{g} - 1\right) s^2 - \left(\frac{a}{g} - 2\right) ps - (p^2 + 1) = 0. \quad (5)$$

Заметим, что при $g < 0$ бифуркация нарушения симметрии не изменяет устойчивости s_{\pm} состояний. В этом режиме более населенное линейно поляризованное состояние s_- всюду остается единственным устойчивым решением. В дальнейшем мы остановимся на случае $g > 0$, который соответствует условиям эксперимента [9].

При описании влияния внешнего магнитного поля рассмотрим сначала предел слабого поля δ . В первом приближении стационарные решения приобретают линейную по δ поправку $\mathbf{s}^{(1)} = (s_x^{(1)}, s_y^{(1)}, s_z^{(1)})^T$:

$$\mathbf{s}^{(1)} = \delta \times \left[J(\mathbf{s}^{(0)}) \right]^{-1} (s_y^{(0)}, -s_x^{(0)}, 0)^T, \quad (6)$$

где $J(\mathbf{s}^{(0)})$ – матрица Якоби для системы (3), рассчитанная при невозмущенном стационарном состоянии $\mathbf{s}^{(0)}$.

В случае линейно-поляризованного стационарного решения s_+ , для которого $s_x^{(0)} = -(p + g)$, устойчивого при накачке ниже критической p_c , поправка (6) приводит к возникновению ненулевого эффективного поля $as_z^{(1)} = \delta s^{(0)} / (p_c - p)$. Таким образом, отклик конденсата на нарушение симметрии

можно охарактеризовать параметром усиления поля $\chi = as_z^{(1)} / \delta$ и эффективным g -фактором

$$g_{\text{eff}} = 1 + \chi = \frac{s_c}{p_c - p}, \quad (7)$$

определяющим частоту прецессии псевдоспина конденсата δg_{eff} согласно уравнениям (3).

Поскольку $g_{\text{eff}} > 0$ при $p < p_c$, индуцированное поле совпадает с внешним. Легко заметить, что выражение (7) расходится в критической точке аналогично поведению восприимчивости в теории Ландау для фазовых переходов второго рода, а также линейно связано с населенностью конденсата, см. рис. 1б. Более того, когда p стремится к p_c сверху, $p \rightarrow p_c^+$, параметр усиления поля χ , определяемый в этом случае откликом эллиптически поляризованных состояний (4), имеет аналогичное асимптотическое поведение. Однако важно отметить, что $g_{\text{eff}} > 0$ только для тех состояний, для которых самоиндуцированное поле сонаправлено с внешним $s_z^{(0)} / \delta > 0$ (верхнее эллиптически поляризованное состояние на рис. 1б). В противном случае реальное зеемановское поле направлено обратно эффективному, что приводит к уменьшению суммарного поля. Далее мы будем рассматривать только состояния, соответствующие сонаправленной конфигурации полей. В суперкритическом случае отклик таких состояний расходится как $s_c / (2|p - p_c|)$ вблизи $p = p_c$. Однако в субкритическом режиме динамически неустойчивые состояния, возникающие в результате бифуркации вилки, обладают отрицательным откликом $as_z^{(1)} / \delta < 0$, соответствующим экранированию внешнего поля, – см. красные пунктирные линии на рис. 1с.

На рисунке 1б и с показано, что вблизи критической точки усиление магнитного поля достигает

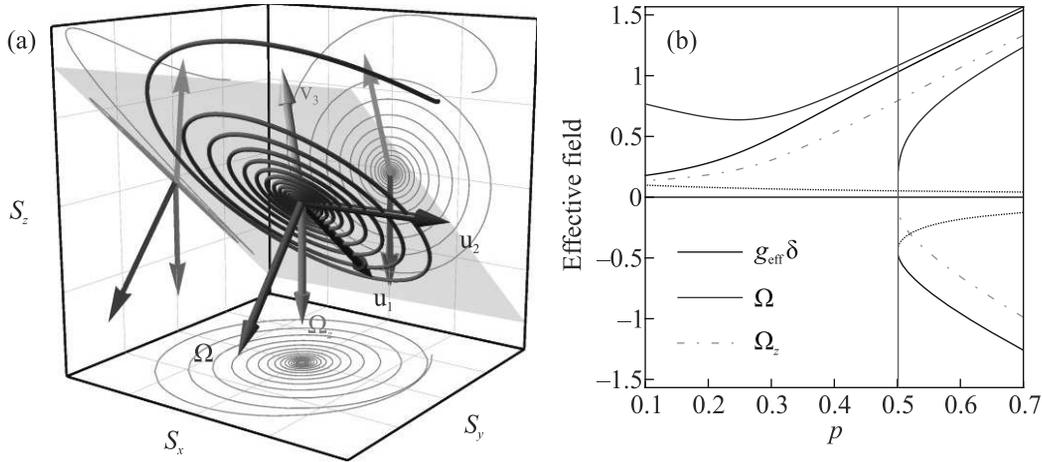


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Схематичное изображение динамики боголюбовского возбуждения $\mathbf{s}(t)$ – синяя линия в пространстве псевдоспина. Точка, к которой закручивается спираль, соответствует динамически устойчивому стационарному состоянию \mathbf{s} . Бледно-оранжевая плоскость содержит векторы $\mathbf{u}_{1,2}$, а вектор $\mathbf{\Omega}$ является ее нормалью. (б) – Сравнение определений для эффективного магнитного поля, действующего на боголюбовское возбуждение над устойчивым состоянием при $\delta = 0.1$, $a = 2.28$ и $g = 0.1$. Зависимость частоты прецессии Ω и эффективного магнитного поля Ω_z , определенных на панели (а), от мощности накачки. Вертикальная серая линия соответствует положению седло-узловой бифуркации (см. рис. 1с)

величин порядка ста. Одно из проявлений эффекта усиления поля может быть обнаружено при исследовании топологических свойств боголюбовских возбуждений в поляритонных решетках [15, 16]. Обычно для возникновения нетривиальных топологических фаз требуется сильное магнитное поле – до 5 Тл [4]. Однако возникающие в конденсате элементарные возбуждения также подвержены действию эффективного поля, создаваемого эллиптически поляризованным состоянием, которое может значительно превышать внешнее по своей величине. Чтобы оценить эффективность предложенного принципа усиления поля для управления топологическими свойствами боголонов, рассмотрим поведение элементарных возбуждений, возникающих в одиночном поляритонном конденсате. Пусть псевдоспин, находящийся в стационарном состоянии во внешнем магнитном поле δ , получает слабое возмущение. Установим, как оценить величину эффективного магнитного поля, действующего на такое возбуждение.

Динамика возмущения \mathbf{s} стационарного состояния \mathbf{s} определяется линеаризованной системой (3), т.е. соответствующей ей матрицей Якоби $\dot{\mathbf{s}} = J(\mathbf{s})\mathbf{s}$. Естественно ожидать, что возмущение эволюционирует в том же эффективном поле, что и сам псевдоспин, $g_{\text{eff}}\delta = as_z^{(0)} + \delta$. Однако из-за неэрмитовости матрицы J поведение слабого возмущения сильно отличается от динамики псевдоспина.

Динамика $\mathbf{s}(t)$ определяется собственными значениями λ_i и собственными векторами \mathbf{v}_i операторо-

ра $J(\mathbf{s})$. Поскольку матрица Якоби системы (3) вещественна, она имеет либо три действительных, либо одно вещественное и два комплексно-сопряженных собственных значения. Нас интересует последний случай, когда динамика возмущения описывается выражением

$$\mathbf{s}(t) = C_1 e^{-\gamma_p t} [\mathbf{u}_1 \cos(\Omega t + \varphi) - \mathbf{u}_2 \sin(\Omega t + \varphi)] + C_2 \mathbf{v}_3 e^{-\Gamma_p t}. \quad (8)$$

Здесь $\mathbf{v}_1 = \mathbf{u}_1 + i\mathbf{u}_2$ – собственный вектор, соответствующий любому из комплексно-сопряженных собственных значений $\lambda_{1,2} = -\gamma_p \pm i\Omega$, \mathbf{v}_3 – собственный вектор для полностью вещественного $\lambda_3 = -\Gamma_p$. Коэффициенты $C_{1,2}$ и φ действительны.

Как показано на рис. 2а, эволюция возбуждения, описываемая выражением (8), соответствует спиральному вращению с частотой Ω в плоскости, задаваемой векторами $\mathbf{u}_{1,2}$. Нормаль $\mathbf{n} \perp (\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2)$ задает направление эффективного магнитного поля $\mathbf{\Omega} = \mathbf{n}\Omega$, z -компонента которого Ω_z ответственна за нарушение симметрии обращения времени для боголюбовских возбуждений. При этом в отличие от задачи о классическом спине в магнитном поле ось \mathbf{v}_3 , вдоль которой происходит релаксация возбуждения, оказывается повернута относительно $\mathbf{\Omega}$.

В общем случае $\mathbf{\Omega}$ отличается от эффективного поля $g_{\text{eff}}\delta$, действующего на сам псевдоспин. Однако в пределе сильной накачки в динамике возбуждения доминирует вызванное взаимодействием поле $as_z^{(0)}$, откуда следует $\Omega_z \approx g_{\text{eff}}\delta$. Тем не менее, вблизи

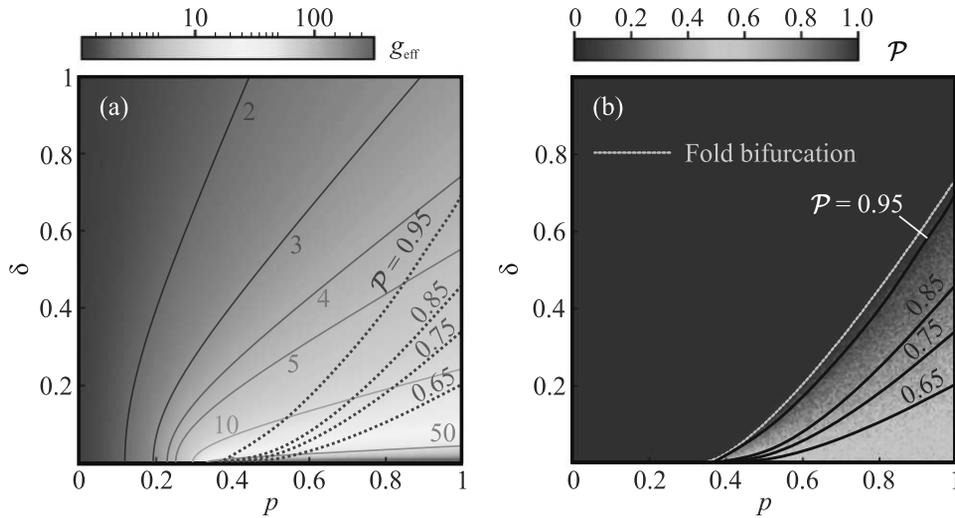


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Эффективный g -фактор как функция накачки p и внешнего магнитного (зеemanовского) поля δ . Предполагается, что конденсат находится в устойчивом состоянии с $as_z/\delta > 0$. (б) – Вероятность \mathcal{P} возбуждения состояния, для которого эффективное поле сонаправлено внешнему. Бистабильный режим с $\mathcal{P} < 1$ возникает в правом нижнем углу на плоскости параметров (p, δ) . Штрих-пунктирная линия соответствует положению седло-узловой бифуркации, в результате которой образуется устойчивое состояние с противоположно направленным эффективным полем. Снижение вероятности \mathcal{P} при уменьшении δ проиллюстрировано серыми линиями, также продублированными на панели (а). Каждая точка на графике получена путем прямого численного решения системы (3) со случайными начальными условиями и последующим усреднением по 200 реализациям

точки бифуркации в режиме гигантского усиления внешнего поля такая простая асимптотика не справедлива.

На рисунке 2б для сравнения приведены значения Ω_z и $g_{\text{eff}}\delta$ в области седло-узловой бифуркации возбуждений. Несмотря на то, что поведение псевдоспина \mathbf{s} существенно отличается от динамики боголюбовских возбуждений \mathbf{s} , соответствующие оценки для величины эффективного поля оказываются близки. Более того, расхождение в оценках быстро исчезает с ростом магнитного поля δ .

В работе [15] были описаны условия возникновения топологической щели в спектре боголюбовских возбуждений в решетке связанных поляритонных конденсатов. Если все конденсаты в решетке обладают одинаковой эллиптической поляризацией, симметрия обращения времени для боголонов нарушается подобно тому, как если бы в системе присутствовало однородное магнитное (зеemanовское) поле. При этом в операторе эволюции боголонов возникают эрмитовы диагональные слагаемые, ответственные за открытие топологической щели, которые пропорциональны как степени эллиптической поляризации, так и силе спин-анизотропного межчастичного взаимодействия. В результате соответствующее эффективное зеemanовское поле оказывается идентично самоиндуцированному полю as_z в уравнениях (3).

Для оценки эффекта усиления поля за пределами теории возмущений устойчивые стационарные решения системы (3) находятся численно. На рисунке 3а показано значение g -фактора $g_{\text{eff}} = (as_z + \delta)/\delta$ найденных решений на плоскости параметров (δ, p) . Даже вдали от области расходимости при $\delta \rightarrow 0$ эффективное магнитное поле может превосходить реальное на порядок.

Максимальных значений величина g_{eff} достигает в слабом магнитном поле. Однако в этом режиме существуют два устойчивых решения с противоположно направленными, но близкими по абсолютной величине значениями эффективного поля. При нерезонансной накачке в надкритическом режиме $p > p_c$ знак эллиптической поляризации конденсата выбирается спонтанным образом. В частности, в отсутствие поля $\delta \rightarrow 0$ состояния с нарушенной симметрией (4) возбуждаются с равной вероятностью [9].

Однако в конечном поле δ ввиду нарушения симметрии этот баланс смещается в сторону состояния, для которого эффективное магнитное поле сонаправлено с внешним, что соответствует положительному g_{eff} . В конфигурации, изображенной на рис. 1с, это верхнее состояние с $s_z > 0$.

Вероятность \mathcal{P} реализации состояния с сонаправленной ориентацией эффективного и реального полей представлена на рис. 3б в пространстве парамет-

ров p и δ . В области с $\mathcal{P} = 1$ существует лишь одно устойчивое решение. В этом режиме эффективный g -фактор g_{eff} принимает сравнительно небольшие значения вдали от области слабого поля δ – порядка около нескольких единиц, см. рис. 3а. При накачке выше критической (штрих-пунктирная линия), соответствующей бифуркации складки, изображенной на рис. 1с, вероятность плавно снижается и стремится к $\mathcal{P} = 0,5$ при $\delta \rightarrow 0$ или $p \rightarrow \infty$. Таким образом, оптимальный режим, при котором значительное усиление поля сочетается с высокой предсказуемостью направления намагничивания конденсата, достигается в непосредственной близости к точки бифуркации.

В заключение подытожим полученные результаты. Неравновесный бозонный конденсат экситонных поляритонов может самопроизвольно создавать сильные эффективные магнитные поля из-за явления спиновой бифуркации [9]. Уже в первых теоретических работах [6, 7] это поле связывали с так называемой самоиндуцированной ларморовской прецессией вектора Стокса излучения конденсата. В данной работе продемонстрировано, что это явление можно контролировать внешним постоянным магнитным полем, что наиболее ярко проявляется для боголюбовских возбуждений [15]. Неравновесный конденсат очень чувствителен к внешнему магнитному полю, что приводит к значительному его усилению. Эффект усиления может быть охарактеризован эффективным g -фактором, который может достигать величин порядка сотни и сильно зависит от интенсивности накачки и величины внешнего поля.

Ввиду того, что выбор знака эллиптической поляризации конденсата, а следовательно и направления эффективного магнитного поля, носит вероятностный характер, оптимальные результаты могут быть получены при интенсивности накачки, близкой к седло-узловой бифуркации. Вдали от точки бифуркации и, в особенности, в режиме сильно выраженной спиновой мультистабильности решений, поляритонный конденсат может быть дестабилизирован из-за присутствия спиновых флуктуации при достаточно высоких температурах [17, 18].

Кроме того, необходимо отметить взаимосвязь поведения эффективного поля с предсказаниями теории Ландау фазовых переходов второго рода. Магнитная восприимчивость конденсата расходится вблизи критической точки, соответствующей спонтанному возникновению эллиптической поляризации $s_z \neq 0$. При этом для состояний с нарушенной симметрией в окрестности $p = p_c$ скорость расхождения восприимчивости оказывается в два раза ниже.

Полученные результаты могут быть использованы при исследовании топологических свойств боголюбовских возбуждений в решетках диссипативных поляритонных конденсатов.

Финансирование работы. Работа И. Честнова (анализ неэрмитовой динамики, написание текста) поддержана грантом Российского научного фонда # 22-72-00061. Работа А. Налитова и А. Бочина (аналитические и численные расчеты, написание текста) поддержана Российским научным фондом по гранту # 22-12-00144.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. M. Born, E. Wolf, and A. B. Bhatia, *Principles of optics*, Cambridge University Press, Cambridge (2019).
2. F. D. M. Haldane and S. Raghu, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 1 (2008).
3. T. Ozawa, H. M. Price, A. Amo, N. Goldman, M. Hafezi, L. Lu, M. C. Rechtsman, D. Schuster, J. Simon, O. Zilberberg, and I. Carusotto, *Rev. Mod. Phys.* **91**, 015006 (2019).
4. S. Klemmt, T. H. Harder, O. A. Egorov, K. Winkler, R. Ge, M. A. Bandres, M. Emmerling, L. Worschech, T. C. H. Liew, M. Segev, C. Schneider, and S. Höfling, *Nature* **562**, 552 (2018).
5. T. P. Lyons, D. J. Gillard, C. Leblan, J. Puebla, D. D. Solnyshkov, L. Klompmaker, I. A. Akimov, C. Louca, P. Muduli, A. Genco, M. Bayer, Y. Otani, G. Malpuech, and A. I. Tartakovskii, *Nat. Photon.* **16**, 632 (2022).
6. I. Shelykh, G. Malpuech, K. V. Kavokin, A. V. Kavokin, and P. Bigenwald, *Phys. Rev. B* **70**, 115301 (2004).
7. F. P. Laussy, I. A. Shelykh, G. Malpuech, and A. Kavokin, *Phys. Rev. B* **73**, 035315 (2006).
8. Y. G. Rubo, A. Kavokin, and I. Shelykh, *Phys. Lett. A* **358**, 227 (2006).
9. H. Ohadi, A. Dreismann, Y. Rubo, F. Pinsker, Y. del Valle-Inclan Redondo, S. I. Tsintzos, Z. Hatzopoulos, P. G. Savvidis, and J. J. Baumberg, *Phys. Rev. X* **5**, 031002 (2015).
10. 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).
11. Król, R. Mirek, D. Stephan, K. Lekenta, J.-G. Rousset, W. Pacuski, A. V. Kavokin, M. Matuszewski, J. Szczytko, and B. Piętko, *Phys. Rev. B* **99**, 115318 (2019).
12. K. Sawicki, D. Dovzhenko, Y. Wang, T. Cookson, H. Sigurdsson, and P. G. Lagoudakis, *Phys. Rev. B* **109**, 125307 (2024).

13. C. Whittaker, T. Dowling, A. Nalitov, A.V. Yulin, B. Royall, E. Clarke, M.S. Skolnick, I.A. Shelykh, and D.N. Krizhanovskii, *Nat. Photonics* **15**, 193 (2021).
14. M.C. Rechtsman, J.M. Zeuner, Y. Plotnik, Y. Lumer, D. Podolsky, F. Dreisow, S. Nolte, M. Segev, and A. Szameit, *Nature* **496**, 196 (2013).
15. H. Sigurdsson, Y.S. Krivosenko, I.V. Iorsh, I.A. Shelykh, and A.V. Nalitov, *Phys. Rev. B* **100**, 235444 (2019).
16. S.L. Harrison, A. Nalitov, P.G. Lagoudakis, and H. Sigurðsson, *Opt. Mater. Express* **13**, 2550 (2023).
17. M.M. Glazov, M.A. Semina, E.Ya. Sherman, and A.V. Kavokin, *Phys. Rev. B* **88**, 041309 (2013).
18. I.I. Ryzhov, M.M. Glazov, A.V. Kavokin, G.G. Kozlov, M. Aßmann, P. Tsotsis, Z. Hatzopoulos, P.G. Savvidis, M. Bayer, and V.S. Zapasskii, *Phys. Rev. B* **93**, 241307 (2016).

Влияние ядерных квантовых эффектов на колебательный спектр и структуру эндофуллерена $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$

Д. О. Потапов⁺¹⁾, Н. Д. Кондратюк^{+*×}

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

^{*}Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

[×]Национальный исследовательский университет Высшая школа экономики, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 апреля 2024 г.

После переработки 3 мая 2024 г.

Принята к публикации 5 мая 2024 г.

Структурные и динамические свойства молекулы воды претерпевают изменения в случае ее нахождения внутри фуллерена ($\text{H}_2\text{O}@C_{60}$). В данной работе был впервые применен метод атомистического моделирования с учетом ядерных квантовых эффектов для описания низкотемпературной динамики и изменения структуры молекулы воды, заключенной в фуллерене при 5 К. Для расчета взаимодействий в данной системе используется машинно-обученный потенциал на траекториях из DFT. Нулевые колебания и делокализация ядер учитываются с помощью фейнмановских интегралов по траекториям.

DOI: 10.31857/S123456782412005X, EDN: NBBXNG

1. Введение. Эндофуллеренами называют соединения, в которых атомы или малые молекулы находятся в полости фуллеренов C_{60} или C_{70} . Полость фуллерена предоставляет возможность изучения необычных свойств инкапсулированных веществ. Эндофуллерены привлекают к себе большое внимание благодаря своим уникальным электронным, магнитным и оптическим свойствам, являются перспективными кандидатами в качестве кубитов [1], молекулярных устройств хранения памяти [2], а также имеют потенциальные применения в биологии и медицине [3–5]. Одним из наиболее хорошо изученных примеров является эндофуллерен с водой в качестве “гостевой” молекулы $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$. Визуализация представлена на рис. 1.

Кристалл $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ является примером редкой физической системы, в которой молекулы воды находятся в конденсированном состоянии в отсутствие системы водородных связей между молекулами. Эндофуллерен $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ удалось впервые синтезировать Куротоби и Мурато [6]. Синтез эндофуллерена с крупной молекулой внутри стал возможен благодаря методу “молекулярной хирургии”, который состоит из серии химических реакций по открытию клетки C_{60} , в которую можно внедрить молекулу, с последующим закрытием клетки, в которой “гостевая” молекула оказывается внутри. С момента своего синтеза $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ выступал в качестве материала для исследова-

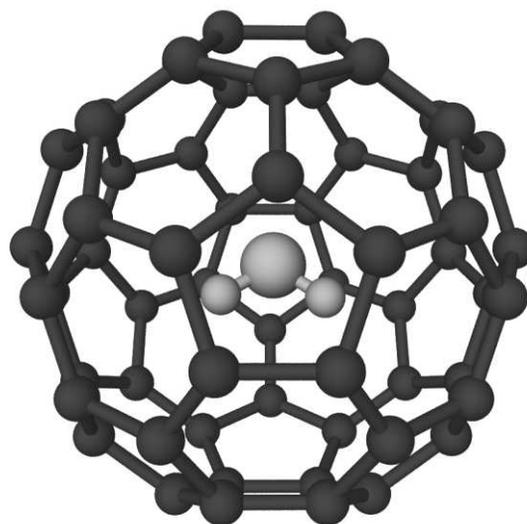


Рис. 1. (Цветной онлайн) Эндофуллерен $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$. Снимок вычислительной ячейки, для которой проведены расчеты структуры и динамических свойств.

ования орто-пара конверсии воды методами ядерного магнитного резонанса [7, 8], инфракрасной [8, 9] и терагерцовой [10, 11] спектроскопии. Помимо этого, в литературе обсуждается возможность реализации в кристалле эндофуллерена ферроэлектрической фазы [12, 13], и связанного с этим вопроса экранирования дипольного момента воды [14–17]. Дополнитель-

¹⁾e-mail: potapov.do@phystech.edu

ным вопросом является природа вращения молекулы воды внутри фуллера – является ли она свободной или же ограничена локальными минимумами, создаваемыми потенциалом C_{60} [10, 17]?

Первые вычислительные работы по моделированию эндофуллеренов [18] использовали классическую молекулярную динамику с эмпирическим парным потенциалом для исследования трансляционного и вращательного движения малых молекул внутри фуллера. Доступные современные вычислительные мощности дают возможность исследовать взаимодействие гостевых молекул с клеткой фуллера с использованием первопринципных методов. Движение H_2O внутри C_{60} было characterized Бухером в [17] как свободное вращение: отмечено быстрое затухание вращательной автокорреляционной функции молекулы воды внутри фуллера при $T = 100$ К, что гораздо ниже температуры плавления льда. Внутри фуллера молекула воды проявляет небольшое увеличение длины связи О-Н и уменьшение угла $\angle HON$ [20, 19]. В соответствии с растяжением связи ОН, колебательные частоты воды смещаются в красную область в ограниченном объеме.

В методе теории функционала электронной плотности (DFT), применяемом для расчета свойств материалов [21–23], несмотря на использование квантового описания электронной подсистемы, ядра атомов представляются материальными точками. Однако, пренебрежение ядерными квантовыми эффектами может быть существенным источником ошибки в случае, если система содержит легкие ядра, особенно при низких температурах.

За предыдущие два десятилетия активно развивался метод молекулярной динамики на интегралах по траекториям (PIMD) для учета квантовых эффектов ядер [24]. Это семейство методов основано на изоморфизме между приближенной (из-за конечного числа звеньев P) квантовой статсуммой для N частиц и классической статсуммой для $N \cdot P$ частиц со следующим гамильтонианом [25]:

$$H_q = \sum_{i=1}^P \left[\sum_{j=1}^N \frac{[\mathbf{p}_j^i]^2}{2m_j} + \sum_{j=1}^N \frac{1}{2} m_j \omega_P^2 (\mathbf{r}_j^i - \mathbf{r}_j^{i+1})^2 + \frac{V^i}{P} \right],$$

где P – число звеньев (слоев разложения Троттера) в квантовом полимере, \mathbf{p}^i и m_j – фиктивный импульс и масса частицы в методе зацикленного полимера с термостатом (TRPMD), $\omega_P = \sqrt{P}/\beta\hbar$, $\beta = 1/k_B T$, а $V^i = V(\mathbf{r}_1^i, \dots, \mathbf{r}_N^i)$ – потенциал взаимодействия между звеньями с одинаковым i . Таким образом, квантовое описание атома основывается на моделировании циклического полимера, состоящего из взаимо-

действующих образов. Взаимодействие $V(\mathbf{r}_1^i, \dots, \mathbf{r}_N^i)$ может рассчитываться при помощи теории функционала электронной плотности или используя классический потенциал. Использование TRPMD увеличивает в P раз вычислительную сложность расчетов по сравнению с классической МД или DFT.

TRPMD активно применяется для моделирования колебательных спектров и радиальных функций распределения для систем, содержащих молекулы воды [26–28]. Однако, использование TRPMD для точного моделирования колебательных спектров должно быть сопряжено с реализацией продвинутых схем термостатирования для устранения нефизичного смягчения колебательных пиков и резонансов мод циклического полимера с колебаниями в молекуле [27, 29].

Вычислительные работы по исследованию динамики молекулы воды внутри фуллера вынуждены были использовать в моделировании температуры выше $T > 50$ К из-за невозможности описания возникающих при более низких температурах квантовых эффектов, связанных с движением ядер [17, 30]. Для того чтобы описать влияние квантовых эффектов на движение ядер при низких температурах в данной работе было решено впервые применить метод молекулярно-динамического моделирования на интегралах по траекториям для системы эндофуллера $H_2O@C_{60}$.

2. Методы и подходы для описания эндофуллера. Нормальные моды колебаний для системы атомов могут быть получены в гармоническом приближении как собственные значения гессиана энергии для координат атомов \mathbf{r}_0 , соответствующих локальному минимуму энергии:

$$H_{ij} = \left[\frac{\partial^2 E}{\partial x_i \partial x_j} \right]_{\mathbf{x}=\mathbf{r}_0}.$$

Были проведены расчеты оптимизации геометрии эндофуллера методом теории функционала электронной плотности в пакете VASP [31] с использованием обменно-корреляционного функционала PBE [32] с поправкой Grimme-D3 [33] для учета дисперсионных взаимодействий. Все расчеты выполнялись в гамма-точке в базисе плоских волн с энергией обрезки в 700 эВ. Оптимизированная структура подавалась на вход пакета Phonopy [34] для создания смещений атомов с целью построения матрицы Гессе из энергий, посчитанных в DFT.

Анализ нормальных мод не учитывает ангармонизм и позволяет исследовать колебательные моды только возле одной из многих возможных конфигураций, соответствующих локальному миниму-

му энергии. Альтернативным подходом для анализа спектра колебаний может выступать Фурье-образ автокоррелятора скорости $C_{vv}(t) = \langle \mathbf{v}(0)\mathbf{v}(t) \rangle$ или дипольного момента. Однако, для снижения шумов в автокорреляторе нужно рассчитать длинную траекторию [35], что оказывается существенной проблемой при использовании метода DFT.

Машиннообученные потенциалы на основе сил и энергий из расчетов DFT могут выступать в качестве инструмента для увеличения производительности расчетов [36–38]. Для описания взаимодействий в системе $H_2O@C_{60}$ был обучен потенциал МТР [39] на основе конфигураций из короткой траектории (20 пс), посчитанной в VASP с NVT-ансамблем при $T = 1000$ К для лучшей выборки. Впоследствии, обучающая выборка потенциала также дополнялась за счет активного обучения. В подходе активного обучения из траекторий МД с предобученным потенциалом отбираются конфигурации, для которых наблюдается наибольшая неопределенность в предсказании потенциала [39]. Для данных конфигураций проводится *ab initio* расчет энергий и сил, они добавляются в обучающую выборку и проводится дообучение потенциала. Среднеквадратичная ошибка предсказания энергии и сил потенциалом МТР составила 1.3 мэВ/атом и 0.076 эВ/Å соответственно. Мы описываем одиночный эндофуллерен, так как потенциалы типа МТР не могут учитывать дальнедействующие невалентные взаимодействия, появляющиеся в кристалле. По предварительным оценкам, соседние эндофуллерены в структуре кристалла не вносят значимый вклад в рассчитываемые свойства.

После подготовки потенциала были проведены расчеты классической МД с потенциалом МТР с использованием NVT-термостата Нозе–Гувера при температуре 5 К в пакете LAMMPS [40]. Расчеты проводились для кубической ячейки со стороной 10 Å, содержащей один эндофуллерен, без периодических граничных условий. Длина траектории составила 10 нс. Полученные спектры $\tilde{C}_{vv}(\omega)$ автокоррелятора скорости приведены на рис. 2.

Известно, что ядерные квантовые эффекты оказывают существенное влияние на динамику в системах, содержащих молекулы воды, вплоть до комнатных температур [24]. В связи с этим, в данной работе также были проведены расчеты системы эндофуллера с водой с применением метода молекулярной динамики на интегралах по траекториям для учета ядерных квантовых эффектов. Была выбрана реализация TRPMD в рамках пакета i-PI [41] с использованием интерфейса LAMMPS для расчета энергий и сил межатомного взаимодействия с обученным

потенциалом взаимодействия МТР. Для ускорения оценки распределения конформаций в фазовом пространстве использовалась продвинутая схема термостатирования PILE-G [28] с температурой 5 К. Каждый атом был представлен 64 звеньями квантового полимера. Получение квантово-динамических корреляционных функций из траекторий в мнимом времени подробно описано в [42]. Здесь же опишем кратко проведенную процедуру.

TRPMD при усреднении по звеньям позволяет получить Кубо-преобразованную автокорреляционную функцию скорости $K_{vv}(t)$ в мнимом времени. Применяв преобразование Фурье к $K_{vv}(t) \rightarrow \tilde{K}_{vv}(\omega)$, можно перейти к Фурье-образу квантовой автокорреляционной функции в реальном времени [25]:

$$\tilde{C}_{vv}(\omega) = \frac{\beta\hbar\omega}{1 - \exp\{-\beta\hbar\omega\}} \tilde{K}_{vv}(\omega), \quad \beta = \frac{1}{kT}.$$

3. Колебательный спектр молекулы воды.

Проведено сравнение колебательных спектров, посчитанных из классической МД, анализа нормальных мод и с учетом ядерных квантовых эффектов (TRPMD). Полученные вышеперечисленными методами спектры приведены на рис. 2 синим, зеленым и красным цветами соответственно.

Спектр колебаний связей ОН и угла \angle НОН (в центре и справа на рис. 2), рассчитанный из TRPMD, обладает значительным уширением по сравнению с классической МД. Для частот, соответствующих колебаниям длины связи молекулы воды, наблюдается широкая линия в спектре, образующаяся в результате наложения пиков антисимметричной и симметричной моды. Данное уширение также наблюдалось в предыдущих работах по TRPMD для воды [27] и связано с эффектами делокализации атомов водорода при низких температурах. В классической МД наблюдаются отдельно различимые пики для симметричной и антисимметричной моды колебаний на 3702 и 3788 см^{-1} соответственно; для колебания угла \angle НОН на 1581 см^{-1} . Пики смещены в область более низких частот относительно спектра, полученного из анализа нормальных мод, что может быть обусловлено температурными и ангармоническими эффектами, которые позволяют наблюдать динамические расчеты. В эксперименте [9] для эндофуллера $H_2O@C_{60}$ при $T = 5$ К были измерены частоты чистых колебательных переходов, которые составили 1570 см^{-1} для угла \angle НОН и 3573 см^{-1} для связи ОН. Таким образом используемая модель хорошо воспроизводит колебания угла \angle НОН и недостаточно точно предсказывает частоту растяжения связи ОН. Частоты колебаний свободной молекулы, посчи-

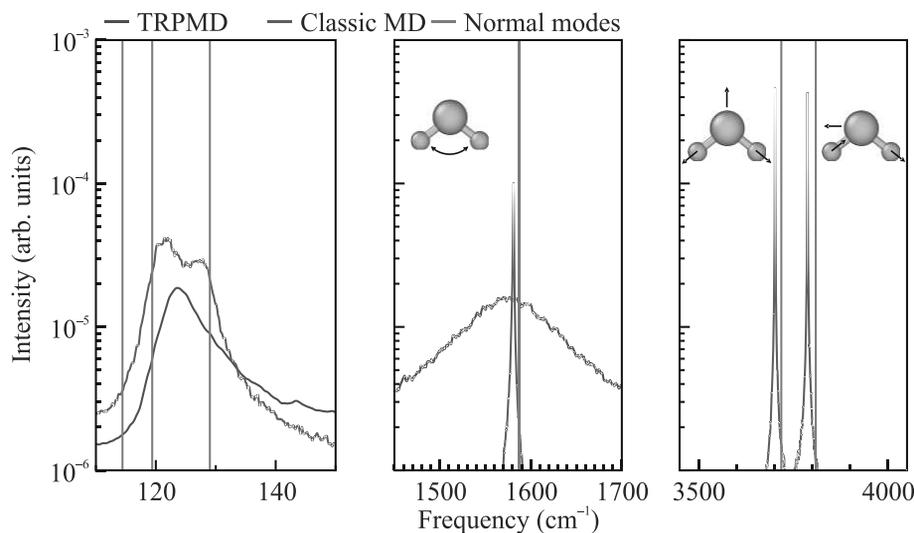


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сравнение колебательного спектра для молекулы воды внутри C_{60} , полученного из траекторий классической МД, TRPMD с машиннообученным потенциалом и анализа нормальных мод из DFT. Расчеты МД и TRPMD выполнены при $T = 5$ К. Слева: трансляционные колебания молекулы воды внутри замкнутого объема фуллерена; посередине: колебания угла $\angle\text{HOH}$; справа: колебания ОН связи

танные из анализа нормальных мод на силах из DFT, равны 1598 , 3722 и 3829 cm^{-1} . Наблюдаемый красный сдвиг частот колебаний длины связи инкапсулированной воды по сравнению со свободной молекулой находится в согласии с экспериментом [9], а также с предыдущими расчетами методом DFT и теорией возмущения Меллера–Плессе (MP2) [30, 43].

Все три метода согласованно воспроизводят трансляционные колебания молекулы воды внутри замкнутого объема C_{60} (рис. 2 слева). Расчет классической МД, в отличие от TRPMD, разделяет два пика, наблюдаемых в экспериментальном спектре трансляционных переходов на 110 cm^{-1} [11, 9], но со сдвигом в область более высоких частот на 10 cm^{-1} . Голубой сдвиг частот, соответствующих трансляционной моде, по сравнению с экспериментом может свидетельствовать о том, что DFT переоценивает жесткость потенциала взаимодействия молекулы воды с C_{60} .

4. Вращение молекулы воды. Для эндофуллерена $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ в литературе обсуждается вопрос, является ли вращение воды свободным или же существенно ограничено клеткой фуллерена [10, 17]. Для того чтобы детальнее исследовать влияние ограниченного объема фуллерена на вращательное движение молекулы воды, мы приводим проекции динамики диполя молекулы воды на плоскость XY на рис. 3 слева при 5 К, и автокорреляционные функции дипольного момента молекулы воды, полученные из расчетов МД и TRPMD при 5 и 100 К на

рис. 3 справа. Дипольный момент \mathbf{p} молекулы оценивался как полусумма векторов, проведенных от атома кислорода до каждого из атомов водорода $\mathbf{p} = (\overline{OH_1} + \overline{OH_2})/2$.

В случае классической МД (отражена синим на рис. 3 слева), проекция дипольного момента на плоскость XY изменяется более плавно и скоррелировано, в сравнении с динамикой при учете квантовых эффектов ядер (отражена красным). В TRPMD за 1 пс траектория движения проекции диполя более хаотична и проходит большее количество значений.

