

Том 120, Выпуск 1–2

ISSN 0370-274X
Июль 2024



Письма
в
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ



2024 г. Том 120 вып. 1, стр. 1–76

2024 г. Том 120 вып. 2, стр. 77–166



НАУКА
— 1727 —

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 120

Выпуск 1

10 июля 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>

First observation of universality of short range nucleon correlations in the production of strange mesons

Yu. T. Kiselev¹⁾

National Research Center “Kurchatov institute” – KCFI, 117219 Moscow, Russia

Submitted 23 February 2024

Resubmitted 2 June 2024

Accepted 3 June 2024

DOI: 10.31857/S1234567824130019, EDN: ZNAMAX

Nucleon-nucleon short range correlations (SRCs) in nuclei are important part of the nuclear structure and have been a subject of intensive studies in the last years. These objects represent temporary fluctuations in average nuclear matter density that occur when two or more nucleons separated by about 1 fermi (1 fm = 10^{-13} cm). Spatial overlap of correlated nucleons entails a significant increase in SRC density up to four to five times the average nuclear density, $\rho_0 = 0.16 \text{ fm}^{-3}$, and is comparable to the density of neutron stars. The SRC study will provide valuable information about the largely unexplored region of the QCD phase diagram associated with high baryon density and low temperature. Understanding the internal structure of SRCs – whether they are hadronic or quark objects – is one of the unresolved problems of modern nuclear physics and astrophysics. One of the main properties of SRCs is universality, which means that their properties are independent of the atomic masses of the nuclei reflecting the properties of nuclear matter. So far, the property of universality has been observed in electron-nuclear collisions for the breakup of proton-neutron correlations, as well as in proton-nuclear collisions for the production of cumulative pions with high momenta. Both processes involve only light quarks. Up to now, we have almost no experimental information about the flavor dependence of the SRC properties. In this letter, we report the first observation of SRC universality in kaon production on nuclei in the kinematic region of large energy-momentum transfers thereby extending the investigation of the SRC universality to the sector of strange quarks. To this end we reanalyzed our data on the production of high momentum kaons emitted at 97° and 119° (in lab) from nuclear targets irradiated by 10-GeV proton beam. The α^A -dependencies of the per-nucleon cross section ratios for K^+ and K^- meson production on nucleus A to that on ^9Be in the range of dominant contribution to the

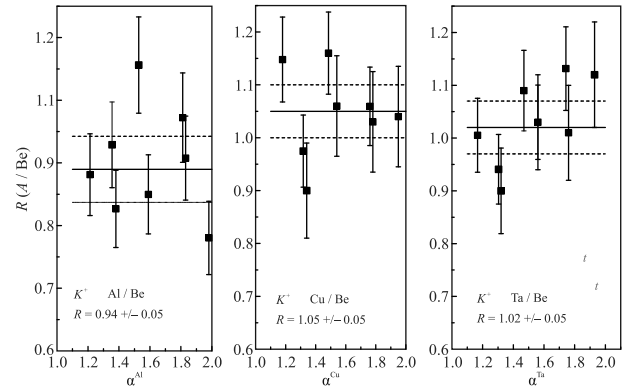


Fig. 1. Ratios of the per-nucleon invariant cross sections for K^+ meson production on nucleus A to that on ^9Be as a function of the variable α^A . Over all normalization uncertainty of 12 % is not shown

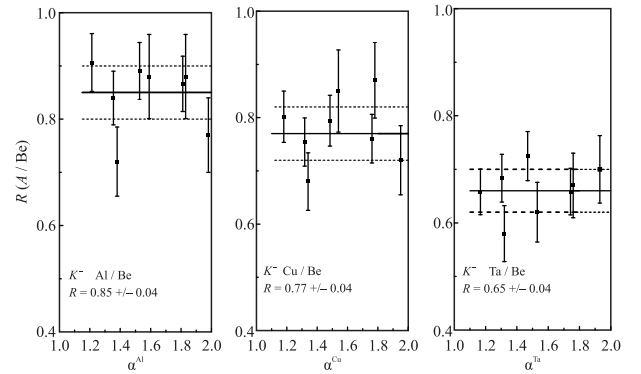


Fig. 2. The same as in Fig. 1, but for K^- mesons

cross sections from two-nucleon correlations are shown in Fig. 1 and 2, respectively. The modified light cone variable α^A is defined in the system where nucleus A moves with high velocity. It accounts for the recoil of the residual $A - 2$ system in the collision of a proton and two-nucleon correlation as well as finite velocity of the colliding objects. The observed plateaus in the cross section ratio indicate the onset of the SRC universality. This is the first observation of the universality of the