Из предположения, что автокоррелятор на начальном этапе затухает по экспоненциальному закону $\langle \mathbf{p}(0) \cdot \mathbf{p}(t) \rangle = e^{-t/\tau_r}$ [44], можно оценить характерное время вращательной релаксации τ_r . Были проведены дополнительные расчеты при 100 К в классической МД и TRPMD для того, чтобы оценить температурную зависимость времени вращательной релаксации. Полученные из траектории классической МД времена вращательной релаксации равняются 27 пс и 52 фс для 5 и 100 К соответственно. Таким образом, движение воды внутри C_{60} зависит от температуры и переходит от свободного вращения к ограниченному при уменьшении температуры от 100 к 5 К.

Для оценки вклада квантовых ядерных эффектов во вращательное движение молекулы воды, аналогичные автокорреляторы были получены из траекторий TRPMD. Они подтверждают сильную температурную зависимость вращения молекулы воды, однако вращение в TRPMD обладает значительно

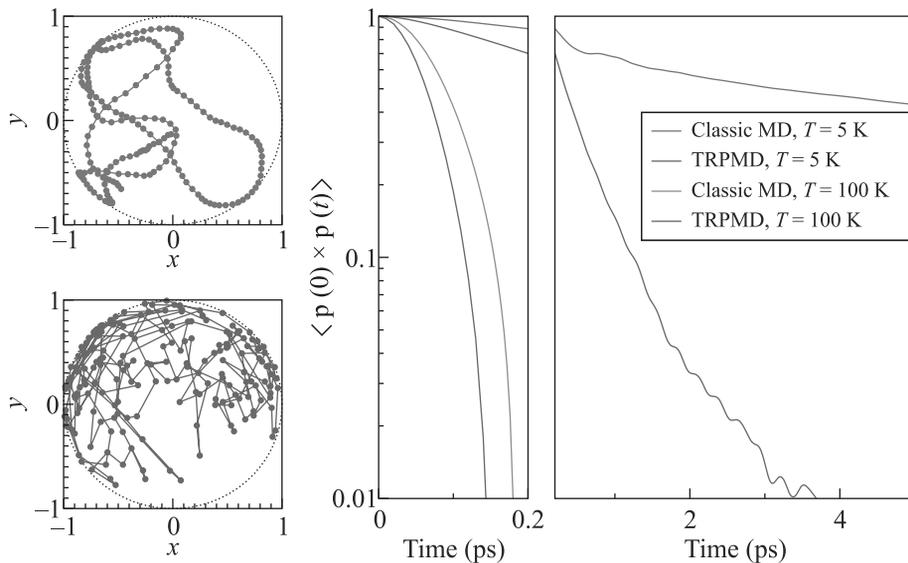


Рис. 3. (Цветной онлайн) Слева: Проекция динамики диполя в течение 1 пс при 5 К на плоскость XY для молекулы воды из классической МД (синий) и с учетом ядерных квантовых эффектов (TRPMD) (красный). По центру и справа: Временная зависимость автокорреляционной функции дипольного момента воды для траекторий из классической МД и из TRPMD при 5 и 100 К

меньшим временем релаксации ($\tau_r = 1$ пс при 5 К) по сравнению с результатами классической МД. В работе [10] методом терагерцовой спектроскопии было измерено время вращательной релаксации, которое составило 3.8 пс при 6 К и 2 пс при 90 К. Результаты TRPMD по времени вращательной релаксации при 5 К совпадают по порядку с экспериментом.

5. Влияние ограниченного объема на структуру молекулы. Длина связи ОН содержит важную структурную информацию об устройстве молекулы на квантовом уровне. Было проведено сравнение распределения вероятности длины ОН связи для молекулы воды внутри C_{60} , посчитанной из TRPMD и классической МД с машиннообученным потенциалом на рис. 4. Для траектории из TRPMD наблюдается более широкое распределение по длине связи по сравнению с классической МД, связанное с эффектами делокализации. На рисунке 4 также приведено распределение по длинам связи в жидкой воде из расчетов TRPMD [45]. Средняя длина связи уменьшается для воды внутри C_{60} из-за наличия ограниченного объема. В работе [45] также пронаблюдали похожий эффект для воды внутри углеродной нанотрубки.

6. Заключение. В настоящей работе были исследованы структурные и динамические свойства молекулы воды в эндофуллере $H_2O@C_{60}$. Для ускорения расчетов подготовлен потенциал типа МТР, обученный на квантово-механических траекториях.

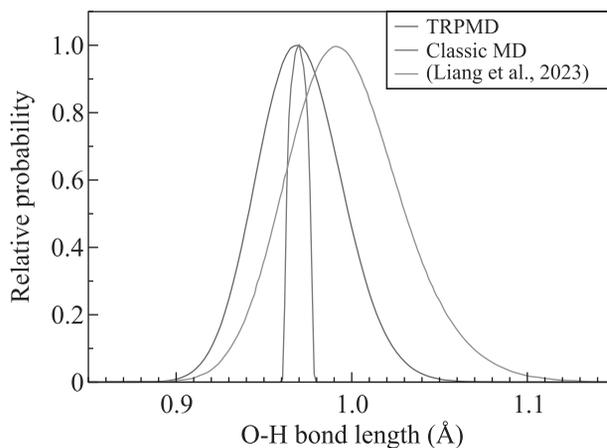


Рис. 4. (Цветной онлайн) Распределения длины ОН связи для молекулы воды внутри C_{60} , полученные из траекторий классической МД и с учетом ядерных квантовых эффектов (TRPMD). Зеленой линией приведено распределение длины связи, полученное из расчетов TRPMD для молекулы воды в жидкости из [45]

Рассмотрено влияние ядерных квантовых эффектов на колебательный спектр, время вращательной релаксации и структуру молекулы воды.

1. Учет ядерных квантовых эффектов в TRPMD приводит к уширению колебательных пиков, связанных с углом $\angle\text{НОН}$ (1581 см^{-1}) и связи ОН (3788 см^{-1}) в спектре молекулы воды, заключенной в C_{60} . Для колебания связи ОН вместо двух отдель-

ных пиков, наблюдаемых в классическом случае, в TRPMD образуется широкая линия в спектре, образованная в результате наложения пиков антисимметричной и симметричной моды колебания.

2. Автокорреляционная функция дипольного момента молекулы воды при 5 К имеет характерное время затухания 1 пс для модели с ядерными квантовыми эффектами, что согласуется по порядку экспериментальным оценкам [10]. Расчеты в классической постановке дают существенно большее время затухания 27 пс, соответствующее меньшей вращательной мобильности молекулы H_2O .

3. Ограниченный объем фуллерена уменьшает длину связи ОН на 2% по сравнению с длиной связи в жидкости. Ядерные квантовые эффекты выражаются в делокализации атома водорода, увеличивают дисперсию распределения длины связи ОН.

7. Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда по гранту # 23-22-00105 (Д. Потапов: проведение расчетов, подготовка потенциала, получение спектров и корреляторов, написание текста, выводов) и Программы стратегического академического лидерства “Приоритет-2030” (соглашение 075-15-2024-200 от 06.02.2024) (Н. Кондратюк: методы учета ядерных квантовых эффектов, редактирование текста, сборка программ, ресурсы). Расчеты проведены на вычислительных станциях *Soft Cluster* в МФТИ и суперкомпьютере *Физиер* в ОИВТ РАН.

8. Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. A. Popov, *Endohedral fullerenes: electron transfer and spin*, Springer, Heidelberg (2017).
2. H. Chandler, M. Stefanou, E. Campbell, and R. Schaub, *Nat. Commun.* **10**, 2283 (2019).
3. P. Anilkumar, F. Lu, L. Cao, P. Luo, J.-H. Liu, S. Sahu, K. Tackett II, Y. Wang, and Y.-P. Sun, *Curr. Med. Chem.* **18**, 2045 (2011).
4. J. Zhang, Y. Ye, Y. Chen, C. Pregot, T. Li, S. Balasubramanian, D. Hobart, Y. Zhang, S. Wi, R. Davis, L. Madsen, J. Morris, S. LaConte, G. Yee, and H. Dorn, *JACS* **136**, 2630 (2014).
5. V. Lebedev, Y. Kulvelis, A. Vul, G. Peters, M. Vovk, V. Orlova, T. Tropin, M. Popova, O. Bolshakova, and E. Fomin, *Photocatalysis for Environmental Remediation and Energy Production: Recent Advances and Applications*, Springer International Publishing, Cham (2023).
6. K. Kurotobi, and Y. Murata, *Science* **333**, 613 (2011).
7. S. Mamone, M. Concistrè, E. Carignani, B. Meier, A. Krachmalnicoff, O. Johannessen, X. Lei, Y. Li, M. Denning, M. Carravetta, K. Goh, A. Horsewill, R. Whitby, and M. Levitt, *J. Chem. Phys.* **140**, 194306 (2014).
8. C. Beduz, M. Carravetta, J. Chen et al. (Collaboration), *PNAS* **109**, 12894 (2012).
9. A. Shugai, U. Nagel, Y. Murata, Y. Li, S. Mamone, A. Krachmalnicoff, S. Alom, R. J. Whitby, M. H. Levitt, and T. Rööm, *J. Chem. Phys.* **154**, 124311 (2021).
10. S. Zhukov, V. Balos, G. Hoffman et al. (Collaboration), *Sci. Rep.* **10**, 18329 (2020).
11. A. Melentev, S. Zhukov, V. Balos, G. Hoffman, Sh. Alom, M. Belyanchikov, E. Zhukova, M. Dressel, G. Bacanu, P. Abramov, M. Levitt, R. Whitby, B. Gorshunov, and M. Sajadi, *J. Phys. Conf. Ser.* **1984**, 012012 (2021).
12. S. Aoyagi, N. Hoshino, T. Akutagawa, Y. Sado, R. Kitaura, H. Shinohara, K. Sugimoto, R. Zhange, and Y. Murata, *Chem. Commun.* **50**, 524 (2014).
13. J. Cioslowski and A. Nanayakkara, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2871 (1992).
14. S. Jarvis, H. Sang, F. Junqueira et al. (Collaboration), *Commun. Chem.* **4**, 135 (2021).
15. J. Dunn and E. Rashed, *J. Phys. Conf. Ser.* **1148**, 012003 (2018).
16. S. Kaneko, Y. Hashikawa, S. Fujii, Y. Murata, and M. Kiguchi, *ChemPhysChem.* **18**, 1229 (2017).
17. D. Bucher, *Chem. Phys. Lett.* **534**, 38 (2012).
18. C. Williams, M. Whitehead, and L. Pang, *J. Phys. Chem.* **97**, 11652 (1993).
19. A. Varadwaj and P. Varadwaj, *Chem. Eur. J.* **18**, 15345 (2012).
20. A. Saroj, V. Ramanathan, B. Kumar Mishra, A. N. Panda, and N. Sathyamurthy, *ChemPhysChem.* **23**, e202200413 (2022).
21. Н. Дегтяренко, Е. Мазур, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 329 (2016).
22. И. Федоров, В. Стегайлов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 392 (2021).
23. Н. Фоминых, В. Стегайлов, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 857 (2023).
24. T. Markland, M. Ceriotti, *Nat. Rev. Chem.* **2**, 0109 (2018).
25. M. Tuckerman, *Statistical mechanics theory and molecular simulation*, Oxford University Press, Oxford (2010).
26. O. Marsalek, T. Markland, *J. Phys. Chem. Lett.* **8**, 1545 (2017).
27. M. Rossi, M. Ceriotti, and D. Manolopoulos, *J. Chem. Phys.* **140**, 234116 (2014).
28. M. Ceriotti, D. Manolopoulos, and M. Parrinello, *J. Chem. Phys.* **134**, 084104 (2011).
29. M. Ceriotti, M. Parrinello, T. Markland, and D. Manolopoulos, *J. Chem. Phys.* **133**, 124104 (2010).

30. A. Farimani, Y. Wu, and N. Aluru, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 17993 (2013).
31. G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
32. J. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
33. S. Grimme, J. Antony, S. Ehrlich, and H. Krieg, *J. Chem. Phys.* **132**, 154104 (2010).
34. A. Togo, L. Chaput, T. Tadano, and I. Tanaka, *J. Phys. Condens. Matter.* **35**, 353001 (2023).
35. Г. Норман, Д. Флейта, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 251 (2020).
36. И. Балякин, Р. Рыльцев, Н. Щелкачёв, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 377 (2023).
37. D. Semenok, I. Troyan, A. Sadakov et al. (Collaboration), *Adv. Mater.* **34**, 2204038 (2022).
38. M. Popov, F. Khorobrykh, S. Klimin, V. Churkin, D. Ovsyannikov, and A. Kvashnin, *Nanomaterials* **13**, 696 (2023).
39. I. Novikov, K. Gubaev, E. Podryabinkin, and A. Shapeev, *Mach. Learn.: Sci. Technol.* **2**, 025002 (2020).
40. S. Plimpton, *J. Comput. Phys.* **117**, 1 (1995).
41. V. Kapil, M. Rossi, O. Marsalek et al. (Collaboration), *Comput. Phys. Commun.* **236**, 214 (2019).
42. I. Craig and D. Manolopoulos, *J. Chem. Phys.* **121**, 3368 (2004).
43. O. Shameema, C. Ramachandran, and N. Sathyamurthy, *J. Phys. Chem. A* **110**, 2 (2006).
44. A. Kharazmi and N. Priezjev, *J. Phys. Chem. B* **121**, 7133 (2017).
45. C. Liang, A. Rayabharam, and N. Aluru, *J. Phys. Chem. B* **127**, 6532 (2023).

Индукцированная беспорядком сингулярность квантовой метрики

З. З. Алисултанов¹⁾

Московский физико-технический институт (МФТИ, Физтех),
Центр теоретической физики им. А. А. Абрикосова, 141701 Долгопрудный, Россия

Институт физики Дагестанского федерального исследовательского центра РАН, 367015 Махачкала, Россия

Поступила в редакцию 3 мая 2024 г.

После переработки 5 мая 2024 г.

Принята к публикации 6 мая 2024 г.

Квантовый вес – это новая концепция для описания щелевых электронных состояний материи. Эта величина получается при интегрировании квантовой метрики (вещественной части квантового метрического тензора) по аналогии с тем, как фаза Берри получается при интегрировании кривизны Берри (мнимой части квантового метрического тензора). Квантовый вес определяет ряд кинетических величин таких, как нелинейный аномальный эффект Холла, оптическая проводимость, фотовольтаический эффект и т.д. В этой работе мы показали, что немагнитный беспорядок в топологических изоляторах может индуцировать сингулярность квантовой метрики и квантового веса.

DOI: 10.31857/S1234567824120061, EDN: QGGRZJ

Исследование топологических особенностей материи остается актуальным направлением физики конденсированного состояния [1–10]. В последнее время помимо топологических свойств активно изучаются геометрические свойства, гильбертова пространства зонных электронов и их связь с топологией [11]. Хотя основные квантово-метрические особенности конденсированных сред были изучены еще достаточно давно (см., например, [12, 13]), активные исследования начались только сейчас, когда появились прямые экспериментальные наблюдения. Одной из новых концепций, предложенных для описания щелевых состояний, является квантовый вес [14, 15]. Эта величина является фундаментальным свойством щелевых фаз и определяется квантовыми флуктуациями центра масс электрона. Квантовый вес связан с так называемой квантовой метрикой и позволяет интерпретировать нелинейный аномальный эффект Холла [16], наблюдавшийся недавно в системах, в которых кривизна Берри тождественно равна нулю. В настоящей работе мы показали, что немагнитный беспорядок может индуцировать сингулярность квантовой метрики, а следовательно, и величины квантового веса.

Геометрические и топологические свойства зоны Бриллюэна в общем случае могут быть получены рассматривая отображение вариации параметров гамильтониана внутри многообразия данного квантового состояния (зоны) на гильбертово пространство

системы. Пусть $|u_{n,\mathbf{p}}\rangle$ соответствует n -й зоне в зоне Бриллюэна в точке \mathbf{p} . Введем метрику стандартным образом, рассматривая квадрат расстояния в гильбертовом пространстве между точками $|u_{n,\mathbf{p}}\rangle$ и $|u_{n,\mathbf{p}+d\mathbf{p}}\rangle$:

$$\| |u_{n,\mathbf{p}+d\mathbf{p}}\rangle - |u_{n,\mathbf{p}}\rangle \|^2 = \mathcal{T}_{ij} dp_i dp_j, \quad (1)$$

где

$$\mathcal{T}_{ij} = \langle \partial_{p_i} u_{n,\mathbf{p}} | \partial_{p_j} u_{n,\mathbf{p}} \rangle - \langle \partial_{p_i} u_{n,\mathbf{p}} | u_{n,\mathbf{p}} \rangle \langle u_{n,\mathbf{p}} | \partial_{p_j} u_{n,\mathbf{p}} \rangle = g_{ij} - \frac{i}{2} \Omega_{ij}, \quad (2)$$

где \mathcal{T}_{ij} – это калибровочно инвариантный квантовый метрический тензор, $\Omega_{ij} = -2\text{Im}\mathcal{T}_{ij}$ есть кривизна Берри, а $g_{ij} = \text{Re}\mathcal{T}_{ij}$ есть квантовая метрика. Эта величина может оставаться нетривиальной даже при нулевой кривизне Берри. Например, в работе [16] был исследован эффект Холла в \mathcal{PT} -симметричной многослойной системе. \mathcal{PT} -симметричность приводит к тому, что кривизна Берри такой системы тождественно равна нулю. Тем не менее в такой системе наблюдался нелинейный аномальный квантовый эффект Холла, происхождение которого связано с наличием нетривиальной квантовой метрики. Этот эффект наблюдался также в работах [17, 18] в симметричных относительно обращения времени системах.

Квантовым весом D -мерной системы называется следующая величина

$$K_{ij} = 2\pi \int \frac{d^D \mathbf{k}}{(2\pi)^D} g_{ij}, \quad (3)$$

¹⁾e-mail: zaur0102@gmail.com

наподобие тому, как фаза Берри и число Черна определяются интегрированием кривизны Берри. Эта величина введена в недавней работе [14]. Она связана с моментом минус первого порядка оптической проводимости. На микроскопическом уровне квантовый вес определяется квантовыми флуктуациями центра масс электрона [15]. Действительно, например, в одномерном случае имеем $g_{xx} = \langle \partial_{p_x} u | \partial_{p_x} u \rangle - \langle \partial_{p_x} u | u \rangle \langle u | \partial_{p_x} u \rangle$. Тогда $K_{xx} = \int dk g_{xx} \sim \langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2 = \langle \Delta x^2 \rangle$. Необходимо отметить, что число Черна может обращаться в нуль, а также быть положительным и отрицательным. Кривизна Берри, как уже отмечалось выше, обращается в нуль, если система обладает симметрией относительно обращения времени и инверсии. В отличие от этого, квантовая метрика и квантовый вес всегда неотрицательны. Предельный случай, когда квантовый вес равен нулю, соответствует абсолютно тривиальной системе – топологические числа в таком случае в принципе не могут быть отличны от нуля. Зонные диэлектрики характеризуются малыми значениями квантового веса, в то время как для топологических изоляторов эта величина большая [14]. Наконец, квантовый вес определяет фундаментальное ограничение величины топологической щели (массы) [14].

Вычислим квантовую метрику и квантовый вес для полупроводниковой системы при наличии немагнитного беспорядка. Следуя работам [2, 19, 20], мы используем для топологического изолятора с беспорядком следующий 4- зонный гамильтониан для кубической решетки (для простоты постоянная решетка положена равной единице)

$$H_{TI} = \sum_{\mathbf{k}} \Psi_{\mathbf{k}}^{\dagger} \left[\sum_{\mu=0}^D d_{\mu}(\mathbf{k}) \Gamma_{\mu} + d_4(\mathbf{k}) \mathbb{I} \right] \Psi_{\mathbf{k}} + \sum_j U_j \Psi_j^{\dagger} \Psi_j, \tag{4}$$

где Ψ_j – 4-компонентный вектор состояния в j -м узле кристаллической решетки, $d_0(\mathbf{k}) = \chi - 2t \sum_i \cos k_i$, $d_i(\mathbf{k}) = -2\lambda \sin k_i$, $d_4(\mathbf{k}) = 2\gamma \sum_i (1 - \cos k_i)$, Γ_{μ} – матрицы Дирака, U_j – случайный потенциал в j -м узле решетки, вызванный беспорядком. Мы используем простейшую модель Андерсона, в рамках которой значения энергии в узлах распределены равномерно с плотностью $1/U_0$ в интервале $[-U_0/2, U_0/2]$.

При $U_0 = 0$ получаем гамильтониан чистой системы $H_{TI}^0 = \sum_{\mathbf{k}} \Psi_{\mathbf{k}}^{\dagger} H_{\mathbf{k}}^0 \Psi_{\mathbf{k}}$. Этот гамильтониан содержит член $m = \chi - 6t$, называемый топологической массой. Можно показать, что при $m > 0$ система представляет собой обычный зонный изолятор с величиной щели, равной m . Если $m < 0$, то спектр становится инвертированным и система, помимо объемных состояний с щелями, содержит еще и

бесщелевые краевые состояния, обладающие топологической защитой. Эта фаза называется топологическим изолятором. Обратим внимание, что при $U_0 = 0$ гамильтониан инвариантен относительно обращения времени, поскольку $\mathcal{T} \Gamma_0 \mathcal{T}^{-1} = \Gamma_0$, $\mathcal{T} \Gamma_i \mathcal{T}^{-1} = -\Gamma_i$, $d_i(-\mathbf{k}) = -d_i(\mathbf{k})$, где \mathcal{T} – оператор обращения времени. Эта инвариантность является основой топологической защиты киральных краевых состояний.

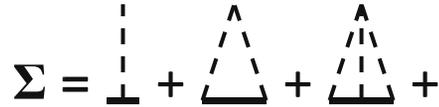


Рис. 1. Диаграммный ряд для собственной энергетической части (5) в однопримесной крестовой технике в приближении T-матрицы рассеяния

Топологическая масса $m = \chi - 6t$ получилась в нулевом порядке разложения функции $d_0(\mathbf{k})$ в ряд Тейлора вблизи $\mathbf{k} = 0$. Во втором порядке возникает квадратичная добавка tk^2 , играющая важную роль для топологической классификации. При наличии беспорядка (в нашей модели это означает, что $U_0 \neq 0$) этот член оказывается еще более существенным. Действительно, беспорядок приводит к пространственной локализации состояний, когда волновые функции с данным импульсом “живут” в конечной области размером порядка длины свободного пробега и экспоненциально спадают вне ее: $\psi \sim \exp -r/r_0$. Наличие квадратичного члена приводит к поправке $-t\nabla^2 \psi = -tr_0^{-2} \psi$ к топологической массе. Эта отрицательная поправка может превзойти величину $m > 0$, что приведет к смене знака, т.е. инверсии спектра. Этот эффект играет ключевую роль в установлении так называемой фазы андерсоновского топологического изолятора [20–22]. Связанная с беспорядком сингулярность квантовой метрики, изучаемая в нашей работе, также основана на этом эффекте.

При $U_0 \neq 0$ спектр системы перенормируется. В рамках метода одноузельных диаграмм [23–25] (однокрестовая техника) собственную энергетическую часть можно изобразить, как показано на рис. 1. Использование такого диаграммного ряда означает выход за рамки борновского приближения. Это устраняет некоторые полюса в выражениях и дает более точные результаты. Приближение Борна можно применить, если выполняется условие $k_F^3 \int u(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r} \ll \epsilon_F$ (см., например, [26]). Если предположить, что примесный потенциал равен u_0 в области $\Delta^3\mathbf{r}$ и близок к нулю в остальном пространстве, то этот критерий можно переписать как $\Delta^3\mathbf{r} \ll \epsilon_F/u_0 k_F^3 \approx$

$1/\left(u_0(2m)^{3/2}\epsilon_F^{1/2}\right)$. Таким образом, критерий выполняется при короткодействующем потенциале и малых значениях энергии Ферми и топологической массы. Это важно, поскольку переход от топологически тривиальной фазы с $m > 0$ к топологически нетривиальной фазе с $m < 0$ осуществляется через значение $m = 0$. Также следует отметить, что мы не учитываем диаграммы с пересечениями от нескольких примесей. Малость таких диаграмм оценивается как $\hbar/\epsilon_F\tau \gg 1$ [26]. Это условие можно интерпретировать следующим образом: чем меньше время релаксации τ , тем больший диффузионный объем охватывает частица и тем меньше вероятность возвращения частицы в исходную точку. Будем считать, что оба упомянутых критерия (применимость борновского приближения и пренебрежение пересекающимися диаграммами) в нашей системе выполняются. Таким образом, диаграммный ряд на рис. 1 можно суммировать в приближении короткодействующего примесного центра, когда преобразование Фурье потенциала примеси можно рассматривать как константу. В этом случае

$$\hat{\Sigma}(\epsilon_F) = U \left(1 - U \sum_{BZ} \hat{G}(\epsilon_F, \mathbf{k}) \right)^{-1}, \quad (5)$$

где $\hat{G}_{\mathbf{k}}(\epsilon_F) = (\epsilon_F + i\delta - H_{\mathbf{k}}^0 - \Sigma)^{-1}$. Усреднение по беспорядку дает

$$\hat{\Sigma} = -\frac{(\hat{F}^{-1})^2}{U_0} \ln \frac{1 - \frac{U_0}{2}\hat{F}}{1 + \frac{U_0}{2}\hat{F}} - \hat{F}^{-1}, \quad (6)$$

где введены следующие обозначения: $\hat{F} = \sum_{BZ} \hat{G}_{\mathbf{k}}$ и $\hat{F}^{-1}\hat{F} = \mathbb{I}$. Матричная структура гамильтониана приводит к аналогичной структуре собственной энергетической части. Следовательно, последние можно разложить на основе матриц Дирака $\Sigma = \sum_{\mu} \Gamma_{\mu} \Sigma_{\mu} + \mathbb{I} \Sigma_4$, где $\Sigma_{\mu} = 1/4\text{tr}(\Gamma_{\mu}\Sigma)$, $\Sigma_4 = 1/4\text{tr}\Sigma$. Рассмотрим случай немагнитных примесей. Это означает, что полный гамильтониан (4) также должен быть T -инвариантным. Таким образом, $\mathcal{T}\Sigma\mathcal{T}^{-1} = \Sigma$ или $\mathcal{T}\Sigma_i\mathcal{T}^{-1} = -\Sigma_x$. Однако величины Σ_{μ} являются функциями только энергии и не зависят от импульса. Поэтому $\mathcal{T}(d_i(\mathbf{k}) + \Sigma_i)\mathcal{T}^{-1} = -d_i(\mathbf{k}) + \Sigma_i$ должно быть правдой. Если учесть, что $\mathcal{T}\Gamma_i\mathcal{T}^{-1} = -\Gamma_i$, то в итоге получим $\Sigma_i \equiv 0$. Таким образом, немагнитные примеси приводят к перенормировке топологической массы и энергии Ферми за счет величин Σ_0 и Σ_4 соответственно. Нас интересует перенормировка массы: $m \rightarrow \bar{m} = m + \text{Re}[\Sigma_0]$. Разложение функции (6) по U_0F до второго по-

рядка дает самосогласованное борновское приближение $\Sigma = (U_0^2/12)F$, использованное в работах [20–22]. Далее, для получения аналитических выражений упростим задачу и положим $\hat{G}_{\mathbf{k}} \rightarrow \hat{G}_{\mathbf{k}}^0$, где $\hat{G}_{\mathbf{k}}^0 = (\epsilon_F + i\delta - H_{\mathbf{k}}^0)^{-1}$. Тогда, используя те же соображения, что и в работах [20–22] для вычисления $\sum_{BZ} \hat{G}_{\mathbf{k}}^0$, получаем (энергия Ферми локализована внутри щели, поэтому мнимая часть F , представляющая собой плотность объемных состояний чистой системы, равна нулю при нулевой температуре):

$$\text{Re}[F] = F_0\Gamma_0 + F_1, \quad (7)$$

$$F_0^{3D} \simeq -\frac{1}{2\pi} \frac{t}{t^2 - \gamma^2}, F_1^{3D} = -F_0^{3D} (t \equiv \gamma), \quad (8)$$

$$F_0^{2D} \simeq -\frac{1}{4\pi} \frac{t}{t^2 - \gamma^2} \ln \left| \frac{t^2 - \gamma^2}{\epsilon_F^2 - m^2} \right|, \quad (9)$$

$$F_1^{2D} = F_0^{2D} (t \equiv \gamma). \quad (10)$$

Задачу нахождения величин Σ_{μ} можно упростить, если сначала установить их вид в выражении (5), а затем провести усреднение по примесям. В результате мы получаем

$$\begin{aligned} \Sigma_0 = & -\frac{F_0}{F_0^2 - F_1^2} + \quad (11) \\ & + \frac{1}{U_0} \frac{F_0 F_1}{(F_0^2 - F_1^2)^2} \ln \left| \frac{\left(\frac{U_0(F_0^2 - F_1^2)}{2} + F_1\right)^2 - F_0^2}{\left(\frac{U_0(F_0^2 - F_1^2)}{2} - F_1\right)^2 - F_0^2} \right| + \\ & + \frac{1}{2U_0} \frac{F_0^2 + F_1^2}{(F_0^2 - F_1^2)^2} \ln \left| \frac{\left(\frac{U_0(F_0^2 - F_1^2)}{2} + F_0\right)^2 - F_1^2}{\left(\frac{U_0(F_0^2 - F_1^2)}{2} - F_0\right)^2 - F_1^2} \right|. \end{aligned}$$

Чтобы получить формулу (11), мы положили $\hat{G}_{\mathbf{k}} \rightarrow \hat{G}_{\mathbf{k}}^0$ в (5) и использовали выражение (7). После этого мы умножили матрицу (5) на Γ_0 и вычислили след. Полученное выражение проинтегрировано в интервале $[-U_0/2, U_0/2]$ с весом $1/U_0$. Те же выражения можно получить, если найти $\text{tr}(\Gamma_{\mu}\Sigma)$ из формулы (6). Обратите внимание, что в отличие от борновского приближения, используемого в работах [20–22], выражение (11) для собственной энергетической части не содержит особенности в точке $t = \gamma$. Это связано с тем, что мы суммировали всю серию диаграмм (см. рис. 1).

Основной результат данной работы основан на зависимости $\bar{m}(U_0)$. В трехмерном зонном изоляторе ($m > 0$) переход в топологическую фазу происходит через закрытие щели ($U_0^2 > 24\pi m(t^2 - \gamma^2)/t$). Обозначим в общем случае через U_c значение U_0 , при ко-

тором топологическая масса обращается в нуль, т.е. $\overline{m}(U_c) = 0$.

Итак, для перенормированной энергии вблизи $\mathbf{k} = 0$ мы имеем (мы опускаем для простоты квадратичный член в \overline{m} , так как он уже учтен при перенормировке)

$$\overline{E}_{k\pm} \approx \pm \sqrt{\overline{m}^2(U_0) + v^2 k^2}, \quad (12)$$

и, соответственно, гамильтониан можно записать как

$$\overline{H}(\mathbf{k}) = \overline{E}_{k+} \sum_{\mu=0}^D n_{\mathbf{k}}^{\mu} \Gamma_{\mu} \quad (13)$$

где $n_{\mathbf{k}}^{\mu}$ есть единичный вектор вдоль оси μ .

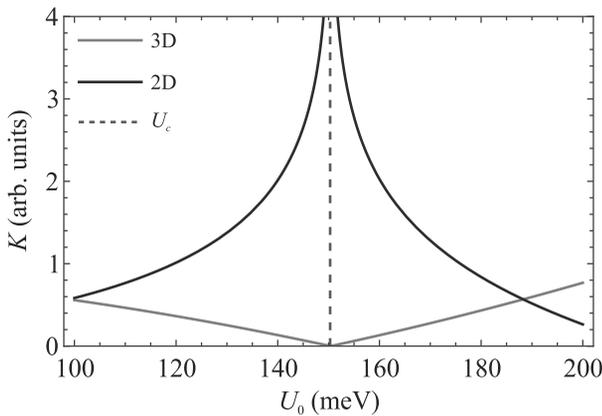


Рис. 2. (Цветной онлайн) Асимптотическая зависимость квантового веса от величины U_0 вблизи критического значения. Параметры гамильтонианов для 2D и 3D случаев взяты из [20–22]

Далее, будем следовать логике работы [14] (см. формулы (29), (30) этой работы). Ясно, что при $U_0 \rightarrow U_c$ квантовая метрика расходится как $1/k^2$ вблизи $k = 0$. На рисунке 2 показана асимптотическая зависимость квантового веса от величины U_0 вблизи критического значения. Видно, что в двумерном случае квантовый вес расходится при $U_0 \rightarrow U_c$. Зависимость квантового веса от U_0 вблизи критического значения можно оценить как: $K \sim \ln |\partial \overline{m} / \partial U_0| + \ln |U_0 - U_c|$.

Очевидно, что эти выводы могут быть обобщены на все величины, которые определяются квантовым весом. Одной из таких величин является обобщенный оптический вес [14]. Таким образом, немагнитный беспорядок в двумерной системе вблизи критического значения индуцирует сильное оптическое поглощение низкоэнергетических фотонов. Этот эффект можно использовать для экспериментальной идентификации перехода в фазу андерсоновского топологического излятора.

Наконец отметим, что интересно рассмотреть квантовую метрику для неэрмитовых систем (см., например, [27, 28]), в том числе слоистых (см. [29, 30]). Для слоистых систем в связи с квантово-метрическими эффектами особенно следует отметить работу [31], в которой рассмотрен размерный кроссовер в слоистой топологической системе. Связанные с перекрытием блоховских зон неэрмитовы эффекты могут привести к усилению эффектов квантовой метрики. Эти эффекты проявляются в кинетической теории в виде нелинейного холловского отклика.

Финансирование работы. Часть работы, связанная с расчетом квантового веса и применением к неэрмитовым системам финансировалась за счет средств Российского научного фонда (проект 22-72-00110), а часть, связанная с расчетом гамильтониана с беспорядком финансировалась за счет бюджета института (Госзадание ФСМГ-2023-0011).

Конфликт интересов. Автор данной работы заявляет, что у него нет конфликта интересов.

1. M. Z. Hasan and C. L. Kane, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 3045 (2010).
2. X. L. Qi, T. Hughes, and S.-C. Zhang, *Phys. Rev. B* **78**, 195424 (2008).
3. T. T. Heikkilä, N. B. Kopnin, and G. E. Volovik, *JETP Lett.* **94**, 233 (2011).
4. N. P. Armitage, E. J. Mele, and A. Vishwanath, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015001 (2018).
5. J. Nissinen and G. E. Volovik, *JETP Lett.* **110**, 789 (2019).
6. A. Anirban, *Nat. Rev. Phys.* **5**, 267 (2023).
7. Y. Tokura, *Nat. Rev. Phys.* **5**, 439 (2023).
8. H. C. Wu, H. S. Xu, L. C. Xie, and L. Jin, *Phys. Rev. Lett.* **132**, 083801 (2024).
9. H. C. Wu, L. Jin, and Z. Song, *Phys. Rev. B* **103**, 235110 (2021).
10. H. Park, J. Cai, E. Anderson, Y. Zhang, J. Zhu, X. Liu, C. Wang, W. Holtzmann, C. Hu, Z. Liu, T. Taniguchi, K. Watanabe, J.-H. Chu, T. Cao, L. Fu, W. Yao, C.-Z. Chang, D. Cobden, D. Xiao, and X. Xu, *Nature* **622**, 74 (2023).
11. P. Törmä, *Phys. Rev. Lett.* **131**, 240001 (2023).
12. G. E. Volovik, *JETP Lett.* **46**, 98 (1987).
13. N. Marzari and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* **56**, 12847 (1997).
14. Y. Onishi and L. Fu, *Phys. Rev. X* **14**, 011052 (2024).
15. Y. Onishi and L. Fu, arXiv:2401.13847 (2024).
16. A. Gao, Y.-F. Liu, J.-X. Qiu et al. (Collaboration), *Science* **381**, 181 (2023).

17. Q. Ma, S.-Y. Xu, H. Shen et. al. (Collaboration), *Nature* **565**, 337 (2019).
18. N. Wang, D. Kaplan, Z. Zhang, et al. (Collaboration), *Nature* **621**, 487 (2023).
19. P. Hosur, S. Ryu, and A. Vishwanath, *Phys. Rev. B* **81**, 045120 (2010).
20. H.-M. Guo, G. Rosenberg, G. Refael, and M. Franz, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 216601 (2010).
21. J. Liu, R. L. Chu, J. K. Jain, and S.-Q. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 136806 (2009).
22. C. W. Groth, M. Wimmer, A. R. Akhmerov, J. T. Lo, and C. W. J. Beenakker, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 196805 (2009).
23. A. A. Abrikosov and L. P. Gor'kov, *JETP* **8**, 1090 (1959).
24. A. A. Abrikosov and L. P. Gor'kov, *JETP* **9**, 220 (1959).
25. S. F. Edwards, *Phil. Mag.* **3**, 1020 (1958).
26. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, И. Е. Дзялошинский, *Методы квантовой теории поля в статистической физике*, Физматгиз, М. (1962), 443 с.
27. Z. Z. Alisultanov and E. G. Idrisov, *Phys. Rev. B* **107**, 085135 (2023).
28. З. З. Алисултанов, Н. А. Демиров, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 777 (2023).
29. Z. Z. Alisultanov, G. O. Abdullaev, P. D. Grigoriev, and N. A. Demirov, *JETP* **136**, 353 (2023).
30. Z. Z. Alisultanov and A. Kudlis, *Phys. Rev. B* **109**, 165141 (2024).
31. T. T. Heikkila and G. E. Volovik, *JETP Lett.* **93**, 59 (2011).

Локализованная сверхпроводимость в гексабориде LaB_6 с динамическими зарядовыми страйпами¹⁾

А. Н. Азаревич^а, А. В. Богач^а, О. Н. Хрыкина^{а,б}, Н. Б. Болотина^б, В. М. Гридчина^б, Н. Ю. Шицевалова^с, С. Ю. Гаврилкин^д, А. Ю. Цветков^д, С. Габани^е, К. Флахбарт^е, А. В. Кузнецов^ф, Н. Е. Случанко^{а,2)}

^аИнститут общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

^бНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

^сИнститут проблем материаловедения им. И. Н. Францевича, 03142 Киев, Украина

^дФизический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^еInstitute of Experimental Physics, Slovak Academy of Sciences, Watsonova 47, SK-04001 Košice, Slovakia

^фНациональный исследовательский ядерный университет (МИФИ), 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 27 апреля 2024 г.

После переработки 7 мая 2024 г.

Принята к публикации 13 мая 2024 г.

В LaB_6 обнаружена сверхпроводимость II рода с $T_c \sim 6$ К, найдены значения критических полей, выполнены оценки длины когерентности $\xi(0) \sim 240$ Å, параметра Гинзбурга–Ландау $\kappa_{\text{GL}} \sim 2$ и константы электрон-фононного взаимодействия $\lambda_{e-ph} \approx 0.75$. Прецизионные исследования рентгеновской дифракции при $T = 30$ К обнаружили трехмерные структуры зарядовых страйпов в LaB_6 . Обсуждается сценарий сверхпроводимости, локализованной в окрестности филаментарных каналов с флуктуирующей электронной плотностью в матрице гексаборида лантана.

DOI: 10.31857/S1234567824120073, EDN: RMYUCI

1. Введение. Гексаборид лантана (LaB_6) известен, как один из наиболее эффективных материалов для термоэмиссионных катодов, широко применяемых в электронной микроскопии, при анализе поверхностей, метрологии и др. Кроме того, LaB_6 считается немагнитным реперным соединением для фундаментальных исследований сильно коррелированных электронных систем RB_6 , среди которых топологический кондо-изолятор SmB_6 [1], кондорешетка CeB_6 [2], антиферромагнетик GdB_6 в квантовом диффузионном режиме зарядового транспорта [3] и др. Одним из наиболее спорных вопросов, связанных с LaB_6 , является наблюдение в нем сверхпроводимости (СП). Впервые неполная СП в LaB_6 с $T_c \sim 5.7$ К была обнаружена в 1968 г. Маттиасом с соавторами [4], однако в дальнейшем величина T_c была скорректирована до 0.45 К [5], в [6] уменьшена до 0.122 К, тогда как в работах [7, 8] при резистивных измерениях СП не наблюдалась вплоть до 0.005 К (см. также обзор [9]).

В последние годы возобновление интереса к ис-

следованиям СП в гексаборидах YB_6 и LaB_6 связано с открытием в полигидридах LaH_n и YH_n ($n = 6 \div 10$) под давлением более 120 ГПа высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) с $T_c > 200$ К, (см., например, [10–12]). Похожая каркасно-кластерная кристаллическая структура полигидридов RH_n и гексаборидов RB_6 позволяет предположить развитие в ВТСП LaH_n и YH_n кооперативной ян-теллеровской структурной неустойчивости кластеров H_n , приводящей к электронному фазовому расслоению с возникновением динамических зарядовых страйпов и субструктурной волны зарядовой плотности (с-ВЗП), аналогично наблюдавшимся в RB_6 [2, 3, 13]. В этой связи, можно ожидать целого ряда специфических особенностей реализации электрон-фононного механизма сверхпроводимости, общих для “нетрадиционных” ВТСП соединений RH_n и “традиционных” СП семейства RB_6 . Представленное ниже исследование показывает, что вероятным сценарием локализованной сверхпроводимости в LaB_6 является формирование квазиодномерных цепочек электронных состояний, возникающих в окрестности динамических зарядовых страйпов, причем спаривание происходит

¹⁾См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru

²⁾e-mail: nes@lt.gpi.ru

на поперечных страйпам квазилокальных колебаниях ионов La.

2. Методика эксперимента. Для выяснения природы сверхпроводимости, обнаруженной в LaB_6 в [4–6], в настоящей работе в интервале температур 2–400 К проведены измерения удельного сопротивления, намагниченности и теплопроводности 10-и высококачественных монокристаллических образцов LaB_6 (масса $0.03 \div 1.7$ г., длина 5–15 мм, см. также дополнительные материалы) различного изотопического состава по бору, а также выполнены прецизионные исследования низкотемпературной теплоемкости (интервал 2–7 К) и рентгеновской дифракции (англ. XRD) при температурах 30 и 85 К на монокристаллах гексаборида лантана. Для измерений тепловых и транспортных характеристик использовалась коммерческая установка PPMS9 (Quantum Design) Центра коллективного пользования (ЦКП) ФИАН, магнитные измерения проводились на установках MPMS в ИОФРАН и ИЭФ САН, прецизионные XRD эксперименты были выполнены в ЦКП ИК РАН на дифрактометре XtaLAB Synergy-DW с детектором фотонов NuPIX-Arc 150 с использованием $\text{AgK}\alpha$ -излучения ($\lambda = 0.56087 \text{ \AA}$), $\text{MoK}\alpha$ -излучения ($\lambda = 0.71073 \text{ \AA}$) и криосистемы Cobra Plus (Oxford Cryosystems) с открытым потоком газобразных азота и гелия. Основные данные об эксперименте и результатах уточнения структурной модели в группе симметрии $Pm\bar{3}m$ при температурах 30 и 85 К представлены в табл. S1 и S2 в дополнительных материалах.

3. Экспериментальные результаты.

3.1. Намагниченность. На рисунке 1а, б и 2 для примера представлены результаты магнитных измерений температурных и полевых зависимостей, соответственно, полученные во внешнем магнитном поле, направленном вдоль различных осей в кристаллах LaB_6 . На температурных кривых магнитной восприимчивости $\chi(T, H_0)$ в полях 0.1–5 кЭ надежно регистрируется сверхпроводящий переход с $T_c \sim 6$ К (рис. 1а, б), который подавляется внешним магнитным полем. Полевые зависимости намагниченности (рис. 2) типичны для сверхпроводимости II рода с линейным диамагнитным откликом в мейсснеровской фазе ($H < H_{c1}(T_c) < 500$ Э), смешанным состоянием и значительным гистерезисом ввода-вывода поля на кривых $M(T_0, H)$ в интервале $H_{c1} < H < H_{c2}$. На рисунке 1с представлены полученные из магнитных данных кривые нижнего $H_{c1}(T_c)$ и верхнего $H_{c2}(T_c)$ критических полей, позволяющие в рамках теории Абрикосова сверхпроводимости II рода, пользуясь формулами

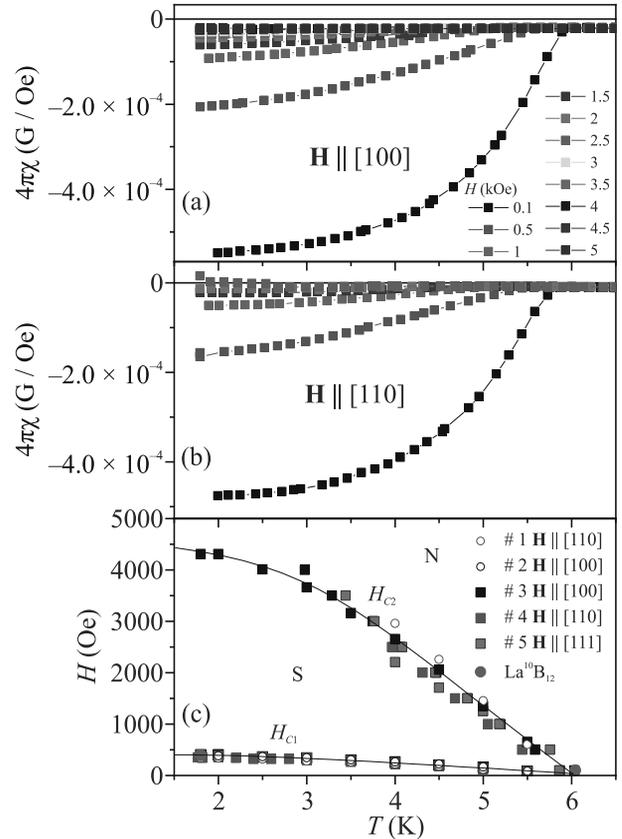


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а), (б) – Температурные зависимости магнитной восприимчивости $\chi(T) = M/H(T, H_0)$ для направлений внешнего поля $\mathbf{H} \parallel [100]$ и $\mathbf{H} \parallel [110]$. (с) – Магнитная фазовая диаграмма сверхпроводящего состояния LaB_6 . H_{c1} , H_{c2} – нижнее и верхнее критические поля

$$\xi(0) = (\Phi_0/2\pi H_{c2}(0))^{1/2}, \quad (1)$$

$$H_{c1}(0) = H_{c2}(0)/2\kappa_{\text{GL}}^2 (\ln \kappa_{\text{GL}} + a), \quad (2)$$

и соотношением [14]

$$H_{c2}(0) = -0.69T_c(dH_c2/dT)|_{T=T_c}, \quad (3)$$

оценить длину когерентности $\xi(0) \sim 240 \pm 20 \text{ \AA}$ и параметр Гинзбурга–Ландау $\kappa_{\text{GL}} \sim 2$ (где Φ_0 – квант потока и $a \sim 0.85$ постоянная, зависящая от концентрации примесей, см. [15]). Отметим, что “медленные” квантовые осцилляции намагниченности (эффект де-Гааза–ван-Альфена), которые для всех исследованных нами кристаллов LaB_6 наблюдаются в интервале $H > 3$ кЭ (см. рис. 2) и, согласно [16], отвечают малой поверхности Ферми с $E_{F1} \sim 13.8$ мэВ, значительно снижают точность определения значений $H_{c2}(T_c)$ при низких температурах. Кроме того, амплитуда диамагнитного СП отклика зависит от

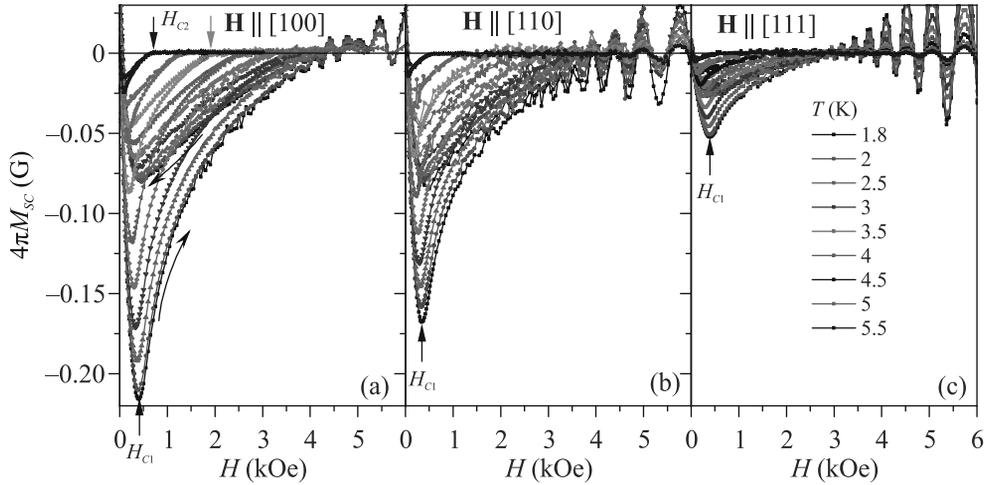


Рис. 2. (Цветной онлайн) Полевые зависимости намагниченности $M(H, T_0)$ в сверхпроводящем состоянии для различных направлений внешнего магнитного поля. Стрелками показано направление изменения H и обозначены нижнее H_{c1} и верхнее H_{c2} критические поля

направления поля и принимает максимальные значения для $\mathbf{H} \parallel [100]$ (рис. 2). Подчеркнем также, что объем сверхпроводящей фазы, оцениваемый по наклону кривых $M(H, T_0 = 1.9 \text{ K})$ в меиснеровской фазе, оказывается очень малым, изменяясь в пределах 0.03–0.1% в зависимости от монокристалла LaB_6 и направления внешнего магнитного поля.

3.2. Сопротивление и теплоемкость. На рисунке 3 показаны результаты измерений теплоемкости (C) и удельного сопротивления (ρ). На кривых $\rho(T)$, полученных для различных направлений тока через образец $I = 1\text{--}10 \text{ mA}$ в кристаллах LaB_6 с отношением $\rho(300 \text{ K})/\rho(10 \text{ K}) > 100$, сверхпроводящий переход не наблюдается (рис. 3). В то же время, сопоставление температурных зависимостей теплоемкости $C/T = f(T, H_0)$ без поля и в поле $H_0 = 5 \text{ kOe} \sim H_{c2}(0)$ (рис. 1с) позволяет зарегистрировать небольшой вклад, связанный с разрушением полем сверхпроводящего состояния в интервале температур 3.5–6 K (см. вставку на рис. 3).

3.3. Теплопроводность. Полученные в работе кривые теплопроводности $\kappa(T, H_0)$ характеризуются немонотонным поведением с низкотемпературным максимумом вблизи $T_s \sim 15 \text{ K}$, который в значительной мере подавляется магнитным полем до 40 кЭ (см., например, рис. 4а, б). Отметим, что аналогичное поведение теплопроводности LaB_6 с подавлением в поле максимума вблизи 15 K интерпретировалось в [17] в предположении о сильном электрон-фононном рассеянии на низкочастотных фононных модах в двухуровневых системах, связанных с беспорядком в расположении ионов La в полостях борного каркаса. Далее, при $H = 0$ вблизи $T_c \sim 6 \text{ K}$ наблю-

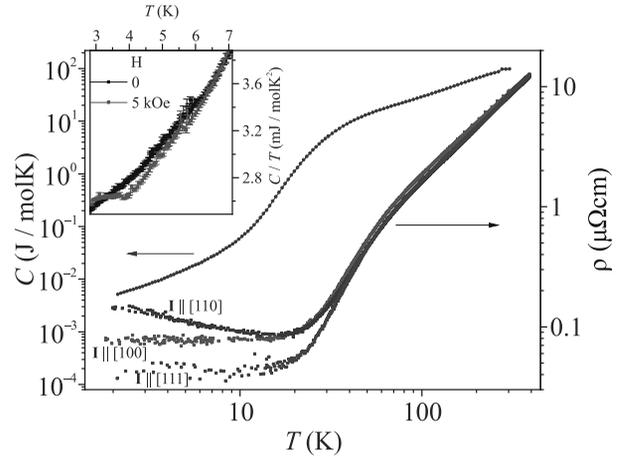


Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурные зависимости теплоемкости $C(T, H_0)$ при $H_0 = 0$ и 5 кЭ и удельного сопротивления $\rho(T)$ для различных направлений тока через образец

дается резкий пик $\kappa(T, H = 0)$, который полностью подавляется магнитным полем (рис. 4а, б). Указанная особенность $\kappa(T)$ при 6 K регистрируется во всех исследованных нами образцах LaB_6 , и, по-видимому, может быть связана с сильными изменениями в рассеянии потока тепла в объеме кристаллов, сопровождающимися переходом в СП состояние.

На рисунке 4с показаны зависимости приведенного числа Лоренца $L/L_0 = \kappa\rho/T$ (закон Видемана–Франца, $L_0 = 24.5 \text{ nWt} \cdot \text{Om} \cdot \text{K}^{-2}$ – значение Зоммерфельда для газа свободных электронов). Как видно из рис. 4с, выше 200 K значения $L/L_0(T)$ становятся больше 1, что свидетельствует о появлении в этом интервале температур, наряду с электронной (κ_e), также заметной фононной (κ_{ph}) компоненты в теп-

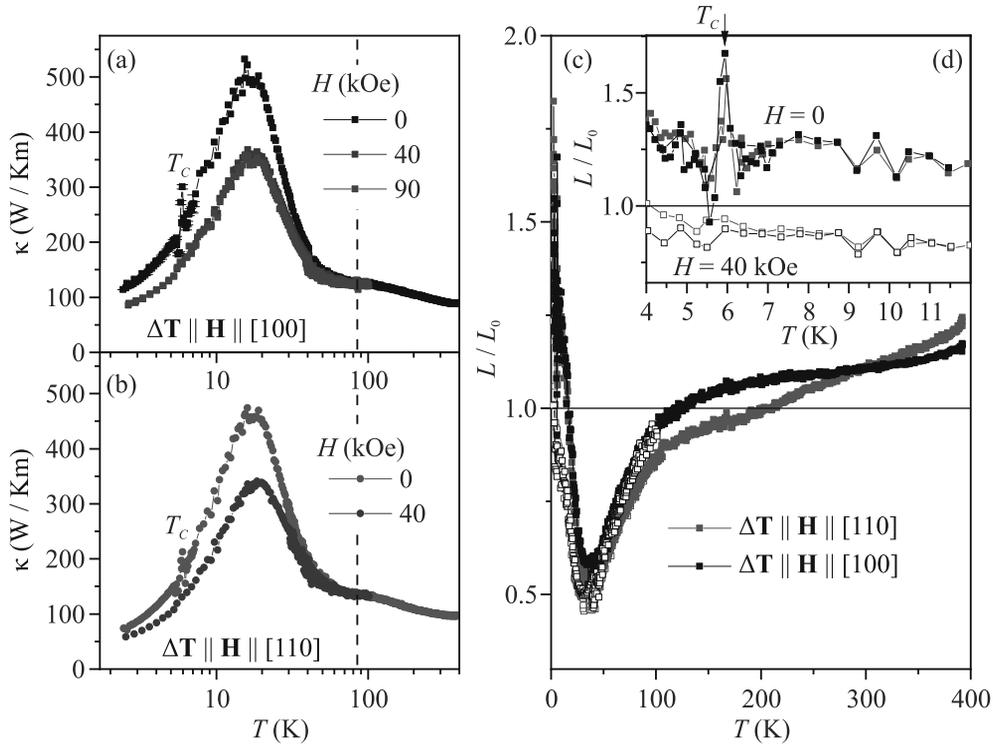


Рис. 4. (Цветной онлайн) Температурные зависимости теплопроводности $\kappa(T, H_0)$ при $H_0 = 0, 40$ и 90 кЭ для направлений градиента температуры и внешнего магнитного поля: (а) – $\Delta T \parallel \mathbf{H} \parallel [100]$ и (б) – $\Delta T \parallel \mathbf{H} \parallel [110]$, и (с) – числа Лоренца $L/L_0(T, H_0)$. На панели (d) в увеличенном масштабе показаны кривые $L/L_0(T, H_0)$ в окрестности сверхпроводящего перехода

лопроводности. Ниже 200 К доминирующим вкладом становится κ_e , причем наблюдающееся при понижении температуры в интервале $T < 100$ К падение L/L_0 приблизительно в два раза с минимумом вблизи 30 К может быть обусловлено значительной перестройкой электронной структуры. Как видно из рис. 4, в магнитном поле $H = 40$ кЭ особенность при T_c на кривых $L/L_0(T)$ полностью подавляется, тогда как минимум вблизи $T = 30$ К уширяется и смещается в область низких температур. Ниже 10 К близкое к единице значение L/L_0 свидетельствует о доминировании электронного зоммерфельдовского вклада в теплопроводность.

3.4. Распределение электронной плотности. Для выяснения характера изменений кристаллической и электронной структуры в интервале $T < 100$ К в работе выполнены измерения рентгеновской дифракции при двух температурах, $T_0 = 85$ К, значительно выше пика на кривых $\kappa(T, H_0)$ и $T_0 = 30$ К вблизи минимума на зависимости $L/L_0(T)$ (см. вертикальный пунктир на рис. 4а, б). Структура монокристалла уточнена в группе симметрии $Pm\bar{3}m$ (рис. 5а). Основные данные об экспериментах и результатах уточнения структурной модели представлены в табл. S1 и S2 дополнительных материалов. Независимая оценка

распределения электронной плотности (ЭП) в кристалле получена без учета симметричных ограничений методом максимальной энтропии (англ. MEM). MEM карты ЭП в сечениях плоскостями $\{100\}$ и $\{110\}$ представлены на рис. 5d, f (см. также дополнительные материалы).

Сопоставление структурных характеристик и MEM карт ЭП позволяет сделать следующие выводы:

(1) в LaV_6 регистрируются небольшие *статистические ЯТ искажения* кубической решетки (около 0.002 \AA по линейным и до 0.06° по угловым параметрам, см. Табл. S2 в дополнительных материалах), которые не требуют перехода к некубической структурной модели. Однако *кооперативная динамическая структурная неустойчивость* борного каркаса приводит к модуляции гибридизации $5d(\text{La})$ и $2p(\text{V})$ состояний зоны проводимости [2, 3, 13] (см. схемы на рис. 5б, с), что является причиной различий в распределении междуузельной ЭП в симметрично-эквивалентных плоскостях $\{110\}$ (см. также рис. S1 в дополнительных материалах);

(2) карты ЭП на узлах La в симметрично-эквивалентных плоскостях $\{110\}$ также обнаруживают различия (заметные отклонения от

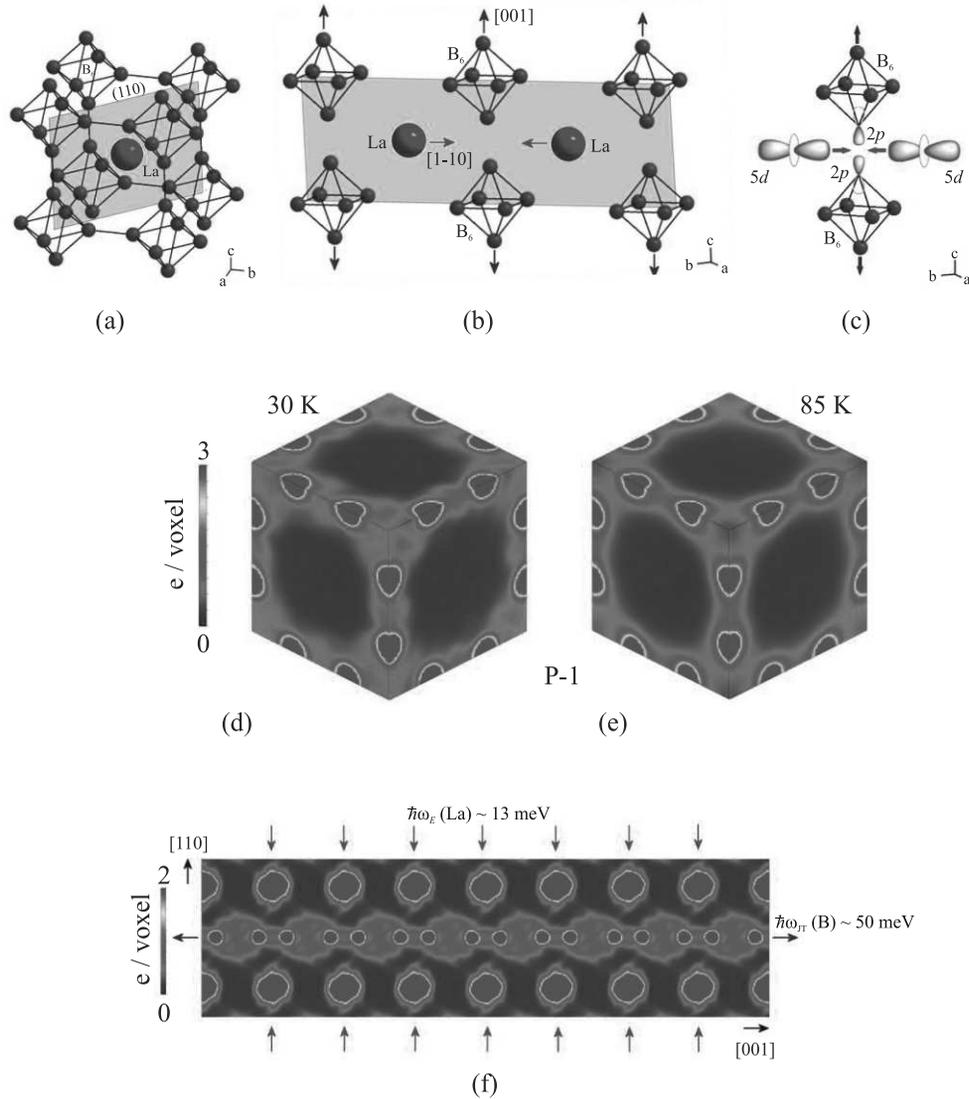


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Кристаллическая структура LaB_6 . (б) – В плоскости (110) (на панелях (а), (б) выделена зеленым) синими стрелками показаны колебания кластеров B_6 (коллективная ЯТ-мода [18, 19]) в направлениях $\langle 100 \rangle$, приводящие к квазилокальным колебаниям (эйнштейновская мода [9, 15, 18], показана красными стрелками) пар ионов La в одном из направлений семейства $\langle 110 \rangle$ и к периодическим изменениям $5d-2p$ гибридизации зонных состояний (панель (с)). Панели (d)–(e) показывают распределение электронной плотности в плоскостях $\{100\}$, полученное методом максимальной энтропии при: (d) – $T = 30$ К и (e) – $T = 85$ К. (f) – Построенная МЕМ карта ЭП с динамическим зарядовым страйпом в одной из плоскостей $\{110\}$ и формирующие динамический страйп ЯТ ($\hbar\omega_{JT} \sim 50$ мэВ) и эйнштейновская ($\hbar\omega_E \sim 13$ мэВ) моды (см. текст)

сферической формы, рис. S1 в дополнительных материалах), свидетельствующие о формировании колебательно связанных кластеров редкоземельных ионов, наблюдавшихся ранее для различных RVB_6 [2, 3, 13];

(3) наиболее существенные различия в распределении ЭП при $T = 85$ и 30 К регистрируются в плоскостях $\{100\}$. Они связаны с формированием при $T = 30$ К сетки динамических зарядовых страйпов

вдоль ребер кубической ячейки (рис. 5d) вместо отрезков полос заряда, расположенных при температуре 85 К в мостиках В-В между соседними кластерами B_6 (рис. 5e). Отрезки ЭП в мостиках В-В, по-видимому, обусловлены двумя факторами: электронами на связи В-В и квазилокальными колебаниями ($\hbar\omega_E \sim 13$ мэВ [9, 15, 18]) пар ионов La в направлениях $\langle 110 \rangle$, приводящими к периодическому изменению $5d-2p$ -гибридизации (см. схему на рис. 5b, c).

Далее при понижении температуры от 85 до 30 К на $2p$ -орбиталях бора с участием $5d$ -состояний лантана вдоль направлений $\langle 100 \rangle$ в LaV_6 формируются протяженные динамические страйпы (рис. 5d, f). Следует предположить, что эти трехмерные филаментарные структуры флуктуирующих зарядов инициированы коллективной ЯТ-модой жесткого борного каркаса (см. схему на рис. 5f). Указанная коллективная мода с энергией $\hbar\omega_{\text{JT}} \sim 50 \text{ мэВ} \sim 580 \text{ К}$ надежно регистрируется при измерениях оптической проводимости [18] (см. рис. S2 в дополнительных материалах) и рамановских спектров LaV_6 [19].

4. Обсуждение результатов. При обсуждении результатов следует отметить, что представленные в работе экспериментальные данные, полученные на большом (10 шт.) количестве монокристаллических образцов высокого качества (подробнее см. дополнительные материалы), различающихся, размером, ориентацией и изотопическим составом по бору, свидетельствуют о сверхпроводимости с $T_c \sim 6 \text{ К}$, возникающей в LaV_6 в условиях структурной (кооперативный эффект Яна–Теллера на кластерах V_6) и электронной (зарядовые страйпы в направлениях $\langle 100 \rangle$) неустойчивостей. Среди возможных сценариев СП с малой долей объема сверхпроводящей фазы (0.03–0.1 %) можно предположить реализацию (i) поверхностной сверхпроводимости, связанной, например, с гексагональными фазами $\alpha\text{-La}$, либо $\beta\text{-La}$ ($T_c \sim 4.9\text{--}6 \text{ К}$, $H_c = 800\text{--}1100 \text{ Э}$ [20]), (ii) локализованной сверхпроводимости при наличии двойникования в кристаллах [21] и (iii) формирование СП фазы вблизи каналов флуктуирующей ЭП (страйпов). В случае (i) поверхностной сверхпроводимости диамагнитный СП отклик в мейсснеровской фазе должен значительно меняться при изменении отношения поверхности к объему (S/V) образца. Для проверки указанного предположения в работе исследовались монокристаллы LaV_6 различной ориентации и формы, в которых отношение S/V изменялось в пределах $0.8\text{--}5 \text{ мм}^{-1}$. Полученные результаты (см., например, рис. S3 в дополнительных материалах) позволяют исключить случай (i), тогда как детальное исследование качества кристаллов (см. дополнительные материалы) исключает присутствие двойников и включений $\alpha\text{-La}$ и $\beta\text{-La}$ в объеме исследуемых образцов. Против поверхностной СП свидетельствует также заметный СП отклик в теплоемкости (рис. 2d) и резкий пик, обнаруженный вблизи T_c в теплопроводности (рис. 4) для всех исследованных нами образцов LaV_6 . Кроме того, в случае поверхностной СП на малых токах при температурах ниже T_c следует ожидать следов резистивного перехода, который в экс-

перименте не наблюдается (рис. 3). Напротив, учитывая электронное фазовое расслоение в LaV_6 , в случае (iii) сверхпроводимости, локализованной в квазиодномерных цепочках, расположенных вдоль динамических зарядовых страйпов, следует ожидать множества слабых связей в СП каналах, и, как следствие, низких значений критического тока и отсутствия СП перехода на кривых удельного сопротивления.

При оценке параметра электрон-фононного взаимодействия λ_{e-ph} , воспользовавшись соотношением Аллена–Дайнса [22] для температуры перехода

$$k_B T_c = \frac{\hbar\omega_{\text{ln}}}{1.2} \exp \left[-\frac{1.04(1 + \lambda_{e-ph})}{\lambda_{e-ph}\mu^*(1 + 0.62\lambda_{e-ph})} \right] \quad (4)$$

с учетом $\hbar\omega_{\text{ln}} = \hbar\omega_E \sim 13 \text{ мэВ} \sim 150 \text{ К}$ и $\mu^* \sim 0.1$, получаем $\lambda_{e-ph} \approx 0.75$, отвечающее условию сильной связи. Близкие значения $\lambda_{e-ph} \approx 0.53$ [23] и $\lambda_{e-ph} \approx 0.66$ [24] были найдены для LaV_6 при измерениях квантовых осцилляционных эффектов в сильных магнитных полях и из анализа функции Элиашберга, соответственно, а также для YV_6 , где максимальная величина $\lambda_{e-ph} \sim 1$ была получена для монокристаллов с $T_c \sim 7.4 \text{ К}$ [15]. В рамках такого сценария формирования Бозе-конденсата на $5d$ - $2p$ -состояниях, отвечающих малой поверхности Ферми, составленной из эллипсоидов с $E_{F1} \approx 13.8 \text{ мэВ}$ и $m_1^* \sim 0.05m_0$ [16], наши оценки средней фермиевской скорости $v_{F1} \approx 2.1 \cdot 10^7 \text{ см/с}$ практически совпадают с величиной $v_F \approx 2.02\text{--}2.07 \cdot 10^7 \text{ см/с}$, найденной в [15] для СП в YV_6 . Можно предположить, что именно квазилокальные колебания в парах La-La с энергией $\hbar\omega_E \sim 13 \text{ мэВ}$ являются причиной возникновения ниже $T^* \sim 50 \text{ К}$ в LaV_6 носителей с $E_{F1} \approx 13.8 \text{ мэВ}$ и длинной свободного пробега, достаточно большой для наблюдения “медленных” квантовых осцилляций (рис. 2, а также [16, 25]). Напротив, для неравновесных $2p$ -электронов в страйпах, принимая во внимание оценки скорости релаксации $\gamma_p \approx 1470 \text{ см}^{-1}$ для коллективной моды, полученные в [18] при измерениях оптических спектров LaV_6 (см. рис. S2 в дополнительных материалах), получаем время релаксации $\tau_s = (2\pi\gamma_p)^{-1} \approx 0.4 \cdot 10^{-14} \text{ с}$ и длину свободного пробега $l_s = v_{F1} \cdot \tau_s \approx 8.4 \text{ \AA}$. Столь малое значение $l_s \approx 2a_{\text{cub}}$ ($a_{\text{cub}} \approx 4.15 \text{ \AA}$ параметр решетки LaV_6 , см. табл. S1–S2 в дополнительных материалах) свидетельствует о квантовом диффузионном режиме зарядового транспорта [3] в неравновесных каналах. Как отмечалось выше, указанный сценарий предполагает, наряду с электронным фазовым расслоением, существенно неоднородное распределение ЭП в окрестности полос флуктуирующих зарядов, что обуславливает множество слабых связей в рас-

положенных вдоль страйпов СП цепочках и объясняет отсутствие резистивного СП перехода в LaB_6 . Подчеркнем, что параметр l_s оказывается приблизительно в 1400 раз меньше длины свободного пробега LD равновесных (друдевских [18]) носителей в LaB_6 , которая легко оценивается из соотношения

$$l_D = R_H m^* v_{F0} / (e \rho_0). \quad (5)$$

При этом с учетом значений для коэффициент Холла $R_H \approx -4.6 \cdot 10^{-4} \text{ см}^3/\text{C}$ [15], $\rho_0 \approx 0.08 \text{ мкОм} \cdot \text{см}$ (рис. 3), $m^* \approx 0.7m_0$ и $v_{F0} \approx 6 \cdot 10^7 \text{ см/с}$ [16, 18] для равновесных носителей в зоне проводимости с $E_{F0} \approx 2 \text{ эВ}$ [18, 25] имеем $l_D \approx 11800 \text{ \AA}$. Далее, воспользовавшись соотношением

$$\xi(0) \approx \hbar v_{F1} / (\pi \Delta(0)), \quad (6)$$

получаем в сферическом приближении грубые оценки для сверхпроводящей щели $\Delta(0)/k_B \approx 20 \text{ К}$ и отношения $2\Delta(0)/k_B T_c \sim 7$, которые также свидетельствуют в пользу сценария сильной связи. Отметим, что согласно результатам исследований низкочастотного эффекта де-Гааза–ван-Альфена [25] малая поверхность Ферми в LaB_6 имеет близкую к цилиндрической форму с отношением длины к диаметру, больше 2, что должно приводить к сильной анизотропии как фермиевской скорости v_{F1} , так и сверхпроводящих характеристик.

При обсуждении сценария сверхпроводимости с сильным электрон-фононным взаимодействием, локализованной в квазиодномерных цепочках в окрестности филаментарных каналов с зарядовыми флуктуациями в LaB_6 , представляет интерес сравнить отношение $k_B T_c / E_F$ (координаты Уемуры [26–28]) для LaB_6 со значениями, которые наблюдаются в случае традиционных и нетрадиционных сверхпроводников. При этом оказывается, что, как и в ВТСП гидридах LaH_n и YN_n , найденное для LaB_6 значение $k_B T_c / E_F \approx 0.0375$ находится в узком диапазоне $0.01 \leq k_B T_c / E_F \leq 0.05$, типичном для всех *нетрадиционных сверхпроводников*, включая системы с тяжелыми фермионами, купраты, фулерены, а также фазы высокого давления полигидридов и ВТСП на основе железа [26–28]. Общим свойством LaB_6 и нетрадиционных ВТСП в нормальном состоянии является также наличие псевдощели, которая регистрируется в LaB_6 в спектрах рентгеновской фотэмиссии в интервале $T < 100 \text{ К}$ [29].

При объяснении аномалий теплопроводности в LaB_6 (рис. 4) следует принять во внимание следующие обстоятельства. (i) Резкий рост электронной компоненты κ_e при понижении температуры в ин-

тервале $T < T^* \sim 50 \text{ К}$ (рис. 4) оказывается связанным с формированием сетки динамических зарядовых страйпов (филаментарных каналов неравновесных носителей) в направлениях $\langle 100 \rangle$ (рис. 5). В результате уменьшается рассеяние друдевских электронов, приводя к возрастанию электронной теплопроводности. Авторы [30] отмечают резкое падение до нуля отрицательных значений коэффициента теплового расширения (КТР) в LaB_6 ниже 50 К, переход к положительному КТР и повторную смену знака вблизи $T_s \sim 14 \text{ К}$, что, на наш взгляд, также следует связать с эффектом упорядочения в каналы (страйпы) неравновесной ЭП. (ii) Узкий пик $\kappa_e(T)$ вблизи $T_c \sim 6 \text{ К}$, который подавляется внешним магнитным полем, предположительно может быть связан с появлением при T_c вклада в теплопроводность κ_c от циркуляции (конвекции), предсказанного В. Л. Гинзбургом [31]. Эта компонента в случае свободных электронов оказывается малой – $\kappa_c/\kappa_e \sim k_B T_c / E_{F1}$ [31], однако с учетом неравновесных носителей она может быть значительно перенормирована. В частности, в [31] обсуждается существенное возрастание термоэффекта в СП при учете анизотропии и нетрадиционном механизме спаривания до значений $\kappa_c/\kappa_e \sim 1$, что по порядку величины соответствует величине $L/L_0 \sim 1.6$ в пике вблизи T_c (см. рис. 4d).