¹⁾e-mail: yurikis@itep.ru

SRCs in the strange quark sector. Target atomic mass dependencies of the cross sections for kaon production give an evidence for a weak absorption of K^+ and K^- compared to that expected in the hadronic models. The results of the performed analysis support the QCD motivated models of SRC.

Funding. This work has no funding.

Conflict of interest. The author of this work declares that he has no conflicts of interest.

This is an excerpt of the article “First observation of universality of short range nucleon correlations in the production of strange mesons”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364024601969.

Фазочувствительная плазменная нелинейность, управляемая предельно короткими импульсами

И. В. Савицкий⁺, П. Б. Глек⁺, Р. М. Алиев⁺, Е. А. Степанов^{+,*}, А. А. Воронин^{+,*}, А. А. Ланин^{+,*},
А. Б. Федотов^{+,*1)}

⁺ Физический факультет МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^{*} Российский квантовый центр, 143025 Сколково, Россия

Поступила в редакцию 30 апреля 2024 г.

После переработки 31 мая 2024 г.

Принята к публикации 4 июня 2024 г.

В работе экспериментально продемонстрирована и подтверждена численным моделированием генерация спектральных компонент на чувствительной к фазе несущей относительно огибающей лазерного импульса плазменной нелинейности в тонкой пленке селенида цинка (ZnSe). Реализована схема накачка-зондирование, в которой импульс накачки с длительностью около 1.5 периодов поля, с центральной длиной волны 1.7 мкм и стабилизированной фазой несущей относительно огибающей индуцирует фотоионизацию в тонкой пленке селенида цинка. Зондирующий импульс рассеивается на плазме, генерируя новые фазочувствительные спектральные компоненты на краях своего спектра. Проведенный теоретический анализ подтверждает плазменную нелинейность как механизм генерации этих компонент. Наблюдаемый эффект можно использовать для характеристики фазы предельно коротких импульсов при генерации гармоник высоких порядков и последовательностей аттосекундных импульсов.

DOI: 10.31857/S1234567824130020, EDN: VECKKQ

1. Введение. Среди важнейших явлений оптики сверхбыстрых процессов, активно развиваемой последние три десятилетия [1], особое место занимает эффект туннельной ионизации, теоретически описанный в пионерских работах Л. В. Келдыша [2, 3]. Явление фотоионизации в газах и твердых телах лежит в основе множества фундаментальных и прикладных исследований, связанных, например, с генерацией гармоник высоких порядков [4–6], аттосекундных [7] и терагерцовых [8] импульсов, исследованию сверхбыстрой электронной динамики в твердых телах на петагерцовых частотах [9, 10, 11]. Ионизация и последующая электронная динамика, вызванная сверхкороткими импульсами среднего инфракрасного (ИК) диапазона, позволяет исследовать зонную структуру полупроводников с помощью генерации высоких оптических гармоник [12–14] как в пертурбативном режиме умеренно интенсивных полей, так и в непертурбативном режиме сильных полей. В работах [15–17] проводилось исследование эффекта изменения запрещенной зоны вещества (эффекта Франца–Келдыша [18–21]), вызванного туннельной ионизацией под действием сверхкороткого импульса среднего ИК-диапазона в полупроводни-

ках. Кроме того, в настоящее время большой интерес вызывают исследования возможности управления внутризонной и межзонной электронной динамикой в диэлектриках [22, 23], полупроводниках [24, 25] и двумерных материалах [26–28].