5. Заключение. В работе исследованы намагниченность, теплопроводность, теплоемкость, сопротивление и рентгеноструктурные характеристики набора высококачественных монокристаллических образцов LaB_6 различной формы, размера и изотопического состава по бору. Обнаружена сверхпроводимость II рода с $T_c \sim 6 \text{ К}$ и малой (0.03–0.1 %) долей объема СП фазы, построены кривые критических полей, выполнены оценки длины когерентности $\xi(0) \sim 240 \text{ \AA}$, параметра Гинзбурга–Ландау $\kappa_{GL} \sim 2$ и константы электрон-фононного взаимодействия $\lambda_{e-ph} \sim 0.75$, сверхпроводящей щели $\Delta(0)/k_B \sim 20 \text{ К}$ и отношения $2\Delta(0)/k_B T_c \sim 7$, свидетельствующие в пользу СП с сильным электрон-фононным взаимодействием. Показано, что СП в LaB_6 отвечает значениям $k_B T_c / E_{F1} \sim 0.0375$, типичным для *нетрадиционных сверхпроводников*, включая полигидриды LaH_n и YN_n с рекордными параметрами сверхпроводящего состояния. Анализ пространственной организации динамических зарядовых страйпов, найденных в работе при $T = 30 \text{ К}$, позволяет предположить реализацию в LaB_6 сверхпроводимости, локализованной в квазиодномерных цепочках в окрестности филаментарных каналов флуктуирующей ЭП.

Финансирование работы. Работа выпол-

нена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект #23-22-00297) с использованием оборудования Центров коллективного пользования Научно-исследовательского центра “Курчатовский институт” и Физического института им. П.Н.Лебедева Российской академии наук. Работа Н.Б.Болотиной и В.М.Гриджичиной в части структурного анализа выполнена в рамках Государственного задания Научно-исследовательского центра “Курчатовский институт”. Авторы благодарны поддержке предварительных измерений кристаллов LaV₆ в рамках проекта Европейской платформы “Микрокельвин” (EMR), а также В.Б.Филипову, А.Н.Талденкову и А.В.Инюшкину за полезные дискуссии.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. С.В. Демишев, А.Н. Азаревич, А.В. Богач, М.И. Гильманов, В.Б. Филипов, Н.Ю. Шицевалова, В.В. Глушков, Письма в ЖЭТФ **109**, 152 (2019).
2. О.Н. Хрыкина, Н.Б. Болотина, В.М. Гриджичина, А.Н. Азаревич, К.М. Красиков, Н.Ю. Шицевалова, В.Б. Филипов, С.Ю. Гаврилкин, А.Ю. Цветков, Н.Е. Случанко, Письма в ЖЭТФ **119**, 141 (2024).
3. A. P. Dudka, O. N. Khrykina, N. B. Bolotina, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filipov, M. A. Anisimov, S. Gabani, K. Flachbart, and N. E. Sluchanko, Phys. Rev. B **100**, 205103 (2019).
4. B. T. Matthias, T. H. Geballe, K. Andres, E. Corenzwit, G. W. Hull, and J. P. Maita, Science **159**, 530 (1968).
5. J. M. Vanderberg, B. T. Matthias, E. Corenzwit, and H. Barz, Mater. Res. Bull. **10**, 889 (1975).
6. A. J. Arko, G. Grabtree, J. B. Ketterson, F. M. Mueller, P. F. Walch, M. R. Windmiller, Z. Fisk, R. F. Hoyt, A. C. Mota, R. Viswanathan, D. E. Ellis, A. J. Freeman, and J. Rath, Int. J. Quant. Chem. Symp. **9**, 569 (1975).
7. I. Bat'ko, M. Bat'kova, K. Flachbart, V. B. Filippov, Yu. B. Paderno, N. Yu. Shitsevalova, and Th. Wagner, J. Alloys Compd. **217**, L1 (1995).
8. J. Etourneau, J. P. Mercurio, R. Naslain, and P. Hagenmuller, J. Solid State Chem. **2**, 332 (1970).
9. S. Gabani, K. Flachbart, K. Siemensmeyer, and T. Mori, J. Alloys Compd. **821**, 153201 (2020).
10. 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, Uspekhi Fizicheskikh Nauk **192**, 799 (2022).
11. I. A. Troyan, D. V. Semenov, A. G. Kvashnin, A. V. Sadakov, O. A. Sobolevskiy, V. M. Pudalov, A. G. Ivanova, V. B. Prakapenka, E. Greenberg, A. G. Gavriliuk, I. S. Lyubutin, V. V. Struzhkin, A. Bergara, I. Errea, R. Bianco, M. Calandra, F. Mauri, L. Monacelli, R. Akashi, and A. R. Oganov, Adv. Mater. **33**, 2006832 (2021).
12. D. Sun, V. S. Minkov, S. Mozaffari, Y. Sun, Y. Ma, S. Chariton, V. B. Prakapenka, M. I. Eremets, L. Balicas, and F. F. Balakirev, Nat. Commun. **12**, 6863 (2021).
13. O. N. Khrykina, N. B. Bolotina, V. M. Gridchina, A. N. Azarevich, A. V. Bogach, S. V. Demishev, K. M. Krasikov, N. Yu. Shitsevalova, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, J. Alloys Compd. **970**, 172527 (2024).
14. N. R. Werthamer, E. Helfand, and P. C. Hohenberg, Phys. Rev. **147**, 295 (1966).
15. N. Sluchanko, V. Glushkov, S. Demishev, A. Azarevich, M. Anisimov, A. Bogach, V. Voronov, S. Gavrilkin, K. Mitsen, A. Kuznetsov, I. Sannikov, N. Shitsevalova, V. Filipov, M. Kondrin, S. Gabani, and K. Flachbart, Phys. Rev. B **96**, 144501 (2017).
16. H. Harima, O. Sakai, T. Kasuya, and Y. Yanase, Solid State Commun. **66**, 603 (1988).
17. K. Flachbart, M. Reiffers, S. Molokac, A. Belling, J. Bischof, E. Konovalova, and Y. Paderno, Physica B **263–264**, 749 (1999).
18. E. S. Zhukova, B. P. Gorshunov, M. Dressel, G. A. Komandin, M. A. Belyanchikov, Z. V. Bedran, A. V. Muratov, Y. A. Aleshchenko, M. A. Anisimov, N. Yu. Shitsevalova, A. V. Dukhnenko, V. B. Filipov, V. V. Voronov, and N. E. Sluchanko, JETP Lett. **110**, 79 (2019).
19. H. Werheit, V. Filipov, and N. Shitsevalova, Z. Anorg. Allg. Chem. **641**(10), 1835 (2015).
20. B. T. Matthias, T. H. Geballe, and V. B. Compton, Rev. Mod. Phys. **35**, 1 (1963).
21. И. Н. Хлюстикова, А. И. Буздин, УФН **155**, 47 (1988).
22. P. Allen and R. Dynes, Phys. Rev. B **12**, 905 (1975).
23. N. Harrison, R. G. Goodrich, J. J. Vuillemin, Z. Fisk, and D. G. Rickel, Phys. Rev. Lett. **80**, 4498 (1998).
24. G. Schell, H. Winter, H. Rietschel, and F. Gompf, Phys. Rev. B **25**, 1589 (1982).
25. Y. Ishizawa, H. Nozaki, T. Tanaka, and T. Nakajima, Phys. Soc. Jpn. **48**, 1439 (1980).
26. Y. J. Uemura, Physica C **282–287**, 194 (1997).
27. Y. J. Uemura, Phys. Rev. Mater. **3**, 104801(2019).
28. E. F. Talantsev, J. Phys.: Condens. Matter **33**, 285601 (2021).
29. V. R. R. Medicherla, Appl. Phys. Lett. **90**, 062507 (2007).
30. D. Mandrus, J. L. Sarao, A. Lacerda, A. Migliori, J. D. Thompson, and Z. Fisk, Phys. Rev. B **49**, 16809 (1994).
31. В. Л. Гинзбург, УФН **167**, 429 (1997).

Новый политип вискеро NbS₃: от простого к сложному¹⁾

А. Л. Васильев^{+*×}, А. Г. Иванова⁺, И. Н. Трунькин^{*}, Н. Б. Болотина⁺, В. Я. Покровский^{°2)}, С. Г. Зыбцев[°]

⁺Курчатовский комплекс кристаллографии и фотоники
Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 119333 Москва, Россия

^{*}Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

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

[°]Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

Поступила в редакцию 10 мая 2024 г.

После переработки 10 мая 2024 г.

Принята к публикации 15 мая 2024 г.

Методами просвечивающей электронной микроскопии при комнатной температуре исследованы три образца квазиодномерного проводника NbS₃ из одной ростовой партии. Менее дефектный образец # 1 и более дефектный образец # 2 отнесены к известным ранее политипам. Образец # 3 представляет собой неизвестный ранее политип, с увеличенным по сравнению со всеми известными политипами параметром c элементарной ячейки. На электронограммах нового политипа присутствуют четыре системы сателлитных рефлексов, что указывает на формирование в образце четырех волн зарядовой плотности. Обсуждается возможность формирования более сложных по структуре политипов.

DOI: 10.31857/S1234567824120085, EDN: RVLJUI

Формирование волн зарядовой плотности (ВЗП), характерное для ряда квазиодномерных проводников, происходит благодаря электрон-фононному взаимодействию с конденсацией свободных электронов в коллективное диэлектрическое состояние ниже температуры T_p пайерлсовского перехода [1, 2]. Металл превращается в диэлектрик, однако так называемая фрелиховская мода делает возможным перенос заряда, сконденсированного в ВЗП.

Многие квазиодномерные проводники имеют нитевидную форму. Атомные ряды, ориентированные вдоль нити, образуют слои, слабо связанные между собой.

Свойства квазиодномерных проводников проявляют многие трихалькогениды металлов V группы [1, 2], и формирование в них ВЗП – характерное явление. ВЗП наблюдаются в TaS₃ (в обоих синтезированных политипах), NbSe₃ и NbS₃. До конца 1-й декады XXI в. большинство исследований было посвящено триклинной фазе, NbS₃-I, поскольку синтезированные образцы NbS₃ чаще всего относились именно к этой фазе [1, 3]. Фаза I кристаллизуется в моноклинной решетке с осью моноклинности \mathbf{b} , но изучена по рентгеновским данным в триклинной

группе P-1 [4]. Связанные по основаниям тригональные призмы из атомов серы вытянуты вдоль оси \mathbf{b} и образуют систему проводящих каналов треугольного сечения для атомов Nb, заселяющих центры призм. Расстояния между атомами Nb вдоль оси цепочки поочередно составляют 0.369 и 0.304 нм, что иногда рассматривают как ВЗП. Элементарная ячейка NbS₃-I содержит фрагменты двух проводящих каналов, составленные каждый из двух призм, т.е. 4 формульные единицы NbS₃ ($Z = 4$).

В последние 15 лет акцент в исследованиях NbS₃ переместился на моноклинную фазу, NbS₃-II [3, 5], во многом благодаря выяснению условий синтеза этой фазы [6]. Легкость расщепления вискеро NbS₃ свидетельствует о высокой анизотропии их структуры. Вероятно, с этим связаны рекордные значения T_p , $T_{p1} = 360$ К и $T_{p0} = 460$ К, наблюдаемые в NbS₃-II [3, 7, 8]. Ниже этих температур формируются две ВЗП с волновыми векторами $\mathbf{q}_1 = (0.5\mathbf{a}^*, 0.298\mathbf{b}^*, 0)$ и $\mathbf{q}_2 = (0.5\mathbf{a}^*, 0.352\mathbf{b}^*, 0)$ ³⁾, т.е. с периодами, несоизмерными периодам кристаллической решетки. Доказательством формирования ВЗП служат сателлитные рефлексы, наблюдаемые на дифракционных картинах и связанные векторами \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 с основными рефлексами [1–3, 9].

¹⁾См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru

²⁾e-mail: vadim.pokrovskiy@mail.ru

³⁾В некоторых работах вектор этого искажения обозначен как \mathbf{q}_0 .

Еще один переход происходит при $T_{P2} = 150$ К. Наблюдение трех ВЗП в одном соединении можно объяснить сложной электронной структурой этого политипа. Результаты комплексного исследования методами рентгеновской дифракции, просвечивающей электронной и сканирующей туннельной микроскопии позволили определить структуру элементарной ячейки NbS₃-II [5]. Установлено, что элементарная ячейка фазы II содержит восемь тригональных призм ($Z = 8$), попарно связанных винтовой осью группы $P2_1/m$ (рис. 1). Период b элементарной ячейки NbS₃-II укорочен вдвое по сравнению с периодом NbS₃-I.

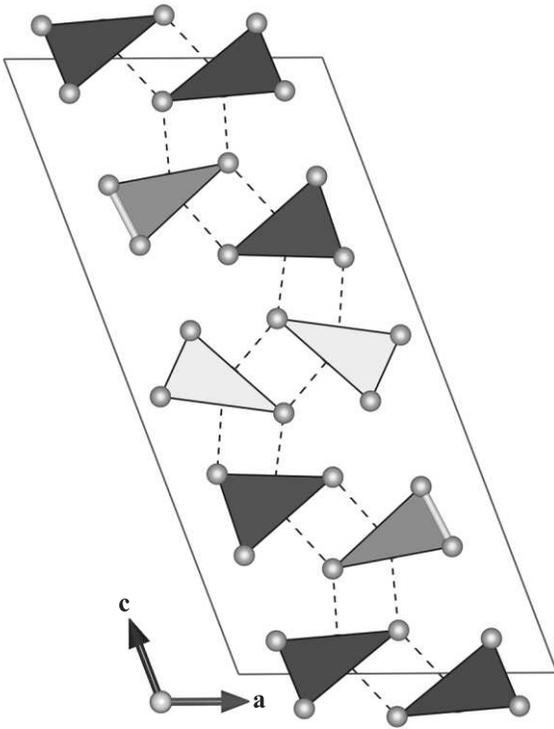


Рис. 1. (Цветной онлайн) Элементарная ячейка структуры NbS₃-II в проекции на плоскость (010) по данным [5]. Кружками показаны атомы S. Разными цветами обозначены пары тригонально-призматических колонок, связанных винтовой осью. Связи Nb-S между атомами из соседних колонок с длинами 2.55–2.72 Å показаны черными пунктирными линиями.

Позже картина была дополнена пятью новыми политипами NbS₃ [10]. Параметры элементарных ячеек в решетках известных политипов представлены в табл. 1, детали их структуры указаны в соответствующих ссылках. Многообразие политипов подтвердила и теоретическая работа [11]. Позже о новых политипах сообщалось в работах [12, 13].

Фаза IIa, наблюдавшаяся в [12], близка NbS₃-II по структурному мотиву, однако имеет иные посто-

янные решетки. Рефлексы, соответствующие $\mathbf{q}_1 = (0.5\mathbf{a}^*, 0.298\mathbf{b}^*, 0)$ в этой фазе отсутствуют, однако проявляются пары сателлитов по обе стороны от середины периода \mathbf{b}^* , что указывает на несоразмерную ВЗП с компонентой волнового вектора $\mathbf{q} = 0.477\mathbf{b}^*$.

Фаза NbS₃-III была представлена как новый политип в работе [14], поскольку по данным порошковой дифракции она заметно отличалась от фаз I и II. Существование этого политипа не было надежно подтверждено более достоверными структурными данными, что позволяет считать эту фазу NbS₃ предполагаемой.

В структуре политипа NbS₃-IV [10] гофрированные тригонально-призматические колонки попарно связаны в слое винтовой осью второго порядка 2_1 , которая, в отличие от остальных политипов, лежит в плоскости слоев и перпендикулярно осям колонок. Элементарная ячейка NbS₃-IV имеет угол β , близкий к 90°. Слои в структуре размножаются центром инверсии и образуют двухслойную последовательность чередования вдоль оси c .

Элементарная ячейка политипа NbS₃-V [10] аналогична ячейке NbS₃-I, но период b вдвое короче, а симметрия структуры моноклинная.

В доступных литературных источниках нам не удалось найти свидетельства обнаружения сателлитных рефлексов в соединениях NbS₃-IV (если не считать удвоения вдоль оси b) и NbS₃-V.

Кристаллическая структура полиморфной модификации NbS₃-VI [13] похожа как на NbS₃-I, так и на NbS₃-V: она содержит одновременно и гофрированные цепочки с парными Nb–Nb, и цепочки с неспаренными эквидистантными центрами Nb. Авторы статьи [13] не приводят данных о сверхструктурных рефлексах в NbS₃-VI.

Таким образом, вышеописанные работы выявили несколько политипов NbS₃, причем не во всех политипах были обнаружены сверхструктурные рефлексы. Во всех работах отмечалось, что кристаллическая структура NbS₃ очень чувствительна к особенностям методов приготовления образцов, и даже в одной ростовой партии могут встречаться образцы разных фаз [6].

В настоящей работе мы провели исследования на образцах одной партии, полученных в одном цикле роста из газовой фазы. В ампулу загружались ниобий и сера (с небольшим избытком), в ходе синтеза поддерживался градиент температуры 570–610 °C [6].

Образцы для электронно-микроскопических исследований были приготовлены в двухлучевом

Таблица 1. Параметры элементарных ячеек политипов NbS₃

# фазы	Пространственная группа	<i>a</i> , нм	<i>b</i> , нм	<i>c</i> , нм	β , °	Ссылка
I	P $\bar{1}$	0.4963	0.6730	0.9144	97.17	[4]
II	P2 ₁ /m	0.96509(8)	0.33459(2)	1.9850(1)	110.695(4)	[5]
IIa	P2 ₁ /m	0.86–0.88	0.33	2.17		[12]
III	...	~ 0.5	...	~ 0.9	98–99	[10, 14]
IV	P2 ₁ /c	0.67515(5)	0.49736(4)	1.8315(13)	90.116(2)	[10]
V	P2 ₁ /m	0.4950(5)	0.3358(4)	0.9079(10)	97.05(3)	[10]
VI	Pm	0.4961(2)	0.6743(2)	0.9137(2)	97.368(4)	[15]

растровом электронно-ионном микроскопе Helios-600 (Thermo Fisher Scientific, США) по стандартной методике *lift-out* в нескольких проекциях: параллельно и перпендикулярно направлению роста вискера. Отметим, что электронно-микроскопические исследования NbS₃ в проекции на плоскость (010), перпендикулярную цепочкам ниобия, ранее не проводились. Исследования методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), просвечивающей растровой электронной микроскопии (ПРЭМ), электронной дифракции (ЭД) выполнялись с помощью ПЭМ/ПРЭМ Osiris (Thermo Fisher Scientific, США) при ускоряющем напряжении 200 кВ. Прибор снабжен высокоугловым темнопольным детектором (ВТД) (Fisheye, США) и системой энергодисперсионного рентгеновского микроанализа (ЭРМ) (Bruker, Германия). Для обработки изображений использовалось программное обеспечение TIA (Thermo Fisher Scientific, США) и Digital Micrograph (Gatan, США), а для расчета изображений – JEMS [16].

Исследования вискеро методами просвечивающей/растровой электронной микроскопии (П/РЭМ), включая П/РЭМ высокого разрешения, и электронной дифракции (ЭД) показали присутствие нескольких политипов NbS₃, а именно, NbS₃-I, NbS₃-II, NbS₃-IIa и нового политипа. Результаты исследования I фазы согласуются с известными данными. Изображения и электронограммы вискера NbS₃-I приведены в качестве дополнения к статье (см. дополнительные материалы, рис. S1).

Чаще всего нам встречались два типа вискеро, которые по своей кристаллической структуре могут быть отнесены к фазам NbS₃-II [5] и NbS₃-IIa [12].

ВР ПЭМ изображения NbS₃ образца # 1 в различных проекциях и соответствующие электронограммы приведены на рис. 2. Определенные по этим результатам параметры элементарной ячейки политипа близки к найденным в работе [5]: отличие параметров элементарной ячейки *a* и *b* – менее 1 %, *c* – менее 2.5 %. Таким образом, образец # 1 относится к

политипу II (табл. 2). Характерное ВР ПЭМ изображение вискера # 1 в проекции В = [010] представлено на рис. 2а, соответствующая электронограмма – на рис. 2б. На вставке – расчетное изображение, которое оказалось близким к экспериментальному. Контраст сохраняется в относительно большом диапазоне толщин образца (*t*) и дефокусировок (Δf): *t* = 100–150 Å и Δf = 50–120 Å. Для моделирования изображения были использованы позиции атомов и пространственная группа NbS₃-II, полученные в работе [5], но параметры элементарной ячейки были взяты из настоящей работы.

ВР ПЭМ изображение вискера в проекции [001] приведено на рис. 2с, соответствующая электронограмма – на рис. 2д. На электронограмме проявляются сверхструктурные рефлексы. Координаты сверхструктурных рефлексов (**q**₁ и **q**₂ на врезке рис. 2д, численные данные в табл. 2) близки к полученным в работах [1–3, 5, 9]. Два необозначенных сверхструктурных рефлекса появились из-за двойной дифракции.

Уточненные параметры элементарной ячейки NbS₃-II были получены методом электронно-дифракционной томографии. От образца # 1 был получен трехмерный набор электронно-дифракционных картин при вращении образца вокруг оси гониометра α в диапазоне от –70° до +70° с шагом $\Delta\alpha$ = 2°. Обработка трехмерных данных электронной дифракции выполнялась в программе PETS2 [17]. В результате процедуры поиска пиков было найдено 2954 рефлекса. По 74 % от найденных рефлексов (без учета сверхструктурных рефлексов) была определена моноклинная ячейка, соответствующая фазе NbS₃-II с уточненными параметрами: *a* = 0.972(3), *b* = 0.336(1), *c* = 1.98(1) нм, β = 110.73(2)° (табл. 2, нижний ряд в первой строке).

Другая часть исследованных вискеро со структурным мотивом, близким к NbS₃-II, например, образец # 2, отличалась высокой плотностью дефектов – в основном микродвойников. Характерное ВР

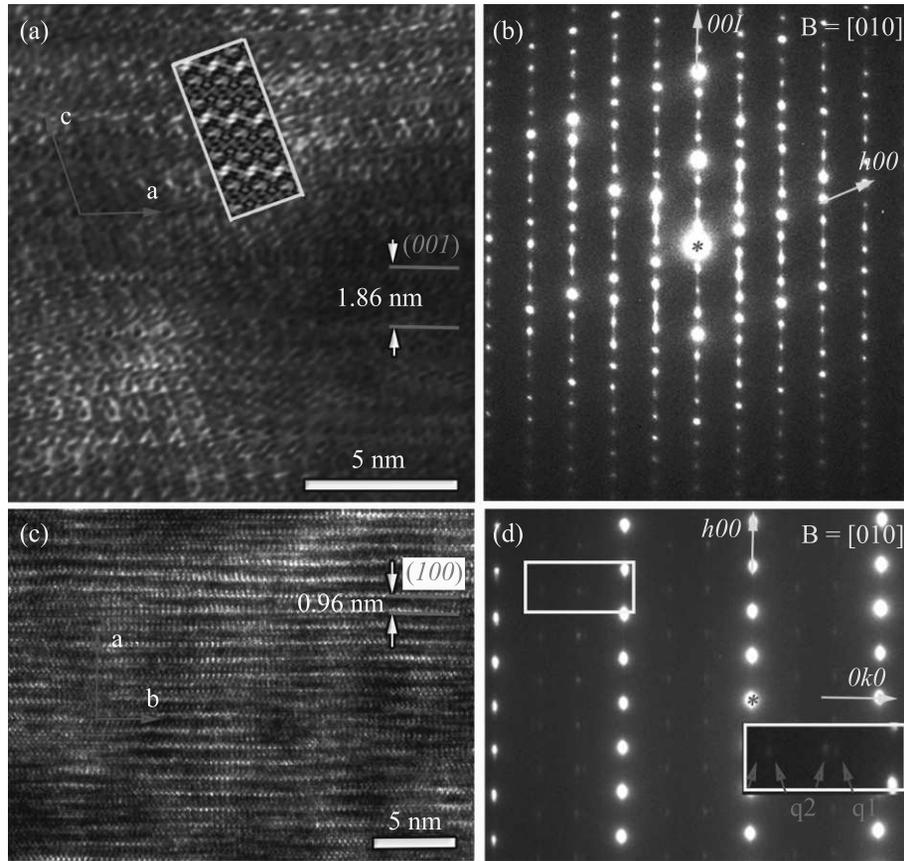


Рис. 2. (Цветной онлайн) Изображения и электронограммы вискера NbS₃-II # 1: (а) – ВР ПЭМ изображение в проекции вдоль оси зоны $V = [010]$ обратной решетки; на вкладке – расчетное изображение фрагмента структуры; (б) – соответствующая электронограмма; (с) – ВР ПЭМ изображение в проекции $V = [001]$; (д) – соответствующая электронограмма в проекции $V = [100]$; на нижней вставке – увеличенное изображение области, отмеченной прямоугольником в верхней левой части электронограммы: красными стрелками указаны сверхструктурные рефлексы от двух ВЗП

ПЭМ изображение представлено на рис. 3а. Дефекты отчетливо проявлялись на ВР ПЭМ изображениях с регистрацией электронов, рассеянных на большие углы (рис. 3б). Параметры решетки таких вискеров, определенные по ВР ПЭМ изображениям и электронограммам (рис. 3а–ф), заметно отличаются от параметров фазы II. Сопоставление параметров структуры и картины сверхструктурных рефлексов с известными данными привел нас к выводу, что мы наблюдаем фазу Па [12] (см. табл. 2).

Уточненные параметры фазы NbS₃-II по данным электронно-дифракционной томографии приведены на второй строчке.

Параметры электронного микроскопа не позволяют разрешить отдельные атомы в призме NbS₃, поэтому призмы выглядят как отдельные светлые пятна, что подтверждается расчетным изображением на вставке к рис. 3б. Для моделирования изображения и в этом случае были использованы структурные данные NbS₃, полученные в работе [5]. Модель структу-

ры NbS₃-II (рис. 1) с параметрами ячейки, измененными в соответствии с результатами наших исследований, наложена на экспериментальное изображение (рис. 3б). Используя это представление, мы предложили для разновидности политипа NbS₃-IIа модель двойниковой структуры, показанную на вставке рис. 3б (справа). Так же, как и в вискерах TiS₃ [18], граница двойникования в NbS₃ проходит по тригональным призмам, а не по промежуткам между слоями. Высокая плотность двойников с разной шириной приводит к размытию рефлексов электронограммы (вставка к рис. 3а) и появлению дополнительных рефлексов вдоль линий, параллельных 00l, поэтому точное определение параметра c элементарной ячейки в этих образцах (табл. 2), было затруднено.

Исследование образца в проекциях [100] и [001] (рис. 3с–ф) позволило более точно определить параметры a и b . Эти результаты согласуются с данными работы [12], в которой отмечено уменьшение параметра a и увеличение параметра c элементар-

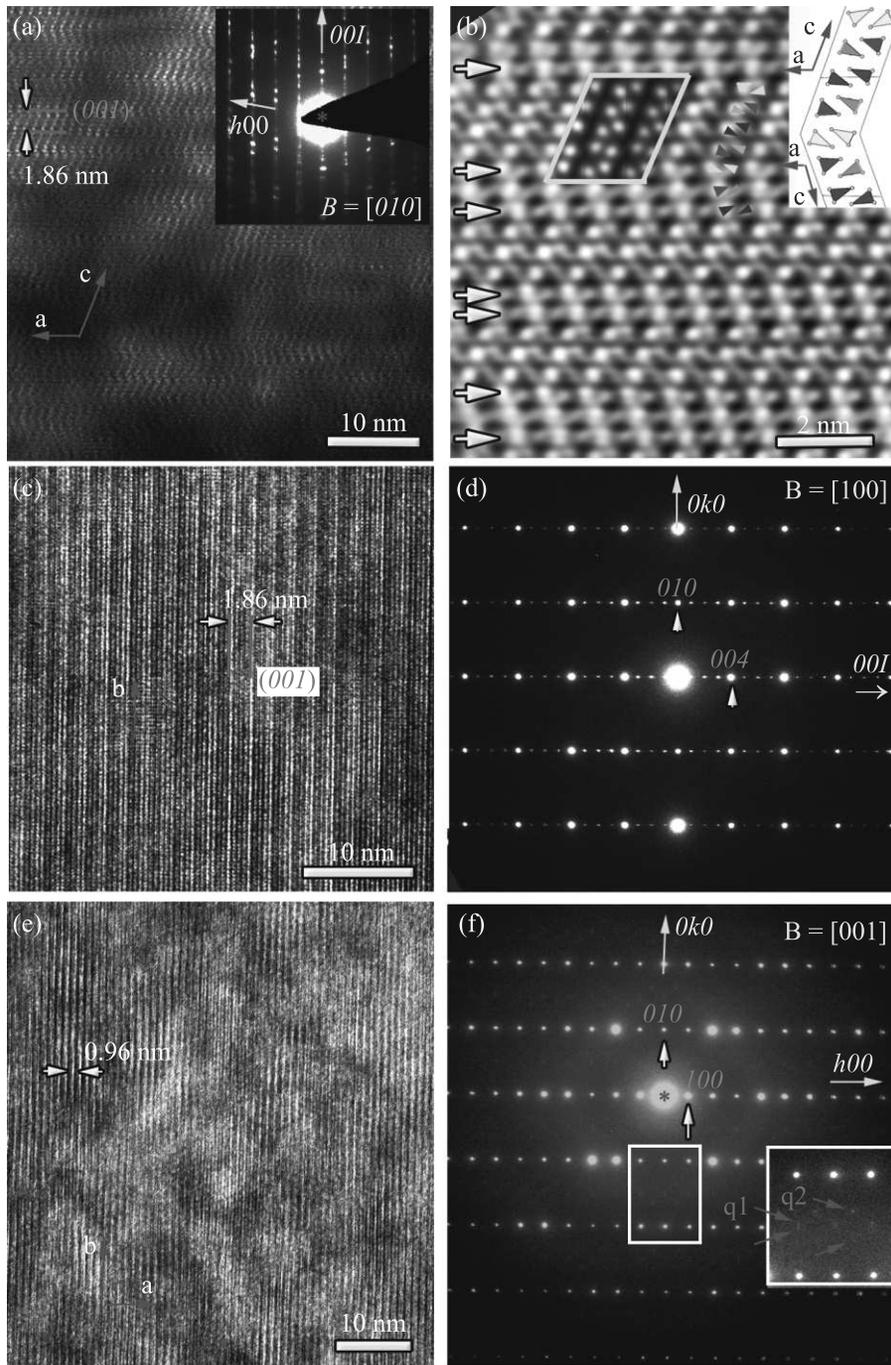


Рис. 3. (Цветной онлайн) Изображения и электронограммы вискера # 2, фазы IIa: (a) – ВР ПЭМ в проекции [010], на вставке – соответствующая электронограмма; (b) – увеличенное темнопольное ВР ПЭМ изображение: стрелками показаны границы двойников, на вставке в центре – расчетное изображение NbS_3 -II; (c) – ВР ПЭМ в проекции [100] и (d) – соответствующая электронограмма; (e) – ВР ПЭМ и (f) – электронограмма в проекции [001]: на вставке – увеличенная электронограмма. Красными стрелками указаны сверхструктурные рефлексии от ВЗП

ной ячейки в сравнении с политипом NbS_3 -II. Фазы NbS_3 -II и NbS_3 -IIa различаются также положениями сверхструктурных рефлексии на концах векторов q_1 (рис. 2d и 3f, табл. 2). Вектор q_2 одинаков в обоих

политипах, а значения вектора q_1 сильно отличаются. Для образца # 2 значения q_1 и q_2 соответствуют результатам работы [12] для фазы NbS_3 -IIa, что подтверждает его принадлежность к этой фазе. Можно

Таблица 2. Параметры элементарных ячеек и сверхструктурных рефлексов

#	a , нм	b , нм	c , нм	β , °	q_1	q_2	q_3	q_4
II*)	0.96 0.972(3)	0.337 0.336(1)	1.93 1.98(1)	110.5 110.73(2)	$0.5a^*$, $0.30b^*$, 0	$0.5a^*$, $0.352b^*$, 0		
IIIa	0.91	0.34	2.0	110	0, $0.46b^*$, 0	$0.5a^*$, $0.35b^*$, 0		
VII	0.98	0.340	2.94	76	0, $0.5b^*$, 0	$0.38a^*$, $0.182b^*$, 0	$0.35a^*$, $0.365b^*$, 0	$0.138a^*$, $0.182b^*$, 0

*Уточненные параметры фазы NbS₃-II по данным электронно-дифракционной томографии приведены на второй строчке.

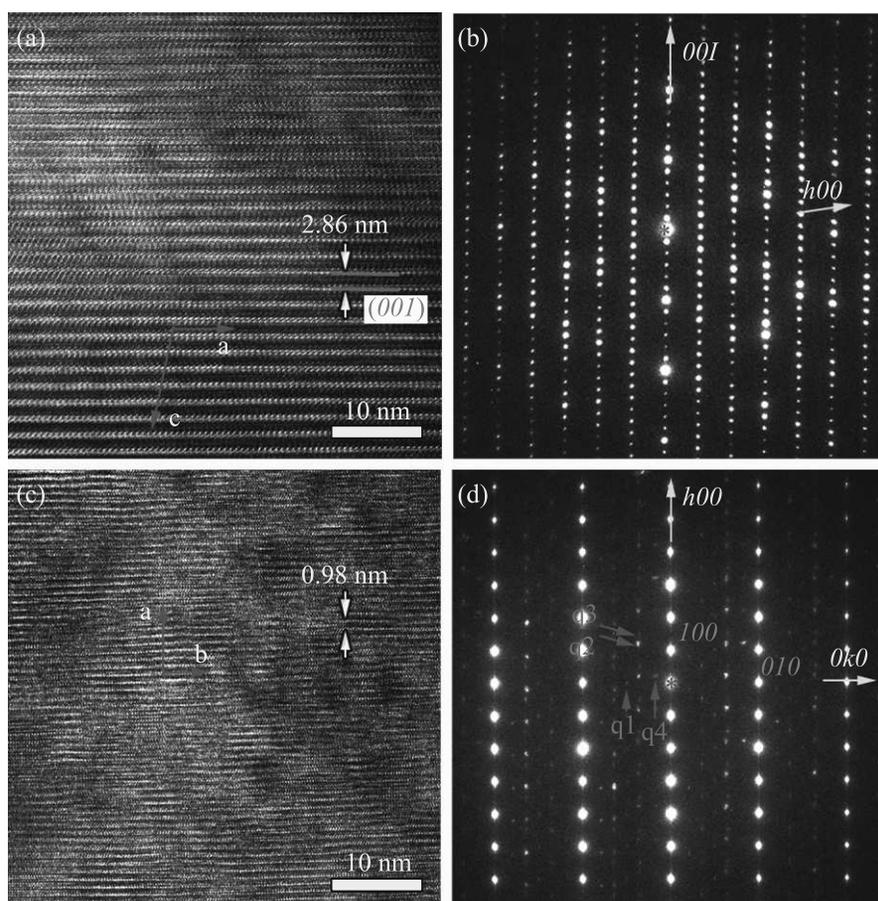


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – ВР ПЭМ изображение висера #3 с новым политипом NbS₃-VII и (б) – соответствующая электронограмма в проекции [010]; (с) – ВР ПЭМ в проекции [001] и (д) – соответствующая электронограмма в этой же проекции

предположить, что формирование дефектов связано с неравномерностью распределения серы. К сожалению, проверить это утверждение методом энергодисперсионного рентгеновского микроанализа невозможно из-за наложения характеристических линий S K α на пик Nb L α .

Помимо трех ранее известных был обнаружен новый политип NbS₃-VII (образец #3). Его ВР

ПЭМ изображения и электронограммы в двух проекциях представлены на рис. 4. Как показали оценки межплоскостного расстояния по изображениям (рис. 4а, с) и электронограммам (рис. 4б, д), параметр c моноклинной элементарной ячейки в этом поли tipe неожиданно большой – $c = 2.94$ нм. Аномальное значение имеет и угол моноклинности $\beta = 104^\circ$. Остальные параметры близки к политипу NbS₃-II

(см. табл. 2). В NbS₃-VII наблюдаются четыре системы сверхструктурных рефлексов от ВЗП с волновыми векторами $q_1 - q_4$ (рис. 4d).

Результаты более подробных исследований кристаллической структуры вискера # 3 методом ПРЭМ с регистрацией электронов, рассеянных на большие углы, представлены на рис. 5. Оценки периодичностей и углов между элементами структуры показывают, что новый политип может быть скомбинирован из двух политипов – NbS₃-II и NbS₃-I. Предполагаемая модель структуры, совмещенная с изображением, приведена на вставке к рис. 5. Зелеными треугольниками показаны основания призм, в ячейке политипа NbS₃-I. Предположение о комбинации двух политипов основано на анализе ВР ПРЭМ изображений, приведенных на рис. 3b и рис. S1b. Элементарная ячейка структуры нового политипа показана красным параллелограммом на рис. 5.

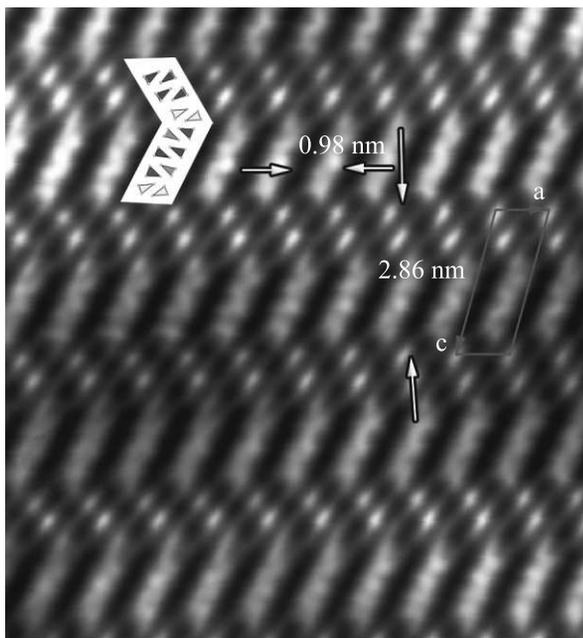


Рис. 5. (Цветной онлайн) Темнопольное изображение нового политипа в проекции [010], полученное методом ПРЭМ с регистрацией электронов, рассеянных на большие углы после фильтрации. Модель структуры, составленная из тригональных призм, обозначенных различным цветом (аналогично рис. 1 для политипа II) и зеленым для политипа I (рис. S1b). Предполагаемая элементарная ячейка выделена красными линиями

Таким образом, нами показано, что практически в одних условиях могут быть сформированы вискеры с кристаллической структурой различного типа: NbS₃-I, NbS₃-II, NbS₃-IIa и новый политип NbS₃-VII. Установлено, что политипы NbS₃-II и NbS₃-IIa несколько различаются параметрами элементарной

ячейки и координатами сверхструктурных рефлексов, ответственных за ВЗП. По-видимому, различие NbS₃-II и NbS₃-IIa связано с дефектной структурой: в политипе NbS₃-IIa наблюдается исключительно высокая плотность дефектов – двойников и дефектов упаковки.

Наиболее удивительным результатом стало наблюдение нового политипа NbS₃-VII. Эта фаза характеризуется большим параметром $c = 2.94$ нм и моноклинной элементарной ячейкой. На основании результатов ВР ПРЭМ показано, что элементарная ячейка данного политипа может быть составлена из фрагментов структуры двух политипов NbS₃-II и NbS₃-I и отличается многообразием ВЗП.

Обобщая полученные к настоящему времени результаты структурных исследований политипизма NbS₃, можно заметить, что история обнаружения политипов развивалась “от простого к сложному”. Представленное исследование показало, что периодическое повторение известных структурных мотивов может приводить к формированию новых фаз со сложными комбинациями фундаментальных строительных блоков кристаллической структуры. Можно предположить, что в процессе роста могут возникать и другие, еще более причудливые комбинации фаз, в том числе с новыми ВЗП.

Авторы благодарны С. В. Зайцеву-Зотову за синтез образцов.

Финансирование работы. Обработка и анализ результатов, а также написание статьи, выполнены В. Я. Покровским при поддержке Российского научного фонда, проект # 22-12-00319. Подготовка кристаллов NbS₃ к исследованиям проводилась С. Г. Зыбцевым в рамках Госзадания Института радиотехники и электроники Российской академии наук. Съёмка данных просвечивающей электронной микроскопии проведена в рамках выполнения государственного задания Национального исследовательского центра “Курчатовский институт” на оборудовании Центра коллективного пользования Курчатовского комплекса кристаллографии и фотоники Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. *Electronic Properties of Inorganic Quasi-One-Dimensional Compounds*, ed. by P. Monceau, Springer Netherlands, Dordrecht (1985).
2. P. Monceau, *Adv. Phys.* **61**, 325 (2012).

3. Z. Z. Wang, P. Monceau, H. Salva, C. Roucau, L. Guemas, and A. Meerschaut, *Phys. Rev. B* **40**, 11589 (1989).
4. J. Rijnsdorp and F. Jelinek, *J. Solid State Chem.* **25**, 325 (1978).
5. E. Zupanic, H. J. P. van Midden, M. A. van Midden, S. Sturm, E. Tchernychova, V. Ya. Pokrovskii, S. G. Zybtssev, V. F. Nasretdinova, S. V. Zaitsev-Zotov, W. T. Chen, W. W. Pai, J. C. Bennett, and A. Prodan, *Phys. Rev. B* **98**, 174113 (2018).
6. В. Я. Покровский, С. Г. Зыбцев, М. В. Никитин, И. Г. Горлова, В. Ф. Насретдинова, С. В. Зайцев-Зотов, *УФН* **183**, 33 (2013).
7. S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova et al. (Collaboration), *Phys. Rev. B* **95**, 35110 (2017).
8. S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova, S. V. Zaitsev-Zotov, E. Zupanič, M. A. van Midden, and W. W. Pai, *J. Alloys Compd.* **854**, 157098 (2021).
9. A. Prodan, A. Budkowski, F. W. Boswell, V. Marinkov, J. C. Bennett, and J. M. Corbett, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **21**, 4171 (1988).
10. M. A. Bloodgood, P. Wei, E. Aytan, K. N. Bozhilov, A. A. Balandin, and T. T. Salguero, *APL Mater.* **6**, 26602 (2018).
11. S. Conejeros, B. Guster, P. Alemany, J.-P. Pouget, and E. Canadell, *Chem. Mater.* **33**, 5449 (2021).
12. С. Г. Зыбцев, Н. Ю. Табачкова, В. Я. Покровский, С. А. Никонов, А. А. Майзлах, С. В. Зайцев-Зотов, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 36 (2021).
13. M. A. Bloodgood, Y. Ghafouri, P. Wei, and T. T. Salguero, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 173103 (2022).
14. A. Zettl, C. M. Jackson, A. Janossy, G. Gruner, A. Jacobsen, and A. H. Thompson, *Solid State Commun.* **43**, 345 (1982).
15. E. V. Formo, J. A. Hachtel, Y. Ghafouri, M. A. Bloodgood, and T. T. Salguero, *Chem. Mater.* **34**, 279 (2022).
16. P. Stadelmann, *Microsc Microanal.* **9**, 60 (2003).
17. L. Palatinus, P. Brazda, M. Jelinek, J. Hrdá, G. Steciuk, and M. Klementova, *Acta Crystallogr. B* **75**, 512 (2019).
18. I. N. Trunkin, I. G. Gorlova, N. B. Bolotina, V. I. Bondarenko, Y. M. Chesnokov, and A. L. Vasiliev, *J. Mater. Sci.* **56**, 2150 (2021).

Микроволновая фотопроводимость бесщелевых дираковских фермионов в HgTe квантовых ямах

Н. С. Кузьмин^{1*}, А. С. Ярошевич¹⁾, Л. С. Брагинский^{1*}, М. В. Энтин^{1*}, З. Д. Квон^{1*}, Н. Н. Михайлов^{1*}

¹Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

*Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 9 апреля 2024 г.

После переработки 21 мая 2024 г.

Принята к публикации 21 мая 2024 г.

Проведено экспериментальное и теоретическое исследование микроволновой фотопроводимости системы бесщелевых дираковских фермионов в HgTe квантовых ямах критической толщины. Обнаружено, что фотопроводимость флуктуирует в зависимости от затворного напряжения в окрестности дираковской точки, а амплитуда флуктуаций растет с увеличением размера проводника и при уменьшении температуры. Предложено теоретическое объяснение микроволнового отклика. Оно базируется на предположении о существовании перколяционной двумерной фрактальной сетки геликоидальных краевых токовых состояний, возникающей в результате флуктуаций толщины ямы вблизи критического значения. Показано, что микроволновая фотопроводимость такой сетки флуктуирует при изменении энергии Ферми, причем поведение амплитуды флуктуаций качественно согласуется с наблюдаемым в эксперименте.

DOI: 10.31857/S1234567824120097, EDN: UEZGLW

В HgTe квантовых ямах критической толщины ($d_c = 6.3\text{--}6.6$ нм), соответствующей переходу от прямого к инвертированному спектру, реализуется система бесщелевых однодолинных двумерных дираковских фермионов (ДФ), имеющих линейный энергетический спектр, что приводит к целому ряду особенностей в транспортном и оптическом отклике указанной системы [1–8]. Более того, как было недавно показано в работах [9–11], в окрестности дираковской точки она трансформируется в возникающую из-за флуктуаций толщины HgTe квантовой ямы вблизи d_c двумерную (2D) сетку одномерных геликоидальных токовых состояний, разделяющих фазы двумерного ординарного и топологического изоляторов. Перколяционное описание транспорта в этой системе через сеть одномерных проводящих каналов позволяет изучить эффекты, вызванные взаимодействием топологии и локализации. Обобщая сказанное, можно сказать, что всестороннее исследование бесщелевых ДФ позволит улучшить наше понимание индуцированного беспорядком перехода топологический изолятор – металл, а также будет важным для более широкого класса неупорядоченных 2D электронных систем.

В данной работе представлены результаты экспериментального и теоретического исследования мик-

роволновой фотопроводимости (ФП) этой системы. Они показывают, что ее поведение в окрестности дираковской точки носит флуктуирующий при изменении затворного напряжения (V_g) характер. Причем установлено, что амплитуда флуктуаций ФП ведет себя парадоксальным образом: при переходе от мезоскопических (субмикронных) к макроскопическим (сотни микрон) масштабам наблюдается небольшой рост ФП, а не значительное (почти на два порядка) уменьшение ее в соответствии с предсказаниями теории мезоскопических систем [12]. Предложена модель, объясняющая поведение обнаруженной ФП особенностями взаимодействия микроволнового излучения с этой системой.

Образцы представляли собой полевые структуры специальной геометрии, состоящие из трех холловских мостиков различного размера (макроскопический – $L = 100$ мкм, $W = 50$ мкм, промежуточный – $L = 30$ мкм, $W = 10$ мкм и мезоскопический – $L = 12$ мкм, $W = 3.5$ мкм; L – расстояние между потенциометрическими контактами, W – ширина мостиков), позволяющие получать информацию о поведении исследуемой системы при переходе от мезоскопических (несколько микрон) к макроскопическим (100 мкм) масштабам (рис. 1a). Описанные образцы были изготовлены на основе HgTe квантовых ям с заданной толщиной 6.4 и 6.6 нм и ориентацией (013). Измерения проводились

¹⁾e-mail: jarosh@isp.nsc.ru

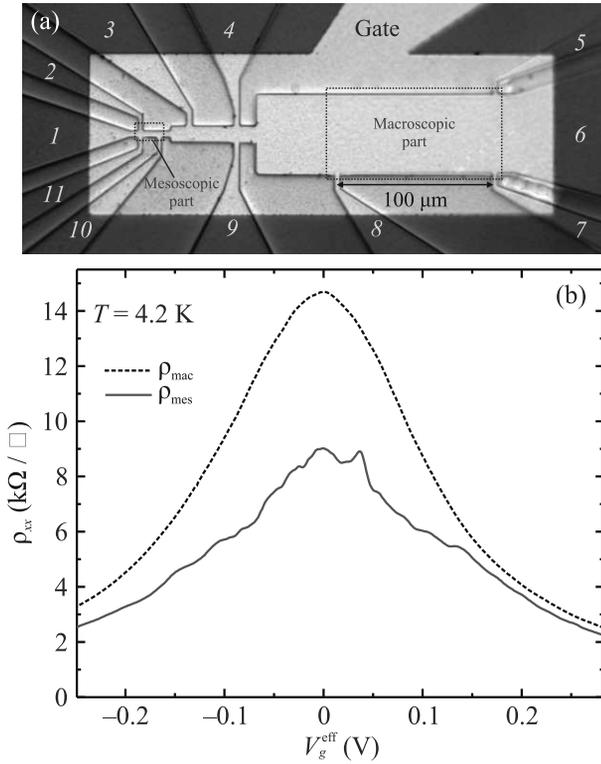


Рис. 1. (Цветной онлайн) Топология исследуемой структуры. Зависимость удельного сопротивления ρ_{xx} от затворного напряжения V_g^{eff} для макроскопической и мезоскопической частей образца

в диапазоне температур 3 К–20 К. СВЧ-излучение с частотой 2–3 ГГц подводилось к образцу по коаксиальному кабелю, расположенному в нескольких миллиметрах от него, а экран кабеля заземлялся вместе с одним из токовых контактов. Излучение попадало на образец благодаря емкостной связи между центральной жилой подводящего кабеля и металлическими контактами к образцу. Максимальная величина, подводимой к образцу СВЧ мощности, составляет порядка 0.1 мВт. Сопротивление измерялось с использованием стандартной схемы фазочувствительного детектирования на частотах 6–12 Гц и при величинах измерительного тока через образец (1–100) нА, исключающих эффекты разогрева. Ток протекал между контактами (1, 6), напряжение измерялось между потенциометрическими контактами (7, 8) и (10, 11) на макроскопической и мезоскопической частях образца, соответственно (рис. 1а). Для измерения ФП использовались как стандартная модуляционная методика, так и техника двойной модуляции.

На рисунке 1б показаны зависимости удельного сопротивления от эффективного затворного напряжения V_g^{eff} ($V_g^{\text{eff}} = V_g - V_g^{\text{max}}$, V_g – затворное напря-

жение, V_g^{max} – напряжение, соответствующее максимуму сопротивления), измеренные для макроскопической $\rho_{\text{mac}}(V_g^{\text{eff}})$ и мезоскопической $\rho_{\text{mes}}(V_g^{\text{eff}})$ частей образца. Как и следовало ожидать, они демонстрируют качественно одинаковую зависимость, то есть имеют вид кривых с одним максимумом, причем разница между значениями V_g^{max} была небольшой и не превышала 0.1 В. Величина сопротивления в максимуме заметно (в 2 раза) меньше для мезоскопической части. Также, в отличие от зависимости $\rho_{\text{mac}}(V_g^{\text{eff}})$, зависимость $\rho_{\text{mes}}(V_g^{\text{eff}})$ характеризуется наличием небольших флуктуаций сопротивления в окрестности максимума. Подобное поведение $\rho_{\text{mac}}(V_g^{\text{eff}})$ и $\rho_{\text{mes}}(V_g^{\text{eff}})$ можно связать с существованием двумерной сетки сопротивлений, которая должна приводить и к падению сопротивления проводника с уменьшением размера вследствие сокращения числа замкнутых траекторий и к появлению мезоскопических флуктуаций сопротивления [9, 10]. Рисунок 2 представляет основной результат работы. Зависимости микроволновой ФП от затворного напряжения для макроскопической $\Delta G_{\text{mac}}(V_g^{\text{eff}})$ и мезоскопической $\Delta G_{\text{mes}}(V_g^{\text{eff}})$ частей образца при $T = 4.2$ К показаны на рис. 2а. Рисунок 2б показывает зависимости $\Delta G_{\text{mes}}(V_g)$ для мезоскопической части при разных значениях СВЧ-мощности. Хорошо видно, что флуктуационная часть ФП является доминирующей, а средняя величина ФП близка к нулю. Также обратим внимание, что зависимости на рис. 2б, в основном, подобны. На рисунке 2с показаны зависимости средней амплитуды флуктуаций ФП макроскопической $\langle \Delta G_{\text{mac}}^2 \rangle^{1/2}$ и мезоскопической $\langle \Delta G_{\text{mes}}^2 \rangle^{1/2}$ частей образца от СВЧ-мощности ($\langle \Delta G^2 \rangle = \frac{\sum_{i=1}^N \Delta G^2(V_g^i)}{N}$). Зависимости являются сублинейными с показателями 0.6 и 0.7 для макроскопической и мезоскопической частей образца, соответственно. Отметим, что амплитуда флуктуаций ФП макроскопической части даже в два раза выше, чем у мезоскопической. Описанные результаты ясно показывают, что обнаруженная микроволновая ФП не связана с универсальными флуктуациями кондуктанса, поскольку в отличие от флуктуаций кондуктанса она, как было отмечено выше, с увеличением размера проводника не уменьшается, а даже растет. Это особенно хорошо заметно при сравнении кривых на рис. 1б и 2. Зависимость $\langle \Delta G_{\text{mes}}^2 \rangle^{1/2}$ от температуры в диапазоне 3.6–12 К показана на рис. 3. Видно, что повышение температуры приводит к степенному уменьшению $\langle \Delta G_{\text{mes}}^2 \rangle^{1/2}$.

Обсудим описанные выше результаты на основе модели двумерной сетки проводников, существование которой в изучаемой системе было предполо-

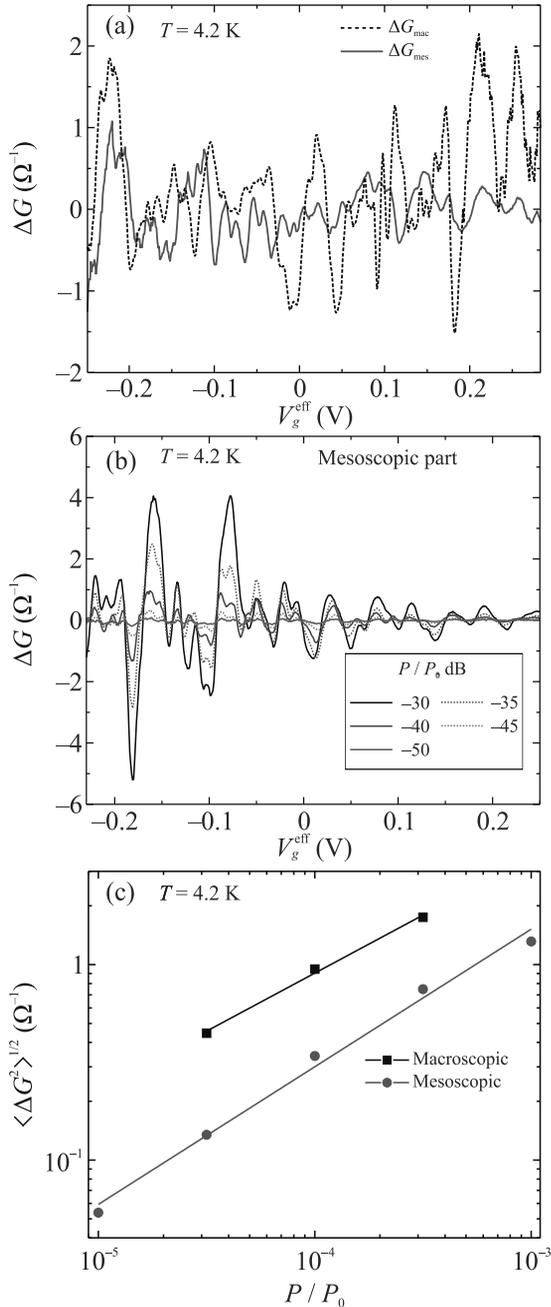


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость СВЧ-ФП $\Delta G(V_g^{\text{eff}})$ для макроскопической (пунктирная линия) и мезоскопической (сплошная линия) частей образца; (б) – зависимость СВЧ-ФП $\Delta G_{\text{mes}}(V_g)$ при разных значениях СВЧ-мощности P/P_0 (максимальная выходная мощность генератора $P_0 = 0.1$ Вт) для мезоскопической части образца; (с) – зависимости средней амплитуды флуктуаций фотопроводимости от СВЧ-мощности P/P_0 для макроскопической (квадратики) и мезоскопической (кружочки) частей образца. Сплошные линии – аппроксимирующие степенные зависимости

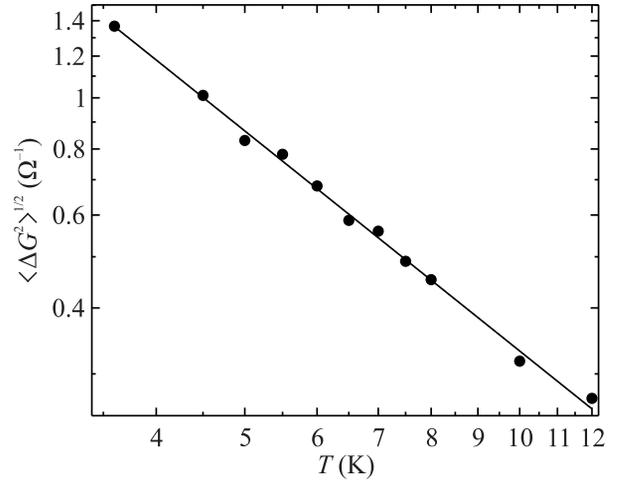


Рис. 3. Зависимость средней амплитуды флуктуаций СВЧ-фотопроводимости мезоскопической части образца от температуры T . Черные кружочки – измеренные значения, сплошная линия – аппроксимирующая зависимость $a \cdot T^b$, $a \approx 0.008$, $b \approx -1.39$

жено в работах [9, 10] и подтверждено экспериментально в [11]. Эта модель представляет собой перколяционную сетку геликоидальных краевых токовых состояний, в которых благодаря топологической защите запрещено обратное рассеяние, движение электрона является баллистическим. Тогда полная проводимость сетки и, соответственно, бесщелевой системы ДФ будет порядка $\sigma \approx e^2/h$, что и наблюдается в эксперименте [11]. Природа обнаруженной флуктуирующей микроволновой ФП также связана с обсуждаемой перколяционной сеткой, которая состоит из замкнутых кольцевых (не достигающих контактов) одномерных траекторий и открытых (достигающих контактов) таких же траекторий, число которых и определяет σ (рис. 4). Однако, в отличие от статической проводимости микроволновый отклик может быть вызван не только воздействием на открытые, но и на закрытые траектории, так как поглощение микроволнового излучения возможно электронами, двигающимися по обеим разновидностям траекторий. Следовательно, ФП может формироваться и электронами, двигающимися по замкнутым траекториям. Тогда ее флуктуации могут быть вызваны сильной неоднородностью вблизи порога протекания и связаны как с поглощением микроволнового излучения, так и с изменением локальных контактансов.

Перейдем теперь к теоретическому описанию описанной выше картины поведения микроволновой ФП. Исходный гамильтониан системы имеет следующий вид:

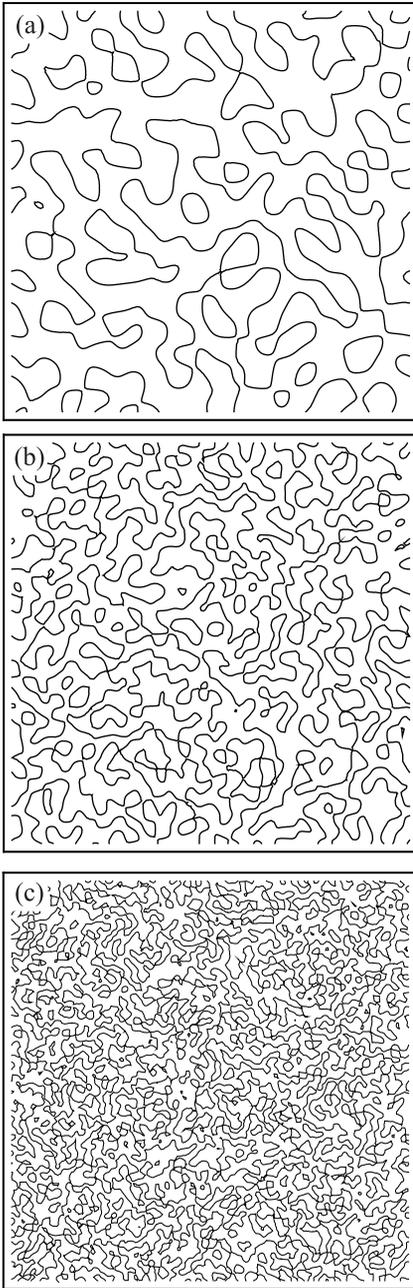


Рис. 4. Фрактальная структура краевых состояний вблизи порога перколяции. Краевые состояния образуются в окрестности линий уровня $\Delta(\mathbf{r}) = 0$, покрывающих весь образец. Панели (а), (б) и (с) соответствуют последовательному двукратному уменьшению параметра a

$$H = \begin{pmatrix} \Delta(\mathbf{r})/2 & v(p_x - ip_y) \\ v(p_x + ip_y) & -\Delta(\mathbf{r})/2 \end{pmatrix}.$$

Здесь $\Delta(\mathbf{r})$ – пространственно-зависящая щель, имеющая переменный знак, \mathbf{p} – оператор импульса, v – скорость.

Рассмотрим сначала прямолинейный край $x = 0$, $\Delta(\mathbf{r}) = \Delta_0 \tanh(x/\zeta)$. Здесь ζ – ширина перехода. В таком случае энергии краевых состояний равны $\varepsilon_n(p) = \pm \sqrt{\varepsilon_n^2 + v^2 p^2}$, где $\varepsilon_n^2 = 2n\zeta - n^2\zeta^2$, $n < \zeta/2$, p – импульс вдоль края [9, 10]. Состояния с $n = 0$ являются топологически защищенными, остальные нет. После проектирования на краевые состояния, гамильтониан приобретает диагональный вид с элементами $\varepsilon_n(p) = \pm \sqrt{\varepsilon_n^2 + v^2 p^2}$.

В системе со случайным $\Delta(\mathbf{r})$ краевые состояния образуются вдоль линий с нулевой щелью $\Delta(\mathbf{r}) = 0$. Бесщелевые линии могут быть открытыми и замкнутыми. На замкнутой бесщелевой линии длины l импульс квантуется, $p_j = j/l$, где j – целое. Если ζ велико, то заселены только состояния, удовлетворяющие неравенству $|\mu| < \varepsilon_n$. При $n = 0$ они образуют однозонную квантовую, а при большом n – почти классическую проволоку. Мы будем полагать, что реализуется первый случай.

Рассмотрим слой HgTe вблизи критической толщины $w \approx w_c = 6.3$ нм, когда средняя щель обращается в ноль в рамках теории перколяции. Разлагая Δ по $w - w_c$, имеем $\Delta = C(w - w_c)$. Параметр $w - w_c$ играет роль параметра близости перколяции к порогу. Среднеквадратичная флуктуация $\Delta(\mathbf{r})$ характеризуется планарным масштабом a , заменяющим ζ , и размахом Δ_0 . Известно, что в двумерном случае все линии уровня случайной функции замкнуты, за исключением единственной. Таким образом, задача сводится к описанию свойств линий уровня $\Delta(\mathbf{r}) = \mu$. Такая линия уровня окружает кластеры (см. рис. 4), где $\Delta(\mathbf{r}) < 0$ или $\Delta(\mathbf{r}) > 0$. Кластеры можно охарактеризовать числом узлов в них s , которое совпадает с площадью кластера, деленной на элемент площади a^2 . Средняя доля кластеров n_s с s узлами при $s \gg 1$ ведет себя как $n_s \propto s^{-\tau}$, где $\tau \approx 181/91$ при $s < s_c$, и экспоненциально убывает при $s > s_c$, где s_c – критическое число узлов, определяемое расстоянием до порога $s_c \sim \left(\frac{w_c}{w - w_c}\right)^{\tilde{\sigma}}$, $\tilde{\sigma} = 36/91$ [13]. Средний планарный радиус кластера связан с числом узлов соотношением $L_s \sim a s^{d_f}$, где $d_f = 91/48$ [13]. Периметр кластера, определяющий спектр замкнутых краевых состояний, определяется фрактальной размерностью периметра $d_h = 1.78$. В конечном образце размера $L \times L$ размер нужно сравнивать с корреляционной длиной $L_c \sim a \left(\frac{w - w_c}{w_c}\right)^{-\nu}$, $\nu = 4/3$. При $L \gg L_c$ система ведет себя как макроскопическая, при $L \ll L_c$ – отклики испытывают флуктуации порядка среднего значения. Структура краевых состояний при $L \ll L_c$ самоподобна, фрактальна.

Поглощение микроволнового излучения на краевом состоянии отсутствует для прямолинейного края. Напротив, искривленные краевые состояния с линейным спектром способны поглощать свет. Если частота света меньше расстояний до следующих подзон или они отсутствуют, поглощение однородного электромагнитного поля описывается гамильтонианом взаимодействия $H_{\text{int}} = (ev/c)\mathbf{A}\mathbf{t}(\eta)$, где $\mathbf{A} = \mathbf{E}/i\omega$ – вектор-потенциал внешнего электромагнитного поля, \mathbf{E} и ω – величина и частота электрического поля, $\mathbf{t}(\eta)$ – орт вдоль края в точке η .

Продольная часть волновой функции в точке с криволинейной координатой η вдоль края с длиной (периметром) P есть $|p\rangle = \frac{1}{\sqrt{P}}e^{ip\eta}$. Для замкнутых краевых состояний число переходов между ними под действием поля за единицу времени равно:

$$W = 4\pi \left(\frac{S}{a^2}\right) \sum_{p,p',\sigma=\pm 1,s} |Z|^2 n_s f(\sigma vp') (1 - f(\sigma vp)) \delta(v\sigma(p - p') - w),$$

где S площадь системы, $f(\varepsilon)$ – функция Ферми, $\sigma = \pm 1$ нумерует ветви спектра,

$$Z = \frac{ve}{i\omega P_s} \oint d\eta \mathbf{E}\mathbf{t}(\eta) e^{i(p-p')\eta}, \quad (1)$$

интеграл берется по периметру кластера P_s . Мы пренебрегли переходами между ветвями из-за их топологической защищенности.

Интеграл в (1) определяется фрактальной размерностью периметра. Его можно оценить с помощью периметра, измеряемого элементом длины $\pi/|p-p'|$. Считая такие элементы, числом $P_s|p-p'|/\pi$, независимо скоррелированными величинами $\sim \pm 1$, получим

$$Z \sim \frac{eEv}{\omega c} \left(\frac{v}{i\omega P_s}\right)^{1/2} \sim \frac{eEv}{\omega} \left(\frac{v}{i\omega a}\right)^{1/2} s^{-d_h/2d_f}.$$

При температуре $T = 0$ в результате получаем ФП

$$\begin{aligned} G(\omega) &= \frac{W}{E^2\omega S} = \frac{8\pi e^2 v}{\omega^2 a^3} \sum_{s_{\min}}^{s_{\max}} n_s s^{-d_h/d_f} \\ &= \frac{8\pi e^2 v}{\omega^2 a^3} \sum_{s_{\min}}^{s_{\max}} s^{-d_h/d_f - \tau}. \end{aligned}$$

Минимальное и максимальное значения s определяются частотой. Величина s_{\min} диктуется условием, что частота больше расстояния между уровнями, откуда следует $s_{\min} = \left(\frac{a\omega}{2\pi v}\right)^{d_f/d_h}$. Величина

s_{\max} определяется ограничениями на размер кластера, связанными с размерами системы и величиной s_c , определяемой близостью к порогу перколяции

$$s_{\max} = \min \left\{ \left(\frac{L}{a}\right)^{d_f}, \left(\frac{w_c}{w - w_c}\right)^{\tilde{\sigma}} \right\}.$$

Поскольку $\tau + d_h/d_f > 1$, сумма определяется нижним пределом,

$$\sum_{s_{\min}}^{s_{\max}} s^{-d_h/d_f - \tau} \approx \frac{s_{\min}^q}{q} = \frac{1}{q} \left(\frac{a\omega}{2\pi v}\right)^{(\tau-1)d_f/d_h+1}, \quad (2)$$

$$q = \tau + d_h/d_f - 1 \approx 1.93, \quad (\tau - 1)d_f/d_h + 1 \approx 2.05.$$

Вблизи порога перколяции $w \rightarrow w_c$, высокочастотный кондактанс и его флуктуации перестают зависеть от размера образца

$$\delta G(\omega) \sim G(\omega) \approx \frac{e^2}{\hbar} \frac{2\varepsilon_F}{\pi\hbar\omega} \left(\frac{2\pi a\omega}{v}\right)^{d_h} \frac{1}{qd_f} \left(\frac{w_c}{w - w_c}\right)^{\tilde{\sigma}}. \quad (3)$$

Так как размер типичных кластеров соизмерим с размером системы, флуктуации фотокондактанса становятся порядка среднего фотокондактанса. Вдали от порога формула (3) дает относительно слабый рост флуктуаций кондактанса с увеличением размера системы $(L/a)^q$, наблюдающийся в эксперименте. Это можно связать с переходом между двумя режимами в формуле (2).

Некоторые выводы можно также сделать, исходя из зависимости сопротивления системы ρ от размеров образца и наличия флуктуаций ρ в мезоскопических образцах. Величина ρ как в мезоскопической, так и в макроскопической части в максимуме соизмерима с квантом сопротивления, что согласуется с моделью проводимости по краевым состояниям. Изменение кондактанса под действием микроволнового излучения выявляет флуктуации и делает их заметными и в макроскопическом образце. Формально, это соответствует нелинейной связи тока с напряжением $J \sim G_0 U + G_3 U^3 + \dots$. Рассматривая потенциал в виде $U = U_0 + U_1 \cos \omega t$ и проводя усреднение второго слагаемого по времени, получим микроволновые поправки $3G_3 U_1^2/2$ к статическому кондактансу G_0 , пропорциональные микроволновой интенсивности. Поскольку знак нелинейной поправки G_3 произволен, она может давать произвольный знак флуктуаций полного кондактанса.

Вообще говоря, флуктуационный характер фотокондактанса свидетельствует о влиянии на него некоторых микроскопических вкладов. В рамках нашей модели предполагается, что роль таких вкладов играют узкие места для переходов между крае-

выми состояниями. Этому соответствует эквивалентная электрическая схема рис. 5. Эффективную нелинейную поправку можно получить в модели Дыхне [14, 15] системы из случайной двумерной смеси проводимостей σ_1 и σ_2 с равными концентрациями, величина

$$\langle \mathbf{E}^2 \rangle = \langle \mathbf{E} \rangle^2 \frac{\sigma_1 + \sigma_2}{\sqrt{\sigma_1 \sigma_2}}$$

[14, 15] расходится при $\sigma_1 \rightarrow 0$, $\sigma_2 \neq 0$. Эта расходимость демонстрирует большой вклад в ФП узких мест для переходов между краевыми состояниями.

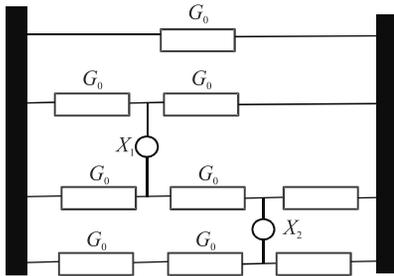


Рис. 5. (Цветной онлайн) Эквивалентная схема сетки краевых состояний. Все краевые состояния имеют кондактансы G_0 . Некоторые из них содержат слабые нелинейные связи с другими X_n . Общий кондактанс имеет порядок G_0 . Знак нелинейных поправок произволен, что определяет знакопеременный характер фотокондактанса

В заключение обсудим поведение микроволновой ФП при изменении температуры. Как видно из эксперимента (рис. 3), рост температуры приводит к уменьшению ее флуктуаций, т.е. и отрицательная, и положительная ФП подавляются. Это можно объяснить с точки зрения влияния температуры на краевой кондактанс через подавление когерентных процессов. Гипотетическое объяснение состоит в рассмотрении флуктуаций мгновенной структуры краевой сетки. Путешествие электрона по сетке происходит с переключением линий уровня. В результате становится возможным переход с одной линии уровня на другую с той же энергией. Этому способствует извилистость линий уровня, благодаря которой разные линии уровня близко подходят друг к другу. Переключение восстанавливает настоящую диффузию по всему пространству, а не только по заданной линии уровня. Эта картина может быть описана при помощи зависящей не только от координаты, но и от времени функции $\Delta(\mathbf{r}, t) = \Delta(\mathbf{r}) + \kappa \nabla \mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$, где $\mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$ – акустическая деформация. Электрон быстро движется по линии уровня, которая медленно деформируется, за счет чего линии уровня переключаются.

В области низких температур температурная зависимость флуктуаций кондактанса связана с наличием сбоя фазы на краевом состоянии. Длина периметра краевых состояний в блоках, из которых состоит проводящая цепочка, ограничивается длиной фазовой когерентности l_ϕ . Рассмотрим порог перколяции. Каждый из блоков, размером порядка $l_2 = a(l_\phi/a)^{1/d_f}$, в котором длина края достигает l_ϕ , превращается в отдельное сопротивление, включенное последовательно-параллельно в общую сеть. Величина такого сопротивления порядка h/e^2 . Флуктуации величины каждого сопротивления имеют такой же порядок. При последовательном включении сопротивления складываются, поэтому сопротивление $\sim L/l_2 h/e^2$, а флуктуация сопротивления $\sim \sqrt{L/l_2} h/e^2$. При параллельном соединении складываются проводимости и флуктуации кондактанса равны $\sqrt{L/l_2} e^2/h$. В обоих случаях $\delta G/\langle G \rangle \sim \sqrt{l_2/L}$. Если $l_\phi = l_0(T_0/T)^2$, это дает степенную зависимость $\delta G/\langle G \rangle \propto l_\phi^{1/2 d_f} \propto T^{-1/d_f}$. Полученная зависимость качественно согласуется с экспериментальной (см. рис. 3), т.е. амплитуда ФП падает с ростом температуры по степенному закону, но с показателем степени, отличным от найденного экспериментально.

Таким образом, в данной работе сообщается о наблюдении микроволновой ФП системы бесщелевых ДФ в HgTe квантовых ямах критической толщины, флуктуирующей при изменении затворного напряжения с амплитудой, растущей с увеличением размеров проводника и при уменьшении температуры. Предложена теоретическая модель обнаруженной ФП, основанная на предположении о том, что указанная система представляет собой перколяционную сетку геликоидальных токовых состояний, микроволновая ФП которой слабо растет при увеличении размеров в силу фрактального характера указанной сетки.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда # 23-72-30003, <https://rscf.ru/project/23-72-30003/>.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. B. Büttner, C. X. Liu, G. Tkachov, E. G. Novik, C. Brüne, H. Buhmann, E. M. Hankiewicz, P. Recher, B. Trauzettel, S. C. Zhang and L. W. Molenkamp, *Nature Phys.* **7**, 418 (2011).
2. Z. D. Kvon, S. N. Danilov, D. A. Kozlov, C. Zoth, N. N. Mikhailov, S. A. Dvoretiskii, and S. D. Ganichev, *JETP Lett.* **94**, 816 (2011).