Исследование таких сверхбыстрых процессов требует предельно коротких лазерных импульсов [29–32] со стабилизированной фазой несущей относительно огибающей (ФНО), длительность которых составляет около одного периода поля или меньше [33–36]. В случае возбуждения среды мощными однопериодными лазерными импульсами управление ФНО открывает уникальные возможности для контроля фазочувствительных сверхбыстрых процессов, таких как фотоионизация, генерация гармоник высокого порядка и эффект Франца–Келдыша.

В настоящем письме экспериментально продемонстрировано управление чувствительной к ФНО плазменной нелинейностью, вызывающей генерацию новых спектральных компонент, в тонкой пленке селенида цинка (ZnSe). Сверхбыстрая ионизация, индуцированная интенсивным импульсом среднего ИК-диапазона длительностью около одного периода поля (8.3 фс на центральной длине волны 1.72 мкм) со стабилизированной ФНО в схеме накачка-зондирование в пленке селенида цинка (ZnSe), приводит к рассея-

¹⁾ e-mail: a.b.fedotov@physics.msu.ru

нию широкополосного зондирующего излучения на вызванной электронной плотностью плазменной добавке к показателю преломления. С помощью изменения ФНО можно управлять электронной плотностью ZnSe, а следовательно, и его плазменной нелинейностью.

2. Методы. Для получения сверхкоротких лазерных импульсов была использована лазерная система [37], состоящая из титан-сапфирового лазера и регенеративного усилителя chirпированных импульсов, которые служат в качестве излучения накачки в схеме двухкаскадного оптического параметрического усилителя, на выходе из которого получают 180-мкДж 50-фс импульсы холостой волны с центральной длиной волны около 2 мкм. Часть излучения холостой волны направляется в $f - 2f$ интерферометр для стабилизации ФНО. Другая часть излучения, энергия которой управляется с помощью оптического аттенюатора, фокусируется с помощью линзы из фторида кальция (CaF_2) с фокусным расстоянием 75 мм на торец полого анрезонансного волновода, расположенного в газовой ячейке, заполненной аргоном при давлении 4 атм. На входе и на выходе ячеек использовались сапфировое и CaF_2 окна толщиной 2 мм, а длина волокна составляла 20 см. Поперечная структура волновода представляет собой полую сердцевину с диаметром 70 мкм, окруженную шестью полыми капиллярами с диаметрами 36 мкм и толщиной стенок $d \approx 580$ нм [38]. Дисперсионные свойства, определяемые такой структурой волновода, позволяют реализовать режим солитонной самокомпрессии сверхкороткого лазерного импульса, в результате чего формируется предельно короткий импульс со стабильной ФНО [38] и спектром шириной более октавы (рис. 1b) с длинами волн от 1 до 2.4 мкм. Характеризация импульса была выполнена с помощью метода интерферометрии спектральной фазы для прямого восстановления электрического поля (X-SEA-F-SPIDER [39, 40]), полученный спектр, спектральная фаза и временной профиль импульса представлены на рис. 1a, b.

Длительность импульса составляет $\tau_0 \approx 8.3$ фс (рис. 1c), что при центральной длине волны $\lambda_0 \approx 1720$ нм составляет менее 1.5 периодов электромагнитного поля. Энергия такого импульса составляет $E \approx 20$ мкДж, при этом в центральном предельно коротком пике содержится около половины энергии, т.е. $E_0 \approx 10$ мкДж. Учитывая, что эффективный диаметр моды волновода составляет $w_0 \approx 46$ мкм, интенсивность на торце достигает $I = E_0/(\tau_0 \pi w_0^2) \approx 70$ ТВт/см². Диаметр коллимированного параболическим зеркалом пучка составил 2.2 мм. Во избе-