3. G. Tkachev, C. Thienel, V. Pinneker, B. Büttner, C. Brüne, H. Buhmann, L.W. Molenkamp, and E.M. Hankiewicz, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 076802 (2011).
4. D.A. Kozlov, Z.D. Kvon, N.N. Mikhailov, and S.A. Dvoret'skii, *JETP Lett.* **96**, 730 (2012).
5. C. Zoth, P. Olbrich, P. Vierling, K.-M. Dantscher, V.V. Bel'kov, M.A. Semina, M.M. Glazov, L.E. Golub, D.A. Kozlov, Z.D. Kvon, N.N. Mikhailov, S.A. Dvoret'sky, and S.D. Ganichev, *Phys. Rev. B* **90**, 205415 (2014).
6. D.A. Kozlov, Z.D. Kvon, N.N. Mikhailov, *JETP Lett.* **100**, 724 (2014).
7. A.M. Shuvaev, V. Dziom, N.N. Mikhailov, Z.D. Kvon, Y. Shao, D.N. Basov, and A. Pimenov, *Phys. Rev. B* **96**, 155434 (2017).
8. A. Shuvaev, V. Dziom, J. Gospodarić, E.G. Novik, A.A. Dobretsova, N.N. Mikhailov, Z.D. Kvon, and A. Pimenov, *Nanomaterials* **12**, 2492 (2022).
9. M.M. Mahmoodian and M.V. Entin, *Phys. Status Solidi b* **256**, 1800652 (2019).
10. M.M. Mahmoodian and M.V. Entin, *Phys. Rev. B* **101**, 125415 (2020).
11. G.M. Gusev, Z.D. Kvon, D.A. Kozlov, E.B. Olshansky, M.V. Entin, N.N. Mikhailov, *2D Mater.* **9**, 015021 (2022).
12. B.L. Al'tshuler and D.E. Khmel'nitskii, *JETP Lett.* **42**, 359 (1985).
13. D. Stauffer and A. Aharony, *Introduction to Percolation Theory*, 2nd revised edition, Taylor & Francis, London (2003), p. 52.
14. A.M. Dykhne, *Soviet Physics JETP* **32**, 63 (1971).
15. M.V. Entin, *Semiconductors* **31**, 829 (1997).

Знакопеременная девиация одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта

В. Я. Кирпиченков¹⁾, Н. В. Кирпиченкова, Е. Р. Кулиничев

Южно-Российский государственный политехнический университет (НПИ) имени М. И. Платова,
346428 Новочеркасск, Россия

Поступила в редакцию 21 января 2024 г.

После переработки 21 мая 2024 г.

Принята к публикации 21 мая 2024 г.

В области низких температур и напряжений: $0 \leq |eV| \ll T \ll \Delta_0$ получена формула для одночастичной вольт-амперной характеристики $J(V, T, c, \beta)$ “грязного” (малые концентрации одинаковых немагнитных примесей в I-слое) SIN-контакта (S – сверхпроводник, I – неупорядоченный изолятор, N – нормальный металл), где: e – модуль заряда электрона, Δ_0 – сверхпроводящая щель в S-береге контакта при температуре $T = 0$, V – напряжение на контакте, $c \ll 1$ – безразмерная концентрация примесей в I-слое, $\beta = (\varepsilon_0 - \mu)/\Delta_0$ – безразмерная девиация актуального для данной задачи однопримесного электронного энергетического уровня ε_0 (на одинаковых примесях в I-слое) относительно уровня μ электронного химпотенциала контакта. Показано, что присутствие случайных узкозонных квантовых закороток в неупорядоченном I-слое приводит в некоторой ограниченной области $\Omega_d(c, \beta)$ на плоскости параметров (c, β) к аномально сильной знакопеременной девиации одночастичной вольт-амперной характеристики грязного SIN-контакта относительно одночастичной вольт-амперной характеристики этого же грязного контакта, вычисляемой по формуле существующей теории. На численном примере продемонстрировано, что относительная девиация одночастичной ВАХ для характерных значений параметров грязного SIN-контакта в области $\Omega_d(c, \beta)$ может достигать нескольких порядков, что обеспечивает возможность экспериментального проявления этого эффекта. Обсуждены условия применимости рассмотренной модели грязного SIN-контакта, предложена принципиальная схема соответствующего эксперимента.

DOI: 10.31857/S1234567824120103, EDN: WWOOPE

1. Введение. Экспериментальные и теоретические исследования низкотемпературного квантового электронного транспорта в SIN-контактах и структурах на их основе мотивируются, как перспективами их практического применения, например, в высокоточных болометрах, низкотемпературных термометрах, устройствах электронного охлаждения, так и логикой развития квантовой теории гибридных мезоскопических структур в области низких температур. Краткий обзор этой тематики приведен в работе [1], в которой, среди прочего, изложены результаты проведенных авторами экспериментальных исследований вольт-амперной характеристики (ВАХ) SIN-контактов в области низких температур и напряжений: $0 \leq |eV|, T \ll \Delta_0$. При этом обнаружены значительные расхождения результатов экспериментов и существующей теории ВАХ SIN-контактов [2, 3] (см. рис. 3 и комментирующий его текст в работе [1]).

Авторами [1] констатируется, что эти расхождения существующей теории и эксперимента обусловлены, по-видимому, тем, что в существующей тео-

рии не учтены все факторы, существенно влияющие на проводимость SIN-структур. В этом контексте авторами отмечено, среди прочего, возможное влияние на характеристики контактов процессов взаимодиффузии материалов контактов, процессов отжига и коррозии. Очевидно, что в результате протекания этих процессов в оксидном I-слое контакта могут оказаться, хотя бы и в малых концентрациях, случайно распределенные по объему этого слоя немагнитные примеси, например, не окисленные в ходе технологического процесса изготовления туннельного контакта атомы одного из его металлических берегов. В этом случае актуальные для рассматриваемой здесь задачи квазилокальные однопримесные электронные энергетические уровни ε_0 в I-слое находятся в ближайшей окрестности равновесного электронного химпотенциала μ грязного SIN-контакта: $0 \leq |\varepsilon_0 - \mu| \ll \mu$, $U_0 - \mu$, где U_0 – барьерный потенциал I-слоя. В таком слабо неупорядоченном I-слое имеются случайные узкозонные квантовые закоротки [4, 5], которые могут оказывать существенное влияние на низкотемпературный квантовый электрон-

¹⁾e-mail: wkirpich@rambler.ru

ный транспорт в грязных SIN-контактах, не учитываемое существующей теорией.

Поскольку при экспериментальных исследованиях низкотемпературной ВАХ грязного SIN-контакта измеряемый ток является суммой одночастичного и двухчастичного – андреевского [6] токов, то необходимо изучать влияние случайных квантовых закороток на каждое из этих слагаемых в отдельности. В этой работе рассматривается только одночастичный ток в грязном SIN-контакте, вклад которого в суммарный ток может быть не только теоретически, но и экспериментально выделен в области температур $T_A < T < \Delta_0$, где $T_A \ll \Delta_0$ – температура кроссовера между одночастичным и двухчастичным туннелированием (см. рис. 2 и комментирующий его текст в [1], а также п. 6 в настоящей статье).

В существующей теории [3, 7] формула для одночастичной ВАХ SIN-контакта в области параметров $0 \leq |eV|, T \ll \Delta_0$ имеет вид:

$$J(V, T) = \frac{G_n}{e} \sqrt{2\pi\Delta_0 T} e^{-\Delta_0/T} \operatorname{sh}\left(\frac{eV}{T}\right), \quad (1)$$

где G_n – линейный кондактанс контакта в нормальном (NIN) состоянии при $T = 0$.

Отметим, что формула (1) получена в рамках стандартного предположения существующей теории низкотемпературного квантового электронного транспорта в SIN-контактах, состоящего в том, что вероятность туннелирования электронов через I-слой практически не зависит от их энергии ε , (отсчитываемой от уровня μ) на актуальных для рассматриваемой задачи масштабах $0 \leq |\varepsilon| \sim \Delta_0 \ll \mu$, $U_0 - \mu$, в отличие от вероятности туннелирования в исследуемой здесь модели грязного SIN-контакта, которая в области $\Omega_d(c, \beta)$ на тех же масштабах является резко неоднородной функцией энергии ε , имеющей ярко выраженные туннельные резонансы, ассоциированные со случайными узкозонными ($\gamma/\Delta_0 < 1$, где γ – энергетическая ширина туннельного резонанса) квантовыми закоротками в неупорядоченном I-слое [4, 5]. В связи с этим возникает естественный теоретический вопрос – сводится ли влияние случайных узкозонных квантовых закороток на одночастичную ВАХ грязного SIN-контакта лишь к “перенормировке” (в сторону увеличения) кондактанса G_n в формуле (1)? Или в контексте эксперимента – пригодна ли формула (1) для описания экспериментальной одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта, если в нее подставлять полученное в результате прямого измерения экспериментальное значение кондактанса G_n этого грязного контакта?

В работе [8] дан отрицательный ответ на этот вопрос. Там показано, что в частном случае – при $\beta = (\varepsilon_0 - \mu)/\Delta_0 = 0$ – присутствие случайных узкозонных квантовых закороток в неупорядоченном I-слое приводит к значительной отрицательной девиации одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта – значительному недостатку тока по отношению к одночастичной ВАХ (1) с перенормированными квантовыми закоротками кондактансом G_n . Иными словами – в этом случае формула (1) дает значительно завышенное значение одночастичного тока в грязном SIN-контакте.

Ниже показано, что в общем случае ($|\beta| \geq 0$) присутствие случайных узкозонных квантовых закороток в неупорядоченном I-слое приводит в некоторой ограниченной области $\Omega_d(c, \beta)$ на плоскости параметров (c, β) к сильной знакопеременной девиации одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта относительно одночастичной ВАХ этого же грязного SIN-контакта, вычисляемой по формуле (1) существующей теории. Получено уравнение, решение которого задает на плоскости (c, β) линию кроссовера $\beta_c(c)$ – демаркационную кривую, разделяющую область $\Omega_d(c, \beta)$ на две подобласти: $\Omega_d^-(c, \beta) = \Omega_d^-(c, \beta) + \Omega_d^+(c, \beta)$, где $\Omega_d^-(c, \beta)$ – подобласть с сильной отрицательной девиацией ВАХ (недостаток тока), $\Omega_d^+(c, \beta)$ – подобласть с сильной положительной девиацией ВАХ (избыток тока). Для характерных значений параметров грязного SIN-контакта приведен численный пример, иллюстрирующий вышеописанный “сценарий” и, в том числе, показывающий, что относительная девиация одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта может достигать нескольких порядков, что обеспечивает возможность экспериментального проявления этого эффекта. Обсуждены условия применимости рассмотренной модели грязного SIN-контакта, предложена принципиальная схема соответствующего эксперимента.

2. Модель. В области низких температур и напряжений $0 \leq |eV|, T \ll \Delta_0$ рассматривается модель грязного SIN-контакта в виде сэндвича, представляющего собой чистые (без примесей) массивные S и N берега, разделенные плоским тонким I-слоем толщиной L и площадью S со случайно распределенными в нем одинаковыми притягивающими электроны немагнитными примесями. Регулярный (не возмущенный примесями) барьерный потенциал I-слоя равен $U_0 = \text{const} > \mu$, электроны в I-слое предполагаются невзаимодействующими как между собой, так и с другими квазичастицами, а их подбарьерное рассеяние на примесях – упругим. Энергия ε_0 актуального для данной задачи квазилокального одно-

примесного электронного энергетического уровня на одинаковых примесях в I-слое находится в ближайшей окрестности равновесного электронного химпотенциала контакта: $0 \leq |\varepsilon_0 - \mu| \ll \mu$, $U_0 - \mu$. Радиус локализации электронного состояния на этом уровне равен $\alpha^{-1} = [2m_e(U_0 - \varepsilon_0)/\hbar^2]^{-1/2}$. По объему $V_i = LS$ неупорядоченного I-слоя макроскопически однородно распределены $N_i \gg 1$ примесей с плотностью $n = N_i/V_i$, $c = n\alpha^{-3} \ll 1$ – их безразмерная концентрация. Таким образом, для неупорядоченного I-слоя принята модель слабого ($c \ll 1$) структурного (горизонтального, недиагонального) беспорядка Лифшица [9].

В рамках этой модели в неупорядоченном I-слое имеются маловероятные флуктуации пространственного расположения примесей в виде уединенных, слабоизвилистых, квазиэквидистантных (почти одинаковые расстояния между соседними примесями) цепочек из $m = 1, 2, 3, \dots$ примесей, соединяющих противоположные берега контакта. В пространственно узких трубках (радиусом $\sim \alpha^{-1}$) вдоль этих цепочек сосредоточены специфические пути упругого туннелирования электронов – квантовые резонансно-перколяционные траектории (КРПТ) [10, 11], с которыми ассоциированы достаточно узкие энергетические зоны резонансной туннельной прозрачности – туннельные резонансы, “центрированные” на энергию уровня ε_0 , энергетические ширины которых $\gamma_m \ll \mu$, $U_0 - \mu$. Хотя коэффициенты упругого прохождения электронов вдоль КРПТ и достаточно малы – для типичных значений параметров грязного SIN-контакта $D_m^{\text{res}} \sim 10^{-3} \div 10^{-4}$, но они на несколько порядков больше коэффициентов прохождения вдоль других путей туннелирования через I-слой: $D_0 \sim 10^{-9} \div 10^{-10}$ (см. п. 6). Такие уединенные квазиэквидистантные цепочки примесей являются своеобразными “параллельно включенными” случайными квантовыми закоротками в слабо неупорядоченном I-слое. Хотя статистические веса случайных квантовых закороток (определяемые совместным выполнением упомянутых выше условий: уединенности, слабой извилистости и квазиэквидистантности) и весьма малы, именно квантовые закоротки, за счет достаточно больших, по сравнению с другими путями (в обход квантовых закороток), значений коэффициентов прохождения D_m^{res} , определяют характер упругого низкотемпературного квантового электронного транспорта в грязных МИМ (M = N, S) туннельных контактах в достаточно широких областях $\Omega_d(c, \beta)$. Краткий обзор соответствующих работ приведен в [4].

Слабо неупорядоченный I-слой имеет достаточно большую площадь S , необходимую для “подавления” обусловленных случайными квантовыми закоротками мезоскопических флуктуаций кондактанса G_n грязного контакта [11]:

$$\sqrt{S} \gg \alpha^{-1} c^{-1/2} \exp\left[\frac{c\pi\mathcal{L}^3}{2}\right], \quad \mathcal{L} = \alpha L. \quad (2)$$

При выполнении (2) описание одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта на основе лишь среднего по ансамблю случайных примесных конфигураций в I-слое кондактанса G_n является вполне адекватным.

Для электронов проводимости в N-береге контакта принята модель ферми-газа с изотропным квадратичным законом дисперсии $\varepsilon(\mathbf{p}) = \mathbf{p}^2/2m_e$, в S-береге – модель БКШ (Бардина–Купера–Шриффера).

3. Одночастичный ток через квантовую закоротку. Одночастичный ток через уединенную m -примесную квантовую закоротку в грязном SIN-контакте представим в виде [7, 8]:

$$i^{(m)}(V, T, \delta, u) = \frac{4e}{\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{q}} |T_{\mathbf{p}, \mathbf{q}}^{(m)}(\delta, u)|^2 \times \\ \times \text{Im} G_N^R(\varepsilon + eV, \mathbf{p}) \text{Im} G_S^R(\varepsilon, \mathbf{q}) \times \\ \times [n_F(\varepsilon, T) - n_F(\varepsilon + eV, T)] d\varepsilon, \quad (3)$$

где $\delta = \varepsilon_0 - \mu$, $|\delta| \ll \mu$, $U_0 - \mu$, u – “шаг” квантовой закоротки, безразмерное (в единицах α^{-1}) среднее расстояние между соседними примесями в квазиэквидистантной квантовой закоротке,

$$\text{Im} G_N^R(\varepsilon + eV, \mathbf{p}) \equiv \text{Im} G_N^R(\varepsilon + eV, \xi_{\mathbf{p}}) = \\ = -\pi\delta(\varepsilon + eV - \xi_{\mathbf{p}}), \quad (4)$$

$$\text{Im} G_S^R(\varepsilon, \mathbf{q}) \equiv \text{Im} G_S^R(\varepsilon, \xi_{\mathbf{q}}) = \\ = -\pi(\varepsilon + \xi_{\mathbf{q}})\delta(\varepsilon^2 - \xi_{\mathbf{q}}^2 - \Delta^2) \text{sign}(\varepsilon), \quad (5)$$

– мнимые части запаздывающих одночастичных функций Грина в N и S берегах контакта соответственно,

$$\xi_{\mathbf{p}} = \frac{\mathbf{p}^2}{2m_e} - \mu, \quad \text{sign}(\varepsilon) = \begin{cases} -1, & \varepsilon < 0, \\ +1, & \varepsilon > 0. \end{cases} \\ n_F(\varepsilon, T) = \left(e^{\varepsilon/T} + 1\right)^{-1} \quad (6)$$

– фермиевская функция распределения, $T_{\mathbf{p}, \mathbf{q}}^{(m)}(\delta, u)$ – матричные элементы туннельного гамильтониана для “виртуального” SIN-контакта, в котором ток течет лишь через рассматриваемую здесь квантовую закоротку:

$$\hat{H}_T^{(m)}(\delta, u) = \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{q}, \sigma} T_{\mathbf{p}, \mathbf{q}}^{(m)}(\delta, u) \hat{a}_{\mathbf{p}, \sigma}^+ \hat{b}_{\mathbf{q}, \sigma} + \text{h. c.} \quad (7)$$

Гамильтониан (7) описывает гибридизацию электронных состояний в различных берегах контакта, обусловленную их туннельной связью через квантовую закоротку, $\hat{a}_{\mathbf{p},\sigma}$, $\hat{b}_{\mathbf{q},\sigma}$ – операторы уничтожения электронов в N и S берегах контакта соответственно, σ – проекция спина электрона.

Переходя в (3) от сумм по \mathbf{p}, \mathbf{q} к интегралам по $\xi_{\mathbf{p}}$, $\xi_{\mathbf{q}}$ и вычисляя эти интегралы, получаем:

$$i^{(m)}(V, T, \delta, u) = \frac{4\pi e \nu_1(0) \nu_2(0)}{\hbar} \times \int_{|\varepsilon| > \Delta} |T^{(m)}(\varepsilon, \delta, u)|^2 \frac{|\varepsilon|}{\sqrt{\varepsilon^2 - \Delta^2}} \times [n_F(\varepsilon, T) - n_F(\varepsilon + eV, T)] d\varepsilon, \quad (8)$$

где $\nu_1(0) = \nu_1(\varepsilon = 0)$, $\nu_2(0) = \nu_2(\varepsilon = 0)$ – одночастичные плотности электронных состояний на уровне Ферми в берегах грязного контакта в нормальном (NIN) состоянии,

$$|T^{(m)}(\varepsilon, \delta, u)|^2 \equiv |T^{(m)}(\varepsilon, \varepsilon, \delta, u)|^2 \sim D_m^{res}(\varepsilon, \delta, u) \quad (9)$$

– усредненный по направлению импульсов \mathbf{p}, \mathbf{q} (и поэтому зависящий только от сохраняющейся при упругом туннелировании полной энергии ε туннелирующего электрона) квадрат диагонального по ε матричного элемента туннельного гамильтониана (7), пропорциональный усредненному подобным же образом коэффициенту упругого прохождения электроном квантовой закоротки [11]:

$$D_m^{res}(\varepsilon, \delta, u) \sim \exp \left[-\frac{(\varepsilon - \delta)^2}{\gamma_m^2(u)} \right], \quad (10)$$

где

$$\gamma_m(u) = 4(U_0 - \varepsilon_0)u^{-1}e^{-u} \quad (11)$$

– энергетическая ширина туннельного резонанса, ассоциированного с квантовой закороткой.

С учетом (10) формулу (9) перепишем в виде равенства

$$|T^{(m)}(\varepsilon, \delta, u)|^2 = |T_0^{(m)}|^2 \exp \left[-\frac{(\varepsilon - \delta)^2}{\gamma_m^2(u)} \right], \quad (12)$$

где в соответствии с идеологией метода туннельного гамильтониана неизвестный параметр $|T_0^{(m)}|^2$ выражается через линейный ($|eV| \ll \gamma_m(u)$) туннельный кондактанс квантовой закоротки в нормальном состоянии виртуального контакта при $T = 0$. Для получения этой связи в формуле (3) сделаем замену $\text{Im } G_S^R(\varepsilon, \mathbf{q}) \rightarrow \text{Im } G_N^R(\varepsilon, \mathbf{q})$ и вычислим ток через квантовую закоротку при $T = 0$, после чего находим искомую связь:

$$|T_0^{(m)}|^2 = \frac{\hbar}{4\pi e^2 \nu_1(0) \nu_2(0)} g_n^{(m)}(\delta, u, T = 0) \exp \left[\frac{\delta^2}{\gamma_m^2(u)} \right], \quad (13)$$

где [5]:

$$g_n^{(m)}(\delta, u, T = 0) = \sigma_0 \frac{e^2}{2\pi\hbar} \exp \left[-\frac{\delta^2}{\gamma_m^2(u)} \right] \quad (14)$$

– линейный кондактанс квантовой закоротки в нормальном состоянии виртуального контакта при $T = 0$, $\sigma_0 = (U_0 - \varepsilon_0)\varepsilon_0/(2\pi^4 U_0^2)$.

Вычисляя интеграл (8) с учетом соотношений (12), (13) при $0 \leq |eV| \ll T \ll \Delta_0, \gamma_m(u)$, представим формулу для одночастичного тока через квантовую закоротку в виртуальном SIN-контакте в следующем виде:

$$i^{(m)}(V, T, \delta, u) = \left[\frac{g_n^{(m)}(\delta, u, T = 0)}{e} \sqrt{2\pi\Delta_0 T} e^{-\Delta_0/T} \text{sh} \left(\frac{eV}{T} \right) \right] \varphi_m(\delta, u), \quad (15)$$

где выражение в квадратной скобке интерпретируется как правая часть формулы (1) для одночастичной ВАХ виртуального SIN-контакта,

$$\varphi_m(\delta, u) = \exp \left[-\frac{\Delta_0^2}{\gamma_m^2(u)} \right] \text{ch} \left(\frac{2\Delta_0\delta}{\gamma_m^2(u)} \right) \quad (16)$$

– мультипликатор, учитывающий девиацию одночастичной ВАХ (15) виртуального SIN-контакта относительно одночастичной ВАХ (1) для этого же виртуального контакта.

Вводя безразмерные переменные: энергетическую ширину туннельного резонанса $\eta = \gamma_m(u)/\Delta_0$ и девиацию однопримесного уровня $\beta = \delta/\Delta_0$, представим мультипликатор (16) в виде:

$$\varphi(\eta, \beta) = \exp \left(-\frac{1}{\eta^2} \right) \text{ch} \left(\frac{2\beta}{\eta^2} \right). \quad (17)$$

Решение уравнения

$$\varphi(\eta, \beta) = 1 \quad (18)$$

задает на плоскости (η, β) линию кроссовера – двузначную демаркационную кривую

$$\beta_c^\pm(\eta) = \pm \frac{\eta^2}{2} \text{Arch}(e^{1/\eta^2}), \quad (19)$$

разделяющую области с недостатком ($\varphi(\eta, \beta) < 1$ – отрицательная девиация: $d(\eta, \beta) = \varphi(\eta, \beta) - 1 < 0$) и избытком ($\varphi(\eta, \beta) > 1$ – положительная девиация: $d(\eta, \beta) = \varphi(\eta, \beta) - 1 > 0$) тока на одночастичной ВАХ виртуального SIN-контакта (рис. 1).

Функция $\beta_c^\pm(\eta)$ является универсальной функцией своего аргумента η – одинаковой для всех квантовых закороток с различными значениями m и u .

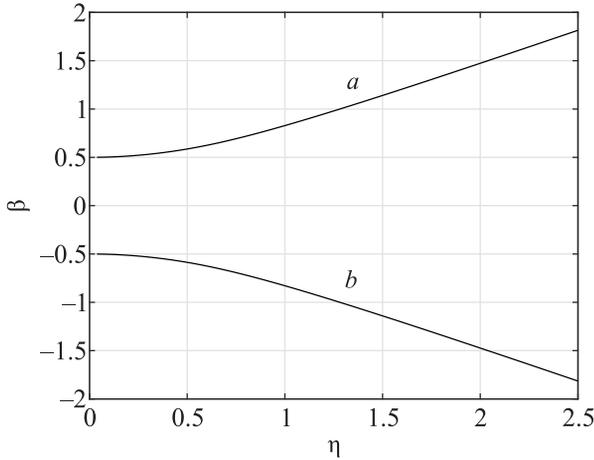


Рис. 1. Линии кроссовера: $\beta_c^+(\eta)$ – кривая a , $\beta_c^-(\eta)$ – кривая b . В области между этими кривыми $\varphi(\eta, \beta) < 1$, вне этой области $\varphi(\eta, \beta) > 1$

На рисунке 2 приведены графики зависимостей логарифмического индекса $\tau(\eta, \beta)$ мультипликатора (17) от безразмерной девиации уровня β в интервале $-2 \leq \beta \leq 2$ для двух значений безразмерной ширины туннельного резонанса: $\eta = 0.2, 0.5$:

$$\tau(\eta, \beta) = \lg \varphi(\eta, \beta). \tag{20}$$

Эти графики демонстрируют:

1) ярко выраженную знакопеременную девиацию $d(\eta, \beta) = \varphi(\eta, \beta) - 1$ одночастичной ВАХ виртуального SIN-контакта с узкозонной ($\eta < 1$) квантовой закороткой;

2) при $\eta = 0.2$ демаркационные значения $\beta_c^\pm \simeq \pm 0.5$, при $\eta = 0.5$ соответственно $\beta_c^\pm \simeq \pm 0.6$;

3) с увеличением η мультипликатор $\varphi(\eta, \beta)$ приближается к единице, а, как видно из (17), в формальном пределе $\eta \rightarrow \infty$ (классическая широкозонная закоротка) мультипликатор $\varphi(\eta = \infty, \beta) = 1$, т.е. девиация одночастичной ВАХ отсутствует.

4. Одночастичная ВАХ грязного SIN-контакта. Суммируя токи (15) по всем уединенным “параллельно включенным” случайным квантовым закороткам с различными значениями m и u (с учетом их статистического веса) и учитывая вклад в ток чистого ($c = 0$) контакта, получаем следующее представление для одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта:

$$J(V, T, c, \beta) = \left[\frac{G_n(c, \beta)}{e} \sqrt{2\pi\Delta_0 T} e^{-\Delta_0/T} \operatorname{sh} \left(\frac{eV}{T} \right) \right] \Phi(c, \beta), \tag{21}$$

где $\beta = \delta/\Delta_0$, выражение в квадратных скобках совпадает с ВАХ (1) существующей теории, но с перенормированным квантовыми закоротками линейным

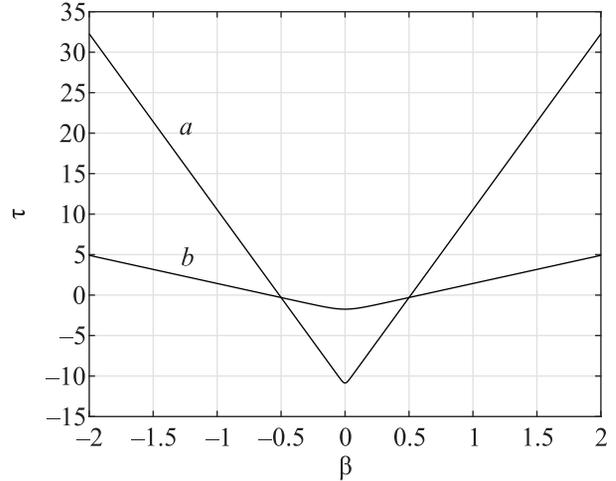


Рис. 2. Логарифмический индекс $\tau(\eta, \beta)$ мультипликатора $\varphi(\eta, \beta)$: $\tau(\eta = 0.2, \beta)$ – кривая a , $\tau(\eta = 0.5, \beta)$ – кривая b .

кондактансом $G_n(c, \beta)$ этого контакта в нормальном состоянии при $T = 0$:

$$G_n(c, \beta) = S[g_0 + \operatorname{Sp}\langle \hat{g} \rangle(c, \beta)] \tag{22}$$

$$\Phi(c, \beta) = \frac{g_0 + \operatorname{Sp}\langle \hat{g}\hat{\varphi} \rangle(c, \beta)}{g_0 + \operatorname{Sp}\langle \hat{g} \rangle(c, \beta)} \tag{23}$$

– мультипликатор, учитывающий девиацию одночастичной ВАХ (21) относительно одночастичной ВАХ (1), $g_0 = G_{0n}/S$, $\langle \dots \rangle$ – символ усреднения по случайным конфигурациям примесей в I-слое,

$$G_{0n} = S\alpha^2 \frac{8(U_0 - \mu)\mu}{\pi U_0^2 \mathcal{L}} e^{-2\mathcal{L}} \left(\frac{e^2}{2\pi\hbar} \right) \tag{24}$$

– туннельный кондактанс чистого контакта в нормальном состоянии при $T = 0$ [5], $\mathcal{L} = \alpha L$ – безразмерная толщина I-слоя,

$$\operatorname{Sp}\langle \hat{g} \rangle(c, \beta) = \sum_m \int_{\mathcal{L}/m}^{\infty} p_m(c, u) g_n^{(m)}(\beta, u, T = 0) du, \tag{25}$$

$$\operatorname{Sp}\langle \hat{g}\hat{\varphi} \rangle(c, \beta) = \sum_m \int_{\mathcal{L}/m}^{\infty} p_m(c, u) \times g_n^{(m)}(\beta, u, T = 0) \varphi_m(\beta, u) du, \tag{26}$$

$$p_m(c, u) = \alpha^2 c^m e^{-cm\pi u^3} [u^2 \theta^2(m, u)]^{m-1} \tag{27}$$

– вероятность (на единицу площади контакта) образования уединенной m - примесной квантовой закоротки с шагом u , $\theta(m, u) \ll 1$ – угол, характеризующий извилистость квантовой закоротки, $\theta^2(m, u) = 2(mu/\mathcal{L} - 1)$ [10, 11].

Заметим, что поскольку из-за экспоненциально быстрого убывания вероятности $p_m(c, u)$ (27) при увеличении аргумента u , главный вклад в интегралы (25), (26) накапливается вблизи нижнего предела $u_{\min} = \mathcal{L}/m$, то верхний предел в этих интегралах формально можно положить равным $u_{\max} = \infty$.

Анализ формул (21)–(27) показывает:

1. Поскольку, в соответствии с (17), при $\beta = 0$ все “парциальные” мультипликаторы $\varphi_m < 1$, а в формальном пределе $|\beta| \rightarrow \infty$ все $\varphi_m > 1$, то из (23), (25), (26) следует, что при $\beta = 0$ мультипликатор $\Phi < 1$, а при $|\beta| \rightarrow \infty$ мультипликатор $\Phi > 1$. Это означает, что уравнение

$$\Phi(c, \beta) = 1 \tag{28}$$

имеет решение, которое задает на плоскости (c, β) линию кроссовера – демаркационную кривую $\beta_c(c)$, разделяющую на этой плоскости область $\Phi(c, \beta) < 1$ – с недостатком тока (отрицательная девиация: $D(c, \beta) = \Phi(c, \beta) - 1 < 0$) и область $\Phi(c, \beta) > 1$ – с избытком тока (положительная девиация: $D(c, \beta) = \Phi(c, \beta) - 1 > 0$) на одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта.

2. Так как в силу (14), (16), (17), (23), (25), (26) мультипликатор $\Phi(c, \beta)$ инвариантен относительно замены $\beta \rightarrow -\beta$, то линия кроссовера $\beta_c(c)$ имеет две ветви $\beta_c^+(c)$ и $\beta_c^-(c)$, симметричные относительно оси $\beta = 0$.

3. На плоскости параметров (c, β) существует ограниченная область $\Omega_d(c, \beta)$, внутри которой осуществляется сильная знакопеременная девиация $D(c, \beta)$ одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта. Линия кроссовера $\beta_c(c)$ делит эту область на две подобласти:

$$\Omega_d(c, \beta) = \Omega_d^-(c, \beta) + \Omega_d^+(c, \beta), \tag{29}$$

где $\Omega_d^-(c, \beta)$ – подобласть с сильной отрицательной девиацией ВАХ, расположенная между кривыми $\beta_c^+(c)$ и $\beta_c^-(c)$, $\Omega_d^+(c, \beta)$ – подобласть с сильной положительной девиацией ВАХ.

4. В области параметров $\Omega_d(c, \beta)$ величина “приведенного” тока (21)

$$F(c, \beta) = \frac{J(V, T, c, \beta)}{J(V, T, c, \beta = 0)} = \frac{G_n(c, \beta)\Phi(c, \beta)}{G_n(c, \beta = 0)\Phi(c, \beta = 0)} \tag{30}$$

имеет два ярко выраженных максимума вблизи линий $\beta = \pm 1$.

В следующем пункте приведен численный пример, иллюстрирующий описанный выше “сценарий”.

5. Численный пример. На основе формул (21)–(27) проведено численное исследование влияния де-

виации примесного уровня $\beta = (\varepsilon_0 - \mu)/\Delta_0$ на одночастичный ток $J(V, T, c, \beta)$ (21) и мультипликатор $\Phi(c, \beta)$ (23) для следующих характерных значений параметров грязного SIN-контакта: $U_0 = 10$ эВ, $\mu = 5$ эВ, $\Delta_0 = 10^{-3}$ эВ, $\mathcal{L} = 10$. Показано, что при этих значениях параметров случайные квантовые закоротки оказывают сильное влияние на одночастичный ток J и мультипликатор Φ в области $\Omega_d = \{10^{-6} \leq c \leq 10^{-4}, -2 \leq \beta \leq 2\}$ на плоскости параметров (c, β) . В этой области главные вклады в величины J и Φ дают наиболее вероятные однопримесные ($m = 1$) квантовые закоротки, имеющие ширину туннельного резонанса $\gamma_1 = 2 \cdot 10^{-4}$ эВ, и, следовательно, являющиеся узкозонными: $\gamma_1/\Delta_0 = 0.2$. При этом, менее вероятные двупримесные ($m = 2$) квантовые закоротки имеют ширину туннельного резонанса $\gamma_2 = 4 \cdot 10^{-2}$ эВ и являются широкозонными: $\gamma_2/\Delta_0 = 40 \gg 1$, а, следовательно, как и более широкозонные закоротки с $m \geq 3$, не влияют на девиацию одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта (см. рис. 2 и комментирующий его текст). За пределами области Ω_d суммарный вклад всех возможных m -примесных ($m \geq 1$) квантовых закороток в величины J и Φ пренебрежимо мал по сравнению с “фоновыми” значениями этих величин, определяемыми параметрами чистого ($c = 0$) SIN-контакта.

На рисунке 3 приведены графики зависимостей логарифмического индекса $\lambda(c, \beta)$ мультипликатора (23) от безразмерной девиации примесного уровня β в интервале $-2 \leq \beta \leq 2$ для трех значений концентрации примеси: $c = 10^{-4}, 10^{-5}, 10^{-6}$:

$$\lambda(c, \beta) = \lg \Phi(c, \beta). \tag{31}$$

Эти графики демонстрируют ярко выраженные минимумы мультипликатора Φ при значении $\beta = 0$, соответствующие сильной отрицательной девиации одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта (недостаток тока) и столь же ярко выраженные максимумы мультипликатора Φ при значениях $\beta = \pm 1$, соответствующие сильной положительной девиации одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта (избыток тока). Точки демаркации для всех трех графиков практически одинаковы $\beta_c^\pm \simeq \pm 0.5$. При $|\beta| > 2$ девиация ВАХ практически отсутствует.

На рисунке 4 приведены графики зависимостей логарифмического индекса $\iota(c, \beta)$ “приведенного” тока (30) от безразмерной девиации примесного уровня β в интервале $-2 \leq \beta \leq 2$ для трех значений концентрации примеси: $c = 10^{-4}, 10^{-5}, 10^{-6}$:

$$\iota(c, \beta) = \lg F(c, \beta). \tag{32}$$

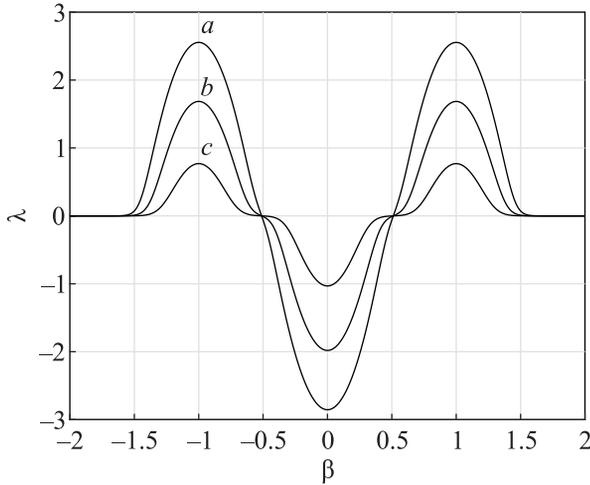


Рис. 3. Логарифмический индекс $\lambda(c, \beta)$ мультипликатора $\Phi(c, \beta)$: $\lambda(c = 10^{-4}, \beta)$ – кривая *a*, $\lambda(c = 10^{-5}, \beta)$ – кривая *b*, $\lambda(c = 10^{-6}, \beta)$ – кривая *c*

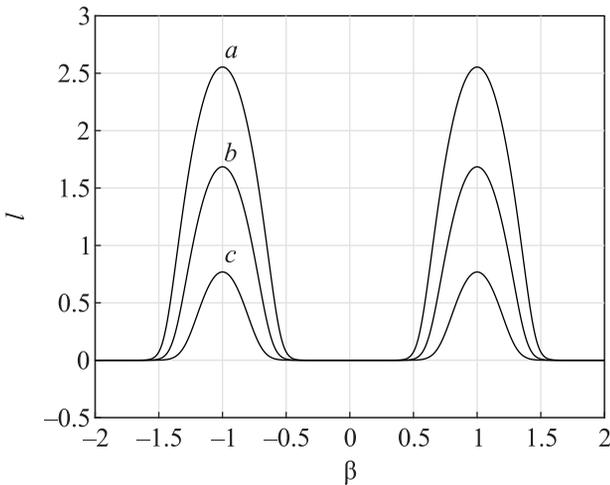


Рис. 4. Логарифмический индекс $\nu(c, \beta)$ мультипликатора $F(c, \beta)$: $\nu(c = 10^{-4}, \beta)$ – кривая *a*, $\nu(c = 10^{-5}, \beta)$ – кривая *b*, $\nu(c = 10^{-6}, \beta)$ – кривая *c*

Эти графики демонстрируют ярко выраженные максимумы приведенного одночастичного тока при значениях $\beta = \pm 1$, соответствующие особенностям плотности одночастичных состояний $\nu_s(\varepsilon)$ на краю сверхпроводящей щели $|\varepsilon| = \Delta_0$ в S-береге контакта [12]:

$$\nu_s(\varepsilon) \sim \begin{cases} |\varepsilon|(\varepsilon^2 - \Delta_0^2)^{-1/2}, & |\varepsilon| > \Delta_0, \\ 0, & |\varepsilon| < \Delta_0. \end{cases} \quad (33)$$

6. Обсуждение модели и полученных результатов. Отметим несколько существенных аспектов рассмотренной здесь модели грязного SIN-контакта и полученных в рамках этой модели резуль-

татов, для чего ответим на несколько актуальных в этом контексте вопросов:

1. Является ли уединенная квантовая закоротка в неупорядоченном I-слое грязного SIN-контакта достаточно “слабой связью” между его берегами – такой, чтобы можно было вычислять одночастичный ток через нее в рамках теории возмущений в форме метода туннельного гамильтониана (7)–(14)?

Безразмерным малым параметром теории возмущений в методе туннельного гамильтониана является малый коэффициент прохождения (туннельная прозрачность) слабой связи $D \ll 1$. Для случая m -примесной квантовой закоротки коэффициент прохождения (10) с учетом предэкспоненты [11] имеет вид:

$$D_m^{res}(\varepsilon, \delta, u) = \frac{\sigma(\varepsilon_0)}{2} \exp \left[-\frac{(\varepsilon - \delta)^2}{\gamma_m^2(u)} \right], \quad (34)$$

где $\sigma(\varepsilon_0) = (U_0 - \varepsilon_0)\varepsilon_0 / (2\pi^4 U_0^2)$, $\delta = \varepsilon_0 - \mu$ – девиация примесного уровня ε_0 , $\gamma_m(u) = 4(U_0 - \varepsilon_0)u^{-1}e^{-u}$ – энергетическая ширина туннельного резонанса, ассоциированного с этой закороткой, u – “шаг” квантовой закоротки. Для типичных значений параметров SIN-контакта (см. п. 5) имеем:

$$D_m^{res} = 10^{-3} \div 10^{-4} \ll 1 \text{ при } |\varepsilon - \delta| \leq \gamma_m(u), \quad (35)$$

и, следовательно, квантовые закоротки являются “слабыми связями”. Отметим, что такие достаточно малые значения $D_m^{res} \ll 1$ обусловлены отражениями электронов на границах I-слоя даже при резонансных энергиях туннелирующих электронов [10, 11].

Заметим также, что для тех же значений параметров контакта коэффициент прохождения электронов через “фон” (24), т.е. “в обход” квантовых закороток в I-слое, на несколько порядков меньше:

$$D_0 = \frac{8(U_0 - \mu)\mu}{\pi U_0^2 \mathcal{L}} e^{-2\mathcal{L}} = 10^{-9} \div 10^{-10}. \quad (36)$$

Таким образом, в грязном SIN-контакте имеем:

$$D_0 \ll D_m^{res} \ll 1, \quad (37)$$

и, следовательно, метод туннельного гамильтониана применим не только для вычисления одночастичного тока через “фон”, но и через уединенную квантовую закоротку.

2. Существует ли не только теоретическая, но и экспериментальная возможность выделить одночастичный вклад в суммарный (одночастичный + андреевский) ток в грязном SIN-контакте со случайными квантовыми закоротками в неупорядоченном I-слое?

В эксперименте (см. рис. 2 и комментирующий его текст в [1]) показано, что одночастичный вклад в суммарный ток доминирует над андреевским (двухчастичным) вкладом в области температур $T_A < T < \Delta_0$ и напряжений $0 \leq |eV| < \Delta_0$, где $T_A \ll \Delta_0$ – температура кроссовера между одночастичным и двухчастичным тунелированием. Экспериментальные значения, приведенные в [1]: $T_A = 0.2$ К, $\Delta_0 = 2.2$ К.

T_A – температура, при которой экспоненциально “вымерзающий” при понижении T одночастичный дифференциальный кондактанс SIN-контакта (или уединенной квантовой закоротки в “грязном” SIN-контакте) $G_d(V = 0, T) \sim D e^{-\Delta_0/T}$ сравнивается с андреевским дифференциальным кондактансом $G_{Ad}(V = 0, T) \sim D^2$, который “не вымерзает” даже при $T = 0$. Здесь $D \ll 1$ – коэффициент прохождения I-слоя, либо уединенной квантовой закоротки.

Качественная (с логарифмической точностью) теоретическая оценка для T_A следует из соотношения $G_d(V = 0, T_A) = G_{Ad}(V = 0, T_A)$ и имеет вид:

$$T_A \sim \frac{\Delta_0}{|\ln D|}, \quad D \ll 1. \quad (38)$$

Отсюда, с учетом (35), для уединенной квантовой закоротки в грязном SIN-контакте имеем:

$$T_A \sim \frac{\Delta_0}{|\ln D_m^{\text{res}}|} \sim 0.1 \Delta_0, \quad (39)$$

а для “чистого” ($c = 0$) SIN-контакта, с учетом (36), имеем:

$$T_A \sim \frac{\Delta_0}{|\ln D_0|} \sim 0.01 \Delta_0. \quad (40)$$

Заметим, что, если в (39) подставить упомянутое выше экспериментальное значение [1] $\Delta_0 = 2.2$ К, то для квантовой закоротки получаем $T_A \sim 0.2$ К, что, во всяком случае, не противоречит экспериментальному значению [1] $T_A = 0.2$ К. Если же подставить $\Delta_0 = 2.2$ К в (40), то получаем для “чистого” SIN-контакта $T_A \sim 0.02$ К, что на порядок меньше экспериментального значения $T_A = 0.2$ К. Учитывая качественный характер этих оценок, отметим, тем не менее, что исследованный в эксперименте [1] SIN-контакт, весьма вероятно, оказался “грязным”, т.е. содержащим примеси и ассоциированные с ними квантовые закоротки в I-слое.

Таким образом, как видно из (39), даже в грязном SIN-контакте со случайными квантовыми закоротками в неупорядоченном I-слое, существует область температур $T_A < T < \Delta_0$, $T_A \ll \Delta_0$, внутри которой одночастичный вклад в суммарный ток доминирует

над двухчастичным, и, следовательно, возможен эксперимент по обнаружению и исследованию девиаций его одночастичной ВАХ, описываемых мультипликаторами (23) и (30).

3. Поскольку эффект аномальной девиации одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта (рис. 3) теоретически предсказан в рамках модели с “горизонтальным” (недиагональным) беспорядком Лифшица [9], учитывающим случайный “разброс” пространственных координат одинаковых примесей в неупорядоченном I-слое, то возникает естественный вопрос о “границе устойчивости” этого эффекта по отношению к возмущениям модели Лифшица, обусловленным, например, дополнительным – “вертикальным” (диагональным) беспорядком Андерсона [13], учитывающим случайный “разброс” энергий актуальных для рассматриваемой задачи примесных уровней ε_i в неупорядоченном I-слое.

В рамках модели Андерсона энергия примесного уровня ε_i представляется в виде:

$$\varepsilon_i = \varepsilon_0 + \xi, \quad (41)$$

где ξ – статистическая флуктуация энергии примесного уровня, имеющая некоторое непрерывное распределение плотности вероятности $\rho(\xi)$, которое можно выбирать из соображений математического удобства [14]. В рассматриваемой здесь задаче будем считать его гауссовским:

$$\rho(\xi) = \frac{1}{\sqrt{\pi}w} e^{-\xi^2/w^2}, \quad 0 \leq w \ll \mu, \quad U_0 - \mu, \quad (42)$$

где w – характерная ширина распределения. Очевидно, что $\langle \xi \rangle_\xi = 0$, $\langle \varepsilon_i \rangle_\xi = \varepsilon_0$, где $\langle \dots \rangle_\xi$ – символ усреднения по распределению $\rho(\xi)$.

Граница устойчивости эффекта аномальной девиации определяется критическим значением ширины распределения (42) $w = w_c$, при превышении которого эта девиация “разрушается” сильными андерсоновскими флуктуациями энергии примесного уровня (41). Как и в задаче о переходе Андерсона “металл – андерсоновский диэлектрик” [13, 14], в рассматриваемой здесь задаче необходимо получить теоретическую оценку критического значения w_c .

В рамках модели Лифшица (все $\varepsilon_i = \varepsilon_0 = \text{const}$) причиной аномальной девиации одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта является сильная и резкая неоднородность коэффициента прохождения $D(\varepsilon)$ неупорядоченного I-слоя на характерных масштабах $0 \leq |\varepsilon| \sim \Delta_0$. Такая неоднородность $D(\varepsilon)$ “обеспечивается” наиболее вероятными и наиболее узкозонными ($\gamma_1/\Delta_0 < 1$) однопримесными ($m = 1$) квантовы-

ми закоротками при значениях девиации примесных уровней $\delta = \varepsilon_0 - \mu$ в пределах $0 \leq |\delta| \sim \Delta_0$.

При учете андерсоновских флуктуаций (41), (42) коэффициент прохождения однопримесной квантовой закоротки (34) становится функцией случайного аргумента ξ :

$$D_1^{\text{res}}(\varepsilon, \delta + \xi, u = \mathcal{L}) = \frac{\sigma(\varepsilon_0 + \xi)}{2} \exp \left[-\frac{(\varepsilon - \delta - \xi)^2}{\gamma_1^2(u)} \right], \quad (43)$$

которая при вычислении одночастичного тока через весь грязный SIN-контакт должна усредняться по статистическому ансамблю однопримесных квантовых закороток, присутствующих в неупорядоченном I-слое, т.е. по распределению $\rho(\xi)$ (42):

$$\langle D_1^{\text{res}}(\varepsilon, \delta + \xi, u = \mathcal{L}) \rangle_\xi = \int_{-\infty}^{\infty} D_1^{\text{res}}(\varepsilon, \delta + \xi, u = \mathcal{L}) \rho(\xi) d\xi. \quad (44)$$

Среднее (44) легко вычисляется в предельных случаях слабых ($w/\gamma_1 \ll 1$) и сильных ($w/\gamma_1 \gg 1$) андерсоновских флуктуаций:

$$\langle D_1^{\text{res}}(\varepsilon, \delta + \xi, u = \mathcal{L}) \rangle_\xi = \left[1 - 0 \left(\frac{w^2}{\gamma_1^2} \right) \right] \frac{\sigma(\varepsilon_0)}{2} \exp \left[-\frac{(\varepsilon - \delta)^2}{\gamma_1^2} \right], \quad \frac{w}{\gamma_1} \ll 1, \quad (45)$$

$$\langle D_1^{\text{res}}(\varepsilon, \delta + \xi, u = \mathcal{L}) \rangle_\xi = \frac{\gamma_1 \sigma(\varepsilon_0)}{w} \exp \left[-\frac{(\varepsilon - \delta)^2}{w^2} \right], \quad \frac{w}{\gamma_1} \gg 1, \quad (46)$$

В пределе слабых флуктуаций усредненный коэффициент прохождения (45) с точностью до малых поправок $\sim (w^2/\gamma_1^2) \ll 1$ совпадает с соответствующим коэффициентом прохождения в модели Лифшица (34) и, следовательно, аномальная девиация одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта остается, практически, неизменной.

В пределе сильных флуктуаций энергетическая ширина усредненного коэффициента прохождения (46) “размазывается” андерсоновскими флуктуациями до значения $w \gg \gamma_1$, а его амплитуда уменьшается присутствием множителя $\gamma_1/w \ll 1$ в предэкспоненте.

Если $w \gg \Delta_0 > \gamma_1$, то усредненный коэффициент прохождения (46) на масштабах энергий $0 \leq |\varepsilon| \sim \Delta_0$ и девиаций примесного уровня $0 \leq |\delta| \sim \Delta_0$ становится практически однородной функцией энергии ε , и, следовательно, девиация одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта “разрушается” сильными андерсоновскими флуктуациями.

Таким образом, на качественном уровне становится ясно, что критическое значение безразмерно-

го параметра w/γ_1 , характеризующего силу андерсоновских флуктуаций, находится в интервале $1 < w_c/\gamma_1 < \Delta_0/\gamma_1$, внутри которого и происходит плавный переход от аномально сильной девиации одночастичной ВАХ грязного SIN-контакта к отсутствию девиации. Для рассмотренного в п. 5 численного примера $\Delta_0/\gamma_1 = 5$ и, следовательно, для этого примера $1 < w_c/\gamma_1 < 5$. Если, достаточно условно, в качестве критического выбрать значение в середине этого интервала, то для рассмотренного примера имеем: $w_c/\gamma_1 = 3$.

7. Возможные эксперименты. Эксперименты должны проводиться с контактами достаточно большой площади S (2), необходимой для подавления мезоскопических флуктуаций туннельного контактанса G_n грязного контакта в области температур $T_A < T < \Delta_0$ и напряжений $0 \leq |eV| \ll T$, где $T_A \ll \Delta_0$ – температура кроссовера между одночастичным и двухчастичным туннелированием (см. п. 6). Возможны два типа экспериментов:

1. Эксперимент первого типа ассоциирован с рис. 3. Принципиальная схема эксперимента первого типа – основываясь на формуле (21), проводятся косвенные измерения мультипликатора Φ по результатам прямых независимых измерений одночастичного тока J , туннельного контактанса G_n , сверхпроводящей щели Δ_0 , температуры T и напряжения V . Если полученные значения Φ оказываются заметно меньше единицы, то это может свидетельствовать о наличии в I-слое примесных уровней и соответствующих квантовых закороток со значениями девиации примесного уровня вблизи значения $\beta = 0$, а если значения Φ оказываются заметно больше единицы – вблизи значений $\beta = \pm 1$. Если с высокой точностью $\Phi = 1$, то либо “фазовая точка” контакта (c, β) находится вне области $\Omega_d(c, \beta)$, либо андерсоновские флуктуации превышают критическое значение и “разрушают” девиацию одночастичной ВАХ.

2. Эксперимент второго типа ассоциирован с рис. 4 и предполагает наличие электростатического затвора у SIN-контакта, с помощью которого можно изменять положение примесных уровней ε_0 в I-слое относительно уровня электронного химпотенциала контакта μ , т.е. регулировать девиацию примесного уровня по закону:

$$\beta(V_G) = \beta(V_G = 0) + \alpha V_G, \quad (47)$$

где V_G – потенциал затвора, α – некоторая константа.

Принципиальная схема эксперимента второго типа – провести измерения одночастичного тока (21) при постоянных значениях V и T , изменяя в соответ-

ствии с (47) девиацию $\beta(V_G)$ с помощью потенциала электростатического затвора V_G . Если зависимость тока J от девиации β будет иметь максимумы (аналогично рис. 4), при изменении β на несколько единиц, то это будет означать наличие актуальных для данной задачи квантовых закороток в I-слое.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования “Южно-Российский государственный политехнический университет (НПИ) имени М. И. Платова”. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. А. В. Селиверстов, М. А. Тарасов, В. С. Эдельман, *ЖЭТФ* **151**, 752 (2017).
2. F. W. J. Hekking and Yu. V. Nazarov, *Phys. Rev. B* **49**, 6847 (1994).
3. D. Golubev and I. Kuzmin, *J. Appl. Phys.* **89**, 6484 (2001).
4. В. Я. Кирпиченков, Н. В. Кирпиченкова, О. И. Лозин, А. А. Постников, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 530 (2016).
5. В. Я. Кирпиченков, Н. В. Кирпиченкова, О. И. Лозин, А. А. Пухлова, *Письма в ЖЭТФ* **105**, 577 (2017).
6. А. Ф. Андреев, *ЖЭТФ* **46**, 1823 (1964).
7. Л. С. Левитов, А. В. Шитов, *Функции Грина. Задачи с решениями*, Физматлит, М. (2002).
8. В. Я. Кирпиченков, Н. В. Кирпиченкова, О. И. Лозин, А. А. Косач, *Письма в ЖЭТФ* **112**, 114 (2020).
9. И. М. Лифшиц, С. А. Гредескул, Л. А. Пастур, *Введение в теорию неупорядоченных систем*, Наука, М. (1982).
10. И. М. Лифшиц, В. Я. Кирпиченков, *ЖЭТФ* **77**, 989 (1979).
11. В. Я. Кирпиченков, *ЖЭТФ* **116**, 1048 (1999).
12. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Наука, М. (1987).
13. P. W. Anderson, *Phys. Rev.* **109**, 1492 (1958).
14. Дж. Займан, *Модели беспорядка*, Мир, М. (1982).

Редуцированная характеристика перестраиваемых линейно-оптических интегральных схем

Л. В. Бигуаа^{*+1)}, К. Г. Катамадзе^{*+}, Б. И. Бантыш⁺, Ю. И. Богданов⁺

⁺ Физико-технологический институт им. К. А. Валиева РАН, 117218 Москва, Россия

^{*} Центр квантовых технологий, физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 февраля 2024 г.

После переработки 25 апреля 2024 г.

Принята к публикации 8 мая 2024 г.

Перестраиваемые линейно-оптические схемы являются важным элементом как классических, так и квантовых информационных технологий. Масштабирование таких схем становится возможным только при переходе к интегральному исполнению, что усложняет их характеристику из-за невозможности реконструкции каждого элемента по отдельности. Существующие методы характеристики линейно-оптических схем требуют многократных измерений фаз матричных элементов передаточной матрицы при различных значениях управляющих параметров, что представляет собой значительные экспериментальные трудности. В данной работе предлагается новый подход: мы демонстрируем, что, измерив лишь коэффициенты пропускания для определенного набора значений управляющих параметров оптической схемы, можно построить математическую модель, способную предсказывать коэффициенты пропускания для произвольных значений параметров. Этот метод успешно апробирован в численном эксперименте на примере перестраиваемого четырехканального интерферометра, реализующего произвольное унитарное преобразование. Предложенный метод открывает новые возможности для более эффективной характеристики и проектирования перестраиваемых линейно-оптических схем.

DOI: 10.31857/S1234567824120115, EDN: XVPRCN

1. Введение. Использование классических и квантовых свойств света открывает новые возможности для методов обработки информации [1]. Линейно-оптические схемы (многоканальные интерферометры) играют важную роль в классической и квантовой оптической связи [2], в квантовых вычислениях [3–6], и задачах машинного обучения [7–9]. Математически любая линейно-оптическая схема полностью описывается с помощью передаточной матрицы M_{ij} , связывающей электрические поля во входных $E_{in}^{(i)}$ и в выходных $E_{out}^{(j)}$ каналах:

$$E_{out}^{(j)} = \sum_i M_{ij} E_{in}^{(i)}. \quad (1)$$

В идеальном случае передаточная матрица является унитарной, но при наличии оптических потерь свойство унитарности теряется. Квадраты модулей ее элементов $|M_{ij}|^2$ являются коэффициентами пропускания оптического излучения из i -го входа в j -й выход и измеряются элементарно. Фазы матричных элементов измеряются интерференционным [10, 11] или корреляционным [12–14] способом, что является

более сложной и затратной по времени экспериментальной задачей.

В большинстве задач передаточную матрицу необходимо перестраивать, чтобы иметь возможность точно реализовать то или иное заданное преобразование. В интегральных оптических схемах это делается с помощью изменения оптической длины различных плечей интерферометра посредством термо- или электрооптического эффекта [15–17]. Таким образом можно построить интегральную схему, реализующую произвольное унитарное преобразование [18–21], однако подбор значений управляющих параметров, позволяющих получить заданное преобразование с необходимой точностью, является сложной задачей, которая может решаться двумя способами.

Первый способ основан на физической итерационной подстройке параметров и измерении передаточной матрицы на каждой итерации [22, 23]. Поскольку перестройка и измерение передаточной матрицы занимают достаточно большое время, этот способ не является оптимальным.

Второй способ заключается в том, чтобы сначала измерить некоторое количество передаточных матриц схемы для разных наборов значений управляющих

¹⁾e-mail: Leon.006w@yandex.ru

щих параметров, затем построить математическую модель, описывающую их связь, а затем уже численно подобрать значения параметров, реализующих заданное преобразование [24–26]. Последняя стадия этого процесса является сравнительно быстрой, но на первой стадии все равно необходимо полностью (с учетом фаз) измерить большое количество передаточных матриц.

Однако, в ряде приложений, таких как реализация квантового генератора случайных чисел на основе квантовых блужданий [27], симуляция квантового переноса [16], квантовое распределение ключей [28], реализация оптических переключателей для однофотонных источников [29] и протоколов распределения запутанности [30, 31], где можно использовать такие переключатели, фазы элементов передаточной матрицы не играют никакой роли. Поэтому представляет интерес решение задачи характеристики перестраиваемой линейно-оптической схемы в редуцированном виде, когда сначала измеряются только модули матричных элементов (коэффициенты пропускания схемы) при различных значениях управляющих параметров, а затем строится математическая модель схемы, позволяющая предсказывать значения коэффициентов пропускания при произвольных значениях управляющих параметров.

Настоящая работа посвящена решению этой проблемы на примере четырехканального интерферометра, реализующего произвольное унитарное преобразование. При этом структура интерферометра считается известной, но неизвестны значения параметров его элементов.

2. Математическая модель. Мы исследуем возможность редуцированной характеристики перестраиваемых линейно-оптических схем на примере четырехканального интерферометра, построенного по схеме Клементса [19], реализующего произвольное унитарное преобразование, структура которого изображена на рис. 1. Интерферометр состоит из набора волноводов и светоделителей. Часть волноводов содержит управляемые фазовые элементы. Каждый волновод с контролируемым фазовым набегом осуществляет преобразование поля следующего вида:

$$E_{\text{out}} = \sqrt{T} E_{\text{in}} e^{i(\theta+\phi)}, \quad (2)$$

где T – коэффициент пропускания по мощности, θ – некоторый неизвестный начальный фазовый сдвиг, а ϕ – контролируемый фазовый сдвиг. Для пассивных волноводов $\phi \equiv 0$. Поскольку общий фазовый сдвиг всех выходных полей не влияет на финальное распределение мощности оптического излучения, часть начальных фазовых сдвигов θ можно занулить.

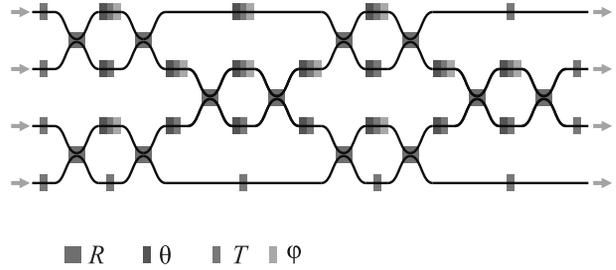


Рис. 1. (Цветной онлайн) Структура исследуемой линейно-оптической схемы. Параметры схемы, подлежащие определению обозначены цветом: оранжевый – коэффициенты связи светоделителей R ; серый – коэффициенты пропускания волноводов t ; красный – начальные фазовые сдвиги θ . Зеленым обозначены контролируемые фазовые сдвиги ϕ

Каждый светоделитель осуществляет двухмодовое преобразование полей:

$$\begin{pmatrix} E_{\text{out}}^{(1)} \\ E_{\text{out}}^{(2)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sqrt{1-R} & -\sqrt{R} \\ \sqrt{R} & \sqrt{1-R} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\text{in}}^{(1)} \\ E_{\text{in}}^{(2)} \end{pmatrix}, \quad (3)$$

где R – коэффициент связи (доля излучения, которая переходит из одной моды в другую). Таким образом, все светоделители считаются унитарными, а все потери и фазовые сдвиги переносятся в волноводы. В результате вектор неизвестных параметров ξ состоит из 12 коэффициентов связи R , 28 коэффициентов пропускания T и 17 фазовых сдвигов θ , а вектор контролируемых фаз ϕ состоит из 10 элементов. Зная параметры ξ и ϕ , можно рассчитать передаточную матрицу интерферометра $M_{ij}(\xi, \phi)$ и его коэффициенты пропускания по мощности $T_{ij}(\xi, \phi) = |M_{ij}(\xi, \phi)|^2$.

Измерение коэффициентов пропускания интерферометра T_{ij} происходит следующим образом. На i -й вход подается оптическое излучение мощности P , и измеряются мощности выходного излучения в каждом из выходных каналов P_{ij} , где $j = 1, \dots, 4$. Процедура повторяется 4 раза для $i = 1, \dots, 4$. В результате коэффициенты пропускания можно определить как $T_{ij} = P_{ij}/P$. Однако, в реальном эксперименте измеренные значения могут отличаться от реальных. Как правило, наибольший вклад в инструментальные погрешности вносят шумы детектора. В численном эксперименте это моделируется следующим образом. К каждой рассчитанной выходной мощности P_{ij} добавляется случайная величина x_{ij} , имеющая нормальное распределение с нулевым средним значением и среднеквадратичным отклонением $\sigma_{ij} = \eta P_{ij}$, где η – отношение шум/сигнал, которое считается одинаковым для всех измерений. При этом все слу-

чайные величины x_{ij} независимы друг от друга и принимают новые значения при каждом новом измерении. Таким образом, измеренные значения мощности \tilde{P}_{ij} будут отличаться от идеальных, а измеренные значения коэффициентов пропускания будут равны $\tilde{T}_{ij} = \tilde{P}_{ij}/P$.

3. Алгоритм характеристики. Алгоритм характеристики состоит из этапа обучения, на котором происходит определение оптимальных значений неизвестных параметров модели оптической схемы $\hat{\xi}$ и этапа валидации, на котором проверяется, насколько хорошо полученная модель описывает результат эксперимента. Если модель не проходит валидацию, то этап обучения повторяется. Кроме того, в численном эксперименте проводилась процедура тестирования, которая повторяла процедуру валидации на большем объеме экспериментальных данных. Ниже мы рассмотрим подробнее оба этапа.

3.1. Этап обучения. Случайным образом генерируется $K_{ed} = 30$ конфигураций управляющих параметров $\{\phi^{(k)}\}$. Для каждой конфигурации $\phi^{(k)}$ измеряются все коэффициенты пропускания схемы $\tilde{T}_{ij}^{(k)}$. Для тех же значений управляющих параметров и некоторых значений неизвестных параметров ξ' можно рассчитать коэффициенты пропускания $T_{ij}^{(k)} = T_{ij}(\xi', \phi^{(k)})$. Тогда оптимальные значения параметров $\hat{\xi}$ могут быть найдены методом глобальной минимизации некоторой меры близости $\Delta(\xi')$ между рассчитанными $T_{ij}^{(k)}$ и измеренными $\tilde{T}_{ij}^{(k)}$ коэффициентами пропускания. Простейшим вариантом такой меры может быть сумма квадратов их разностей:

$$\Delta_T(\xi') = \sqrt{\sum_k [\delta_T(\xi', \phi^{(k)})]^2}, \quad (4)$$

где

$$\delta_T(\xi', \phi^{(k)}) = \frac{1}{4} \sqrt{\sum_{i,j} [T_{ij}(\xi', \phi^{(k)}) - \tilde{T}_{ij}^{(k)}]^2}. \quad (5)$$

Однако в ряде задач важны не абсолютные, а относительные коэффициенты пропускания $\tau_{ij} \equiv T_{ij}/T_{i0}$, где $T_{i0} = \sum_j T_{ij}$ – полное пропускание схемы при подключенном i -м входе. Фактически, τ_{ij} – это коэффициенты деления мощности излучения между разными выходами, сумма которых равна единице. Для оптимизации коэффициентов деления можно минимизировать меру близости

$$\Delta_\tau(\xi') = \sqrt{\sum_k [\delta_\tau(\xi', \phi^{(k)})]^2}, \quad (6)$$

где

$$\delta_\tau(\xi', \phi^{(k)}) = \frac{1}{4} \sqrt{\sum_{i,j} [\tau_{ij}(\xi', \phi^{(k)}) - \tilde{\tau}_{ij}^{(k)}]^2}. \quad (7)$$

В численном эксперименте мы минимизировали сумму квадратов этих функций:

$$\Delta(\xi') = \sqrt{\Delta_T^2(\xi') + \Delta_\tau^2(\xi')} \quad (8)$$

и в результате получали оценку неизвестных параметров схемы $\hat{\xi}$. При этом выбор такой целевой функции обусловлен желанием добиться высокой точности предсказания одновременно как для абсолютных значений коэффициентов пропускания T_{ij} , так и для относительных коэффициентов деления τ_{ij} .

Алгоритм был написан на языке Python, а минимизация проводилась методом дифференциальной эволюции [32] из библиотеки `scipy.optimize`. Явно заданные параметры метода следующие: количество итераций – 100, толерантность – 0.0001; параметры рекомбинации и мутации – 0.7 и 0.35; параметр `popsize` – 40.

3.2. Этапы валидации и тестирования. На этапе валидации полученной оценки генерируется новая случайная выборка из $K_{val} = 400$ конфигураций управляющих параметров $\{\phi^{(k)}\}$. Для каждой конфигурации снова измеряются коэффициенты пропускания $\tilde{T}_{ij}^{(k)}$ и рассчитывается мера близости $\delta_\tau(\hat{\xi}, \phi^{(k)})$. Если для всех конфигураций $\{\phi^{(k)}\}$ эта мера оказывалась меньше некоторого порогового значения δ_τ^{th} , то валидация считается пройденной. В противном случае стохастический алгоритм оптимизации запускался еще раз. В ходе работы было показано, что разумным значением δ_τ^{th} является соотношение шум/сигнал η . В этом случае для прохождения валидации оптимизационный алгоритм было достаточно перезапустить не более 70 раз. При этом все повторы алгоритма оптимизации и этапа валидации проводились на одном и том же наборе измерений. Мера близости абсолютных значений коэффициентов пропускания δ_T на этапе валидации не проверялась, поскольку опыт показал, что она всегда оказывалась достаточно малой.

На этапе тестирования еще раз генерируется случайная выборка из $K_{test} = 10^4 \gg K_{val}$ конфигураций управляющих параметров $\{\phi^{(k)}\}$. Для более полного анализа результатов для каждой конфигурации рассчитывались три меры близости: $\delta_T(\hat{\xi}, \phi^{(k)})$, $\delta_\tau(\hat{\xi}, \phi^{(k)})$, а также

$$\delta_{T0}(\hat{\xi}, \phi^{(k)}) = \frac{\sum_{i,j} T_{ij}(\xi', \phi^{(k)})}{\sum_{i,j} \tilde{T}_{ij}^{(k)}}. \quad (9)$$

Последняя мера близости показывает, во сколько раз предсказанное суммарное пропускание схемы отличается от экспериментального. В идеальном случае $\delta_{T0} \rightarrow 1$, в то время как $\delta_T, \delta_\tau \rightarrow 0$.

Важным отличием этапа тестирования от этапа валидации является то, что на этапе тестирования нас интересуют истинные значения коэффициентов пропускания, поэтому при тестировании детекторы считаются идеальными и не добавляют шумов.

Заметим, что описанный алгоритм не позволяет определить истинные значения параметров схемы ξ_{true} , поскольку эта задача не имеет единственного решения. Но схема с параметрами $\hat{\xi}$ будет давать те же распределения оптических мощностей, при тех же значениях управляющих параметров, что и исходная, чего достаточно для практических применений.

В частности, результаты измерений инвариантны относительно переноса оптических потерь от начала схемы к концу, а также относительно перераспределения постоянных фазовых сдвигов.

4. Результаты численного эксперимента.

Численный эксперимент проводился с 15-ю различными оптическими схемами, параметры которых ξ_{true} выбирались следующим образом: коэффициенты пропускания T на входах и выходах схемы выбирались случайным образом из диапазона 0.025 – 0.178 (включая границы), коэффициенты пропускания внутренних волноводов – из диапазона 0.8–1, коэффициенты связи светоделителей R выбирались случайным образом из диапазона 0.4–0.8, а все фазы θ выбирались случайно от 0 до 2π . Эти параметры соответствуют возможностям изготовления оптических интегральных схем методом фемтосекундной лазерной печати. Границы параметров учитывались в процессе оптимизации.

Для каждого интерферометра проводилась характеристика с разным уровнем шумов детекторов $\eta = 10^{-9}, 10^{-8}, \dots, 10^{-1}$. Качество характеристики оценивалось на основе расчета мер близости коэффициентов пропускания δ_T , коэффициентов деления δ_τ и полного пропускания δ_{T0} на тестовой выборке. Для каждого коэффициента шум/сигнал все три меры близости вычислялись для 15 различных схем и 10^4 конфигураций управляющих элементов (фактический объем статистической выборки для каждой схемы).

На рисунке 2 показаны примеры гистограмм всех трех мер близости для случая самых больших шумов $\eta = 10^{-1}$. При этом можно заметить, что на гистограмме (с) рис. 2 значения меры близости для коэффициентов пропускания больше единицы, т.е. алго-

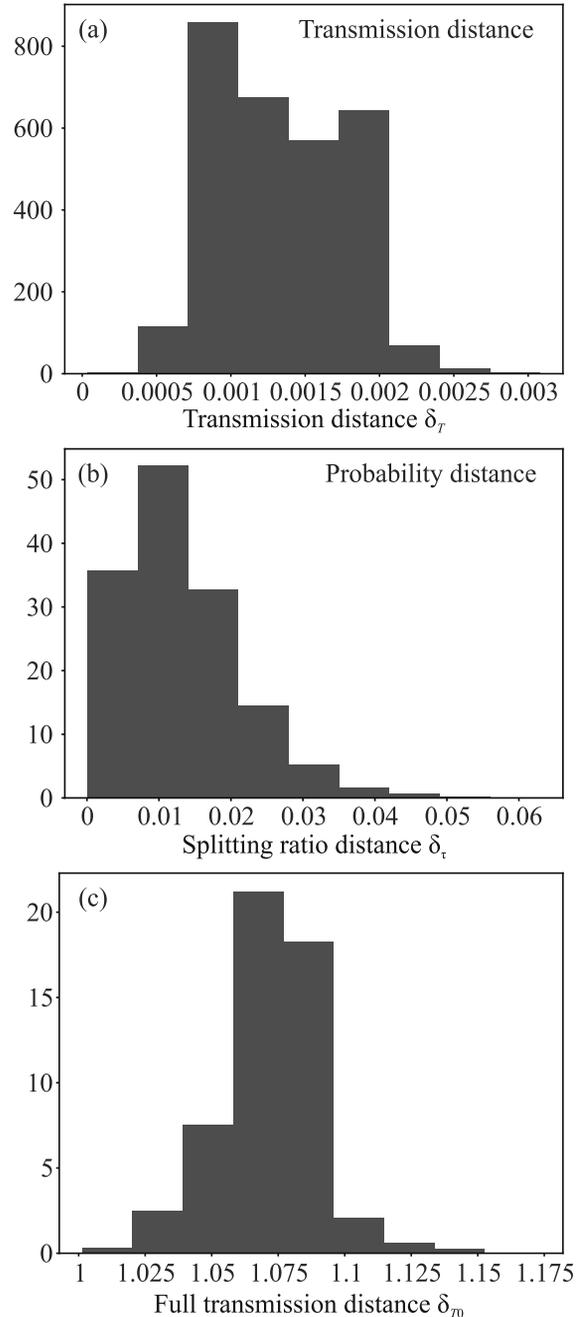


Рис. 2. (Цветной онлайн) Гистограммы распределений мер близости δ для соотношения шум/сигнал $\eta = 10^{-1}$. (a) – Мера близости коэффициентов пропускания δ_T . (b) – Мера близости коэффициентов деления $\Delta\delta_\tau$. (c) – Мера близости коэффициентов полного пропускания δ_{T0} .

ритм систематически предсказывает большие коэффициенты пропускания. Мы связываем такое поведение с особенностями использованного метода оптимизации.

На рисунке 3 приведены диаграммы типа “ящик с усами” [33] для распределений мер близости для

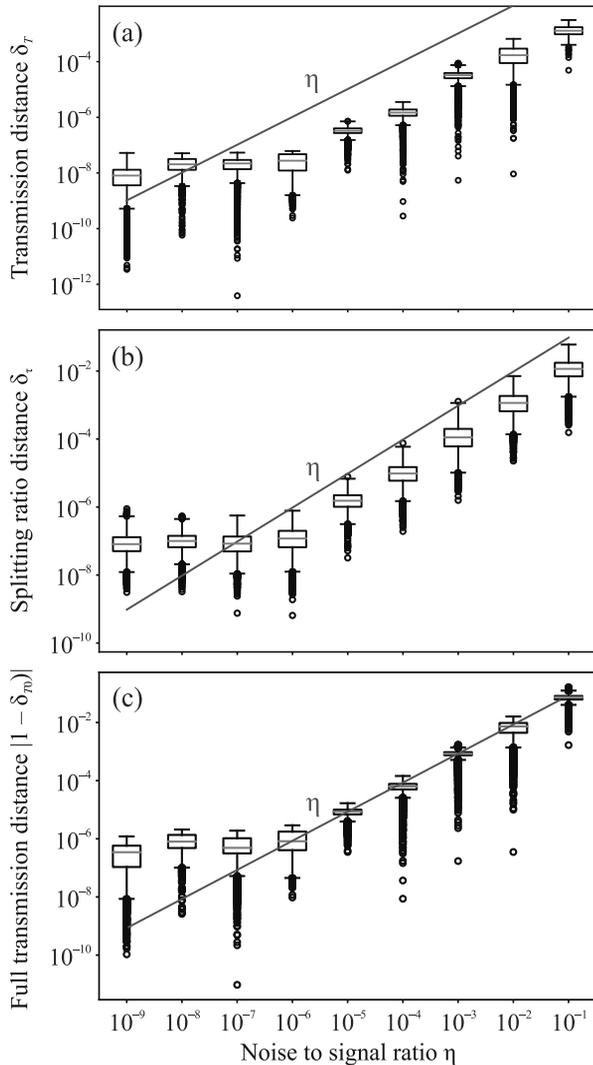


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость мер близости $\Delta\delta$ от соотношения шум/сигнал η . (a) – Мера близости коэффициентов пропускания δ_T . (b) – Мера близости коэффициентов деления δ_{T_0} . (c) – Мера близости коэффициентов полного пропускания δ_{T_0} . Пунктиром на каждом из графиков показаны значения η .

всех остальных значений шумов. Данные диаграммы устроены следующим образом: границами ящика с усами служат соответственно 1-й и 3-й квартили, линия в середине ящика – это медиана. Каждый ус продолжается до крайней из точек, отстоящих не далее, чем на 1.5 межквартильных расстояния от соответствующей границы ящика. Более удаленные точки (при наличии таковых), не попадающие в указанные границы, идентифицируются как выбросы и отмечаются отдельными точками. С практической точки зрения, выбросы, отвечающие малым значениям мер близости несущественны.

По представленным графикам видно, что при уровне шумов $\eta > 10^{-6}$ все меры близости пропор-

циональны η , но при этом $\delta_T \sim \eta/100$, $\delta_{T_0} \sim \eta/10$, а $|1 - \delta_{T_0}| \sim \eta$. Таким образом, исследуемая калибровка с большей точностью позволяет предсказывать соотношения коэффициентов пропускания, чем полное пропускание схемы. При уровне шумов $\eta < 10^{-6}$ все меры близости выходят на константы, отвечающие погрешностям численного счета, в частности, погрешности алгоритма оптимизации и ошибке округления.

Закключение. В работе исследована возможность редуцированной калибровки перестраиваемых линейно-оптических схем, при которой измеряются только модули матричных элементов передаточной матрицы. На примере четырехканального интерферометра, построенного по схеме Клемента в численном эксперименте показано, что проведя измерения для сравнительно небольшого набора значений управляющих параметров (30 различных конфигураций), можно построить ее математическую модель, которая будет предсказывать коэффициенты пропускания (модули элементов передаточной матрицы) схемы при произвольных значениях управляющих параметров. При этом погрешность предсказания пропорциональна отношению шум/сигнал детекторов, использующихся при калибровочных измерениях.

Что касается масштабирования данного подхода на линейно-оптические схемы большей размерности, то этот вопрос является предметом дальнейших исследований, поскольку из-за увеличения числа неизвестных параметров вычислительная сложность оптимизационного алгоритма существенно возрастает. В то же время, результаты настоящего исследования позволяют предположить, что и для схем большей размерности все меры близости восстановленной модели схемы будут иметь тот же порядок, что и инструментальная погрешность измерений.

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках проекта # 22-12-00263 Российского научного фонда.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. P. Minzioni, C. Lacava, and T. Tanabe, *J. Opt.* **21**, 063001 (2019).
2. N. C. Harris, J. Carolan, D. Bunandar, M. Prabhu, M. Hochberg, T. Baehr-Jones, M. L. Fanto, A. M. Smith, C. C. Tison, P. M. Alsing, and D. Englund, *Optica* **5**, 1623 (2018).
3. J. Carolan, C. Harrold, C. Sparrow, E. Martin-Lopez, *Science* **349**, 711 (2015).
4. H.-S. Zhong, Y. Y. Li, and W. Li, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 250505 (2018).

5. W. Asavanant, Y. Shiozawa, S. Yokoyama, B. Charoensombutamon, H. Emura, R.N. Alexander, S. Takeda, J.-I. Yoshikawa, N.C. Menicucci, H. Yonezawa, and A. Furusawa, *Science* **366**, 373 (2019).
6. J. Wang, F. Sciarrino, A. Laing, and M. G. Thompson, *Nature Photon.* **14**, 273 (2019).
7. R. Hamerly, L. Bernstein, A. Sludds, and M. Marin, Soljaić, and D. Englund, *Phys. Rev. X* **9**, 021032 (2019).
8. G. Wetzstein and, A. Ozcan, S. Gigan, S. Fan, D.R. Englund, M. Soljačić, C. Denz, D.A.B. Miller, and D. Psaltis, *Nature* **588**, 39 (2020).
9. H. Zhang, M. Gu, and X.D. Jiang, *Nat. Commun.* **12**, 457 (2021).
10. S. Rahimi-Keshari, M.A. Broome, R. Fickler, A. Fedrizzi, T.C. Ralph, and A.G. White, *Opt. Express* **21**, 13450 (2012).
11. K.V. Jacob, E.A. Mirasola, S. Adhikari, and P.J. Dowling, *Phys. Rev. A* **98**, 052327 (2018).
12. A. Laing and J.L. O'Brien, arXiv:1208.2868 [quant-ph] (2012).
13. A. Peruzzo, A. Laing, A. Politi, T. Rudolph, and J.L. O'Brien, *Nat. Commun.* **2**, 1 (2010).
14. K.G. Katamadze, G. Avosopiants, A.V. Romanova, Y.I. Bogdanov, and S. Kulik, *Laser Phys. Lett.* **18**, 075201 (2021).
15. J. Carolan, C. Harrold, C. Sparrow et al. (Collaboration), *Science* **349**, 711 (2015).
16. N.C. Harris, G.R. Steinbrecher, M. Prabhu, Y. Lahini, J. Mower, D. Bunandar, C. Chen, F.N.C. Wong, T. Baehr-Jones, M. Hochberg, S. Lloyd, and D.R. Englund, *Nature Photon.* **11**, 447 (2015).
17. C. Sparrow, E. Martin-Lopez, N. Maraviglia, A. Neville, C. Harrold, J. Carolan, Y.N. Joglekar, T. Hashimoto, N. Matsuda, J.L. O'Brien, D.P. Tew, and A. Laing, *Nature* **557**, 660 (2018).
18. M. Reck, A. Zeilinger, H. J. Bernstein, and P. Bertani, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 58 (1994).
19. W.R. Clements, P.C. Humphreys, B.J. Metcalf, W.S. Kolthammer, and I.A. Walsmley, *Optica* **3**, 1460 (2016).
20. S. A. Fldzhyan, M. Y. Saygin, and S. Kulik, *Opt. Lett.* **45**, 2632 (2019).
21. M. Y. Saygin, I. V. Kondratyev, I. V. Dyakonov, S. Mironov, S. Straupe, and S. P. Kulik, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 010501 (2019).
22. D. Pérez-López, A. López, P. Dasmahapatra, and J. Capmany, *Nat. Commun.* **11**, 6359 (2020).
23. I. V. Dyakonov, I. Pogorelov, I. B. Bobrov, A. A. Kalinkin, P. Dyakonov, S. A. Evlashin, S. Straupe, and S. Kulik, *Phys. Rev. Appl.* **10**, 044048 (2018).
24. S. Z. Kuzmin, I. V. Dyakonov, and S. Kulik, *Opt. Express* **29**, 38429 (2021).
25. B. I. Bantysh, K. G. Katamadze, A. Y. Chernyavskiy, and Y. I. Bogdanov, *Opt. Express* **31**, 16729 (2023).
26. B. I. Bantysh, A. Y. Chernyavskiy, S. A. Fldzhyan, and Y. I. Bogdanov, *Laser Phys. Lett.* **21**, 015203 (2023).
27. M. Gräfe and A. Szameit, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **53**, 073001 (2020).
28. Y. Ding, D. Bacco, K. Dalgaard, X. Cai, X. Zhou, K. Rottwitt, and L.K. Oxenløwe, *npj Quantum Inf.* **3**(25), 1 (2017).
29. D. D. Bühler, M. Weiss, A. Crespo-Poveda, E.D.S. Nysten, J. J. Finley, K. Müller, P.V. Santos, M.M. de Lima, and H. J. Krenner, *Nat. Commun.* **13**(6998), 1 (2022).
30. D. Nadlinger, P. Drmota, B. C. Nichol, G. Araneda, D. Main, R. Srinivas, D.M. Lucas, C. Ballance, K. Ivanov, E. Y.-Z. Tan, P. Sekatski, R. L. Urbanke, R. Renner, N. Sangouard, and J.-D. Bancal, *Nature* **607**, 682 (2021).
31. T. van Leent, M. Bock, F. Fertig, R. Garthoff, S. Eppelt, Y. Zhou, P. Malik, M. M. Seubert, T. Bauer, W. Rosenfeld, W. Zhang, C. Becher, and H. Weinfurter, *Nature* **607**, 69 (2021).
32. R. Storn and K.V. Price, *Journal of Global Optimization* **11**, 341 (1997).
33. J. W. Tukey, *Exploratory data analysis*, Addison-Wesley series in behavioral science: quantitative methods, Addison-Wesley Publishing Corporation, Reading, Massachusetts (1977).

Метастабильные объекты во Вселенной и их возможная связь со “стрелой времени”

В. В. Бражкин¹⁾

Институт физики высоких давлений РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 марта 2024 г.

После переработки 18 апреля 2024 г.

Принята к публикации 8 мая 2024 г.

Обсуждается связь наличия во Вселенной метастабильных объектов с различным “временем жизни” с ростом энтропии и “стрелой времени”. Конечное “время жизни” метастабильных объектов позволяет приписать многим из них существование собственных “локальных часов”. Распад любой метастабильной системы во Вселенной приводит к образованию более стабильных объектов и к испусканию фотонов и других частиц. Эти фотоны и частицы взаимодействуют с частицами более стабильных подсистем во Вселенной, что приводит к их эргодичности. Испускание фотонов в расширяющейся Вселенной при распаде метастабильных состояний делает эти процессы необратимыми и задает “стрелу времени”, несмотря на обратимость физических уравнений, описывающих данные процессы.

DOI: 10.31857/S1234567824120127, EDN: YPDEJI

1. Причины роста энтропии в любой квазизамкнутой физической подсистеме и существование (или иллюзия существования) “стрелы времени” являются одними из самых важных проблем современной физики. Поведение объектов как в классической, так и в квантовой физике описывается уравнениями, обратимыми во времени. В результате возникает вопрос об источниках необратимости, роста энтропии в конечных системах и “стрелы времени”. Известно, что для конечных систем необходимым и достаточным условием для необратимого установления распределения Гиббса и “термализации” подсистемы является локальная неустойчивость и перемешивание фазовых траекторий [1]. В классической физике неустойчивость связана со столкновениями частиц или процессами рассеяния квазичастиц (колебательных возбуждений) [1]. При сколь угодно малой неопределенности импульсов и координат частиц такая неустойчивость быстро приводит к росту энтропии и “термализации” системы. Причина малых флуктуаций импульсов и координат частиц (или неопределенность начальных условий) обычно связывается со взаимодействием рассматриваемой подсистемы с большим внешним окружением (термостатом). В квантовой механике потеря информации и необратимость эволюции (коллапс волновой функции) также связывается с хаотическим воздействием окружения (прибора) [2]. В отличие от классического случая, в квантовой системе причиной потери ин-

формации (роста энтропии) являются малые флуктуации параметров гамильтониана (а не начальных условий), также вызванные хаотической динамикой “классического” окружения [2]. При этом как в классическом, так и в квантовом случае остается не до конца решенной проблема поиска первопричины хаотической динамики самого окружения (прибора, термостата). Все аргументы приходится повторять для все более обширной внешней системы и конечном счете – распространять на всю Вселенную. Обычно при этом говорится, что возможность применения обычных физических законов ко всей Вселенной сомнительна [3] или, что информация “растворяется в бесконечной Вселенной” [2].

Когда говорится о “стреле времени”, в физике обычно подразумевается именно “термодинамическая” шкала времени, связанная с ростом энтропии. Такие “стрелы времени” как “волновая”, “квантовая”, “причинно-следственная” фактически можно также свести к “термодинамической” [4]. “Психологическая” “стрела времени” является субъективным свойством сознания живых существ, хотя имеются попытки связать и эту “стрелу” с “термодинамической”: процессы, идущие вспять во времени с убыванием энтропии, согласно [5] не могут оставить след в сознании наблюдателя. Некоторые исследователи вообще считают, что “стрела времени” во Вселенной существует лишь благодаря существованию живых организмов или “наблюдателя”. Имеется также “слабая стрела времени”, связанная со слабым взаимодействием и с редкими нарушениями СРТ-

¹⁾e-mail: brazhkin@hppi.troitsk.ru

симметрии (распад K -мезона) [6]. Наконец, имеются космологические “стрелы времени”, задаваемые гипотетическим “Большим взрывом”, связанные с тем, что события, ближайшие к “Большому взрыву”, были явно асимметричны по времени. Космологические первопричины “запуска” эволюции Вселенной активно дискутируются [7–14]. Так, в работе [7] предполагается, что СРТ-симметрия сохраняется в сумме для пар Вселенная – Анти-Вселенная, которые возникают при Большом взрыве. В обеих репликах имеются “стрелы времени”, направленные в разные стороны. В ряде моделей [8, 9] нулевой отсчет времени для начала стадии инфляции Вселенной отсутствует. Спонтанная инфляция является бесконечной по времени, причем в обе стороны направления времени. В большинстве моделей для появления асимметричных по времени решений требуются очень специфические начальные условия при образовании Вселенной (см., например, монографию [10]). Однако в ряде моделей никакие особенные начальные условия не требуются [11, 12]. Имеются утверждения, что неограниченность Вселенной, вообще, является достаточным условием для возникновения “стрелы времени” [12]. Имеются также многочисленные попытки связать “космологическую” и “термодинамическую” “стрелы” и шкалы времени [13, 14]. В этих же работах обсуждаются проблемы низкой энтропии на ранней стадии Вселенной и ее неограниченного роста при эволюции, а также проблема “точек отскока” по времени или “точек Януса” (см. также работу [12]). Отдельного внимания заслуживают работы, подчеркивающие важность гравитации [11, 13]. Наличие гравитации приводит к “раздвоению” решений уравнений, несмотря на их формальную обратимость по времени. Подчеркивается, что самогравитирующие системы являются “нетермодинамическими” [10]. При наличии гравитации изначально почти однородная Вселенная неизбежно кластеризуется, самым ярким проявлением этой кластеризации является образование галактик [10]. Несмотря на то, что большинство астрономических наблюдений противоречит стационарным моделям Вселенной (без Большого взрыва) [8, 10], у данных моделей Вселенной также по-прежнему имеется много сторонников. В целом, ситуация далека от определенной. Космологические причины запуска эволюции Вселенной(ых) будут, безусловно, еще много и долго обсуждаться. В любом случае, эволюция Вселенной имеет место в любых моделях. Цель настоящей работы – более скромная – обратить внимание на мало обсуждаемый аспект последствия эволюции Вселенной, а именно, на явления метаустойчивости во Вселенной

на всех уровнях организации материи и на всех масштабах времен.

2. Понятие метаустойчивости первоначально возникло в физике фазовых переходов. При фазовых переходах 1-го рода из-за наличия энергетического барьера для превращения одна фаза вещества может какое-то время существовать в области устойчивости другой. Такие объекты как переохлажденный пар, перегретая и переохлажденная жидкость – это примеры метаустойчивых веществ из школьного курса физики. Если время жизни перегретой жидкости может составлять микросекунды, то такие метаустойчивые твердые фазы, как стекло, алмаз, белый фосфор и др., могут существовать при нормальных условиях астрономические времена [15]. Впоследствии, понятие “метаустойчивого состояния”, как не самого низколежащего по энергии и отделенного от устойчивого состояния энергетическим барьером, было распространено на атомную и ядерную физику, химию, биологию, электрические и нейронные сети и т.п. [16]. Причем на каждом уровне организации материи понятие устойчивого состояния тоже не однозначно. Так, изомеры в химии – это вещества с одинаковым “полным” химическим составом, но разные по построению или пространственному расположению атомов. Изомер с наименьшей энергией считается устойчивым, а другие – метаустойчивыми. Однако, если рассматривать не “полный” химический состав, а “удельный”, то все химические соединения являются метаустойчивыми относительно смеси простых неорганических соединений [15]. Так, например, ацетилен C_2H_2 и бензол C_6H_6 имеют одинаковую стехиометрию $C_{0.5}H_{0.5}$. Бензол лежит по энергии ниже ацетилена, и они оба лежат по энергии выше графана, который, в свою очередь, метаустойчив относительно смеси графит (75 %) – метан (25 %) [15]. При высоких давлениях и температурах все молекулярные химические соединения испытывают необратимые превращения сначала в более устойчивые полимеризованные состояния (например, этилен \rightarrow полиэтилен), а затем в смесь простых соединений (вода, аммиак, двуокись углерода, метан и т.п.) [15]. Для биологических объектов иерархия устойчивых состояний еще более сложная.

Понятие метаустойчивости можно применять не только к многочастичным системам, но и к индивидуальным атомам и атомным ядрам. Так, возбужденное состояние атома с одним или несколькими электронами на верхних уровнях может существовать достаточно долго с последующим переходом в устойчивое состояние и высвечиванием фотонов (фосфоресценция).

До сих пор мы говорили о метастабильных системах с электромагнитным взаимодействием. Метастабильность присутствует и во многих системах со слабым и сильным взаимодействием. Многие атомные ядра могут находиться в состоянии метастабильных изомеров с различными временами жизни, при переходе в стабильное состояние они испускают гамма-кванты. Радиоактивные ядра также можно рассматривать как метастабильные объекты – при радиоактивном распаде образуются более стабильные ядра и испускаются альфа-частицы, электроны, нейтрино и фотоны. Энергия связи на нуклон в зависимости от атомного номера имеет пологий максимум в районе атомного номера железа. Таким образом, ядра всех элементов формально метастабильны относительно ядра железа – более легкие ядра должны слиться путем термоядерного синтеза, более тяжелые распадаться – путем радиоактивного распада. В этом отношении все звезды можно рассматривать как метастабильные объекты, в которых происходит образование более стабильных ядер. Можно пойти и дальше: при высоких плотностях для звезд большой массы происходит захват электронов протонами и образование нейтронных звезд и, далее – “черных дыр”. Планеты и остывшие звезды (белые и коричневые карлики) также захватываются черными дырами. Испарение “черных дыр” согласно современным представлениям, по-видимому, завершает эволюцию Вселенной, и возникает окончательно стабильное состояние вакуума с фотонами и лептонами [17]. В рамках модели космологической эволюции энтропия Вселенной равна отношению числа фотонов к числу барионов во Вселенной и стремится к бесконечности в окончательном стабильном состоянии. Заметим, что и сам вакуум может находиться в метастабильном состоянии – “ложный вакуум” с временем жизни порядка 10^{100} с [18]. По одной из гипотез переход метастабильного вакуума в стабильный – это и есть эквивалент “Большого взрыва”.

На разных уровнях организации материи энергетические барьеры могут составлять от 10^{-7} эВ до 10^9 эВ в расчете на частицу. В таких же широких пределах варьируется и выделение энергии при превращении метастабильного состояния в стабильное. Заметим, что в данной статье мы не делаем различия между метастабильными и нестабильными объектами. Метастабильные объекты – это все объекты с конечным временем жизни, в том числе, сколь угодно малым. Самые короткоживущие возбужденные состояния во Вселенной имеют аттосекундные времена жизни (например, ядра Be^8 в звездах при синтезе углерода). Абсолютно нестабильных объек-

тов с нулевым временем жизни в природе не существует. В конденсированных системах при высоких температурах барьеры преодолеваются за счет температурных флуктуаций, для метастабильных ядер барьеры преодолеваются за счет эффектов туннелирования. Такой широкий спектр барьеров приводит к еще более широкому спектру “времен жизни” метастабильных состояний – от 10^{-18} с до 10^{100} – 10^{200} с в случае конечного времени жизни протона и вплоть до $10^{10^{100}}$ с, если протон является стабильным [17]. Во втором случае все элементы “успевают” перейти в железо за 10^{1000} с [17]. Возраст нашей Вселенной ($5 \cdot 10^{17}$ с) обычно рассматривается как символ необычайно долгого времени, однако с точки зрения “времени жизни” ряда метастабильных объектов – это время является очень малым.

Все метастабильные состояния (за исключением вакуума) возникают как “кинетические продукты” в ходе эволюции Вселенной. Метастабильные ядра образуются в ходе ядерных реакций в недрах звезд либо при их взрывах. Метастабильные конденсированные среды – в ходе последующего агрегирования атомов и молекул, фазовых переходов (в том числе, изменения агрегатного состояния вещества) и химических реакций. В результате вся Вселенная оказывается “нашпигована” метастабильными объектами на всех уровнях организации материи от атомных ядер до живых организмов (см. рис. 1а). Как было сказано выше, если Вселенная эволюционирует, она вообще фактически не содержит стабильных объектов кроме фотонов и ряда лептонов. Однако “времена жизни” многих объектов (“стабильные” атомы, “стабильные” ядра, конденсированные среды) существенно превышают современное время существования нашей Вселенной, и такие объекты на нашем масштабе времен мы будем рассматривать как условно стабильные. Таким образом, важно не то, что все объекты Вселенной метастабильны, а то, что существуют метастабильные объекты с временами распада во всем важном для нас спектре времен – от аттосекунд до миллиардов лет. Таким образом, реальная Вселенная совсем не похожа на модельные равновесные системы типа набора частиц газа или стабильных кристаллов. Причем такая картина, как на рис. 1, не зависит от конкретной модели эволюции Вселенной. Этот факт, на наш взгляд, чрезвычайно важен для объяснения причин эргодичности, роста энтропии во Вселенной и “стрелы времени” на всех этапах эволюции Вселенной и во всех ее областях, в том числе, “здесь и сейчас”.

3. Во-первых, каждый метастабильный объект имеет как бы свои собственные часы, синхронизо-

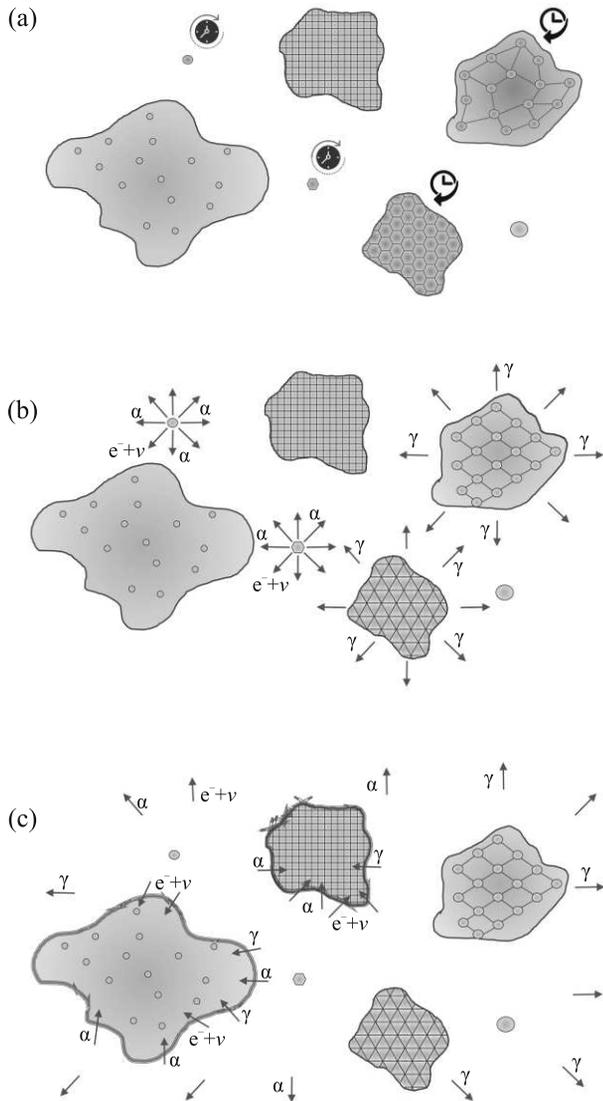


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Стабильные (кристаллы, флюиды, стабильные ядра – голубой цвет) и метастабильные (кристаллы, стекла, радиоактивные ядра – красный цвет) объекты во Вселенной. Метастабильные объекты “имеют свои часы”, причем макроскопические объекты “показывают одинаковое время”, в то время как “часы” микрообъектов флуктуируют. (б) – Те же объекты во Вселенной после превращения метастабильных объектов в более стабильные с испусканием фотонов и лептонов. (с) – Те же объекты во Вселенной, демонстрация возбуждения границ стабильных объектов фотонами и лептонами, приводящее к их термализации. Большинство фотонов и лептонов улетает “на бесконечность” в неограниченной Вселенной

ванные друг с другом (см. рис. 1а). Для стабильных объектов время определяет только их взаимное положение в пространстве, тогда как для метастабильных – также их внутреннее состояние. Так, если в

образце изотопа фосфора P^{32} радиоактивный распад испытала половина атомов, то это означает, что прошло примерно 2 недели. Если при $1500^\circ C$ в инертной атмосфере половина кристалла алмаза перешла в графит, значит, прошла примерно 1 с и т.п. Однозначные показания и синхронизация времени, конечно, присуща только макроскопическим объектам, состоящим из большого числа частиц. Показания “часов” микрообъектов (атомов, ядер), конечно, будут сильно флуктуировать и “показывать” правильное время” лишь после усреднения (см. рис. 1а).

Закон сохранения энергии по отношению ко всей расширяющейся Вселенной, по-видимому, неприменим. Вместе с тем, для любой рассматриваемой конечной области этот закон выполняется. Естественно считать, что переход из метастабильного в более стабильное состояние является необратимым процессом. При этом энергия всей системы должна сохраняться. Если происходит превращение алмаз \rightarrow графит или стекло \rightarrow кристалл, то выделяется определенное количество тепла. В результате нагревается какая-то часть окружающей среды (возбуждаются дополнительные фононы), затем происходит ряд процессов, и, в конечном итоге, излучается набор фотонов. При распаде возбужденных или радиоактивных ядер также выделявшаяся энергия “уносится” в виде фотонов (гамма-квантов) или в виде кинетической энергии вылетевших частиц. Конечно, все эти превращения также должны описываться зависящими от времени и обратимыми уравнениями Шредингера. Для описания процесса опять же необходимо рассматривать как сам объект, так и его окружение. Например, в случае перехода возбужденного электрона в атоме на нижний уровень следует рассматривать систему “атом плюс окружающий вакуум” (где есть вакуумные фотонные состояния). Исходная волновая функция – это комбинация волновых функций электрона в возбужденном состоянии и вакуумного поля. В результате квантового процесса возбужденное метастабильное состояние атома перейдет в состояние “стабильный атом плюс испущенный фотон” (дополнительный к полю нулевых фотонов в вакууме). Волновая функция при этом будет комбинацией волновой функции электрона на нижнем уровне и возбужденного состояния вакуума – с дополнительным возбужденным фотоном. Так же будет описываться и процесс перехода возбужденного ядра-изомера с испусканием гамма-кванта. Процесс радиоактивного распада с точки зрения квантовой механики описывается как эволюция волновой функции частицы (электрона, нейтрона, протона, альфа-частицы) при туннелировании через барьер, создаваемый осталь-

ными нуклонами ядра, в вакуум с приобретением кинетической энергии. Аналогично, превращение любого метастабильного объекта в более стабильный в конечном счете приводит к эмиссии фотонов и других частиц (лептоны, нейтроны, альфа-частицы) (см. рис. 1b). Если распад метастабильного состояния происходит в замкнутом боксе, то обратимость уравнений Шредингера приводит к очень малой, но ненулевой вероятности обратных процессов. Например, испущенная альфа-частица может отразиться от стенок и снова поглотиться ядром, переведя его в метастабильное возбужденное состояние. Однако в “открытой” расширяющейся Вселенной фотоны и частицы формально могут “уйти” на бесконечность, что и приводит к полной необратимости процесса, несмотря на обратимость уравнения Шредингера. Таким образом распад метастабильных состояний во Вселенной задает необратимость и “стрелу времени”. Напомним, что наше рассмотрение ограничено современным типом эволюции Вселенной с расширением. Возможную стадию сжатия Вселенной, где фотоны не будут формально “уходить на бесконечность”, мы не рассматриваем (см. выше обсуждение различных космологических моделей). Кроме того, испущенные фотоны и другие частицы могут взаимодействовать с частицами равновесных на данных временах (условно стабильных) макроскопических подсистем (газ, плазма, твердые тела, жидкости) (см. рис. 1с). Именно это взаимодействие служит источником флуктуаций начальных условий и параметров гамильтониана в условно равновесных подсистемах во Вселенной и их эргодичности. Таким образом, наличие во Вселенной метастабильных микро- и макро-объектов различной природы приводит к 4-м важным следствиям. Во-первых, Вселенную можно условно разбить на стабильные (в данном диапазоне времен) и метастабильные (т.е., претерпевающие распад в данном диапазоне времен) области (см. рис. 1а). Во-вторых, распад метастабильных состояний приводит к неизбежным возбуждениям частиц в условно стабильных подсистемах (см. рис. 1с), что, в свою очередь, приводит к их эргодичности. В-третьих, все макроскопические метастабильные объекты являются локальными “автономными часами”, идущими по времени синхронно (см. рис. 1а). И наконец, процессы распада метастабильных систем сопровождаются эмиссией фотонов и других частиц, что в неограниченной расширяющейся Вселенной приводит к явлениям необратимости и “стреле времени”.

В итоге, можно заключить, что во Вселенной происходит перманентный распад различных метастабильных состояний во всех областях пространства и во всем диапазоне времен, сопровождаемый испусканием частиц, главным образом – фотонов. Именно эти процессы и возможность “ухода” этих частиц “на бесконечность” в расширяющейся неограниченно Вселенной могут рассматриваться как причины эргодичности, необратимости эволюции и существования “стрелы времени” “здесь и сейчас”.

Автор благодарен В. Н. Рыжову и П. И. Арсееву за полезные обсуждения данных вопросов, а также И. В. Данилову за помощь в оформлении статьи. Автор также благодарен рецензентам за ценные советы и замечания.

Финансирование работы. Данная работа была выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (РНФ) номер 24-12-00037.

Конфликт интересов. Автор данной работы заявляет, что у него нет конфликта интересов.

1. В. В. Бражкин, УФН **191**, 1107 (2021).
2. А. Н. Рубцов, УФН **193**, 783 (2023).
3. Л. Д. Ландау, Е. М. Лившиц, *Статистическая физика*, Наука, М. (1976).
4. M. Schlosshauer, Rev. Mod. Phys. **76**, 1267 (2005).
5. L. Maccone, Phys. Rev. Lett. **103**, 080401 (2009).
6. J. Vaccaro, Proceedings of the Royal Society A **472**, 20150670 (2016).
7. L. Boyle, K. Finn, and N. Turok, Phys. Rev. Lett. **121**, 251301 (2018).
8. A. Aguirre and S. Gratton, Phys. Rev. D **67**, 083515 (2003).
9. S. M. Carroll and J. Chen, arXiv:hep-th/0410270.
10. H. D. Zeh, *The Physical Basis of the Direction of Time*, Springer, N.Y. (2007).
11. J. Barbour, T. Koslowski, and F. Mercati, Phys. Rev. Lett. **113**, 181101 (2014).
12. J. Barbour, T. Koslowski, and F. Mercati, arXiv:1604.03956.
13. J. Barbour, T. Koslowski, and F. Mercati, arXiv:1507.06498.
14. S. Goldstein, R. Tumulka, and N. Zanghi, Phys. Rev. D **94**, 023520 (2016)
15. В. В. Бражкин, УФН **176**, 745 (2006).
16. <https://en.wikipedia.org/wiki/Metastability>.
17. https://en.wikipedia.org/wiki/Future_of_an_expanding_universe.
18. https://en.wikipedia.org/wiki/False_vacuum_decay.

Содержание

Том 119, выпуск 11

Поля, частицы, ядра

Какорин И.Д., Наумов В.А., Самойлов О.Б. Проверка модели “бегущей аксиальной массы” на данных по рассеянию мюонных нейтрино на ядрах в ближнем детекторе NOvA 785

Baranov S.P., Lipatov A.V., Malyshev M.A., Snigirev A.M. Double parton scattering versus jet quenching 796

Lipatov A.V., Lykasov G.I., Malyshev M.A. Refined TMD gluon density in a proton from the HERA and LHC data 798

Оптика, лазерная физика

Akhmedzhanov R.A., Gushchin L.A., Nizov N.A., Nizov V.A., Sobgayda D.A., Zelensky I.V. Single-photon level quantum memory in an isotopically pure $^{143}\text{Nd}^{3+}:\text{Y}^7\text{LiF}_4$ crystal 800

Грициенко А.В., Пугачев М.В., Аврамчиков М.О., Витухновский А.Г., Кунцевич А.Ю. Источники одиночных фотонов внутри пузырьков на гомо-интерфейсе слоев гексагонального нитрида бора 802

Плазма, гидро- и газодинамика

Бахарева О.А., Сергеев В.Ю., Шаров И.А. Особенности нейтрализации быстрых протонов в углеводородном пеллетном облаке 810

Сергеев Н.С., Мельников А.В., Елисеев Л.Г. Магнитная составляющая квазикогерентной моды колебаний омической плазмы токамака T-10 817

Конденсированное состояние

Селемир В.Д., Бражкин В.В., Литасов К.Д., Репин П.Б., Коршунов А.С., Быков А.И., Борисков Г.В., Егоров Н.И., Кудасов Ю.Б., Макаров И.В., Маслов Д.А., Павлов В.Н., Платонов В.В., Стрелков И.С., Сурдин О.М., Козабаранов Р.В., Бочкарев А.В., Агапов А.А., Беляева Н.А. Изознтропическое сжатие твердой углекислоты (CO_2) до ультрамегабарных давлений 825

Ерохин С.В., Ращупкин А.А., Чернозатонский Л.А., Сорокин П.Б. Формирование фаз алмаза и/или лонсдейлита из мультиграфена под действием наноиндентора – моделирование методом машинного обучения 831

Щепетильников А.В., Николаев Г.А., Андреева С.А., Хисамеева А.Р., Федотова Я.В., Дрёмин А.А., Кукушкин И.В. Фазовый переход вблизи нечетного фактора заполнения $\nu = 3$ 840

Мартынов С.Н. Анизотропные обменные взаимодействия в ферромагнетике PbMnVO_4 847

Мочалов М.А., Илькаев Р.И., Ерунов С.В., Бликов А.О., Огородников В.А., Елфимов С.Е., Аринин В.А., Комраков В.А., Лихутов М.И., Максимкин И.П., Грязнов В.К., Иосилевский И.Л., Левашов П.Р., Минаков Д.Г., Парамонов М.А. Свойства криптона при ударно-волновом и квазиизэнтропическом сжатиях в области давлений до 2700 ГПа	854
--	-----

Содержание
Том 119, выпуск 12
Поля, частицы, ядра

Осипов А.А. Массы u , d и s кварков 869

Оптика, лазерная физика

Тарасов А.П., Задорожная Л.А., Каневский В.М. Природа оптического усиления в микро-
стержнях ZnO малого диаметра с модами шепчущей галереи 875

**Гурбатов С.О., Шевлягин А.В., Жижченко А.Ю., Модин Е.Б., Кучмижак А.А., Куд-
ряшов С.И.** Фототермическая конверсия и лазерно-индуцированные трансформации в сплавных
кремний-германиевых наночастицах 882

Конденсированное состояние

Бочин А., Честнов И., Налитов А. Гигантский эффективный g -фактор в присутствии спино-
вых бифуркаций в поляритонных конденсатах 890

Потапов Д.О., Кондратюк Н.Д. Влияние ядерных квантовых эффектов на колебательный
спектр и структуру эндофуллерена $H_2O@C_{60}$ 897

Алисултанов З.З. Индуцированная беспорядком сингулярность квантовой метрики 904

**Азаревич А.Н., Богач А.В., Хрыкина О.Н., Болотина Н.Б., Гридчина В.М., Шицева-
лова Н.Ю., Гаврилкин С.Ю., Цветков А.Ю., Габани С., Флахбарт К., Кузнецов А.В.,
Случанко Н.Е.** Локализованная сверхпроводимость в гексабориде LaB_6 с динамическими зарядо-
выми страйпами 909

**Васильев А.Л., Иванова А.Г., Трунькин И.Н., Болотина Н.Б., Покровский В.Я., Зыб-
цев С.Г.** Новый политип вискероидов NbS_3 : от простого к сложному 917

**Кузьмин Н.С., Ярошевич А.С., Брагинский Л.С., Энтин М.В., Квон Э.Д., Михайлов
Н.Н.** Микроволновая фотопроводимость бесцелевых дираковских фермионов в $HgTe$ квантовых
ямах 925

Кирпиченков В.Я., Кирпиченкова Н.В., Кулиничев Е.Р. Знакопеременная девиация одно-
частичной ВАХ грязного SIN-контакта 932

Квантовая информатика

Бигуаа Л.В., Катамадзе К.Г., Бантыш Б.И., Богданов Ю.И. Редуцированная caracteriza-
ция перестраиваемых линейно-оптических интегральных схем 942

Мультидисциплинарное

Бражкин В.В. Метастабильные объекты во Вселенной и их возможная связь со “стрелой времени” 948