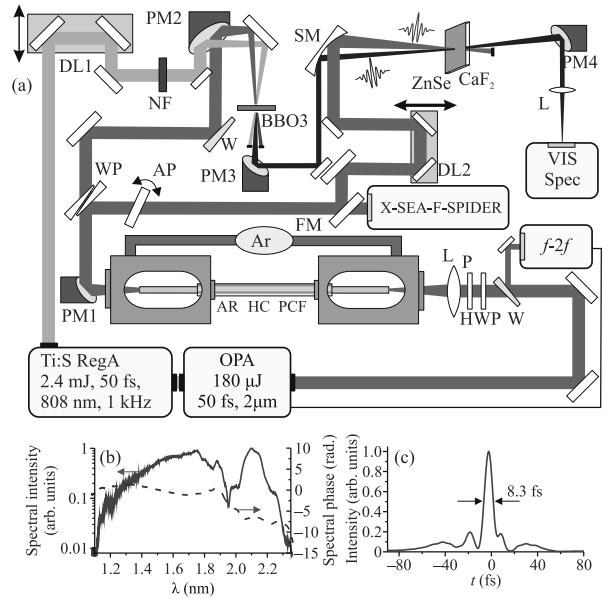


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. Ti:S RegA – фемтосекундный титан-сапфировый генератор и регенеративный усилитель; OPA – двухкаскадный оптический параметрический усилитель; Vis spec – кремниевый спектрометр; X-SEA-F-SPIDER – система характеристики импульсов; $f - 2f$ – нелинейный интерферометр для стабилизации ФНО; BBO3 – кристалл β -бората бария толщиной 0.02 мм; HWP – полуволновая пластинка; P – поляризатор; FM – откидное зеркало; L – линза из CaF_2 с фокусным расстоянием 75 мм; AR HC PCF – однокольцевое анрезонансное полое волокно; W – клиновидные пластины из CaF_2 ; PM1–PM4 – параболические серебряные зеркала с фокусным расстоянием 100 мм; SM – сферическое серебряное зеркало с фокусным расстоянием 100 мм; DL1, DL2 – линии задержки; AP – пластинка из CaF_2

жание пробоя пленки ZnSe в качестве импульса накачки бралось отраженное от клина из CaF_2 излучение, а для компенсации остаточной спектральной фазы и дополнительного ослабления импульс накачки был пропущен через пластину из CaF_2 толщиной 1 мм (AP на рис. 1). Отражение от клина из CaF_2 под углом 45 градусов составляет $\approx 7.4\%$, а отражение от пластинки ослабляло пучок ещё на 15%, в результате чего основной пик импульса накачки имел энергию $E_1 \approx 0.65$ мкДж. Пучок с торца волновода перестраивался на пленку ZnSe без увеличения, так что интенсивность излучения в фокусе на образце достигала $I = E_1/(\tau_0 \pi w_0^2) \approx 4$ ТВт/см².

Генерация короткого зондирующего импульса осуществляется с помощью генерации суммарной частоты (ГСЧ) в кристалле β -бората бария (BBO3 на рис. 1) толщиной 20 мкм. В кристалле

смешиваются два импульса – часть, отделенная от предельно короткого импульса накачки, и квазимонохроматический импульс, получаемый из регенеративного усилителя. Монохроматичность последнего достигается с помощью узкополосного фильтра, выделяющего спектральный диапазон вблизи 800 нм шириной 1 нм. В такой схеме спектральная ширина фазового синхронизма процесса ГСЧ позволяет конвертировать широкополосное ИК излучение в импульс с сопоставимой длительностью, спектр которого лежит в диапазоне от 460 до 600 нм. При этом стоит отметить, что ФНО такого импульса не является стабильной. Широкополосные зондирующий импульс и импульс накачки использовались для реализации неколлинеарной схемы накачка-зондирование с углом между пучками около 5 градусов. Пересечение импульсов в образце обеспечивалась линией задержки DL2, расположенной в плече импульса накачки. В качестве образца была использована пленка ZnSe с толщиной около 1 мкм, напыленная на пластину из CaF₂. Характеризация прошедшего через образец излучения зондирующего импульса произведена с помощью высокочувствительного спектрометра (Maya 2000 Pro Ocean Insight).

На рисунке 2 показаны длинноволновый и коротковолновый края спектра зондирующего импульса. При большой задержке между импульсами, такой что они не пересекаются в пленке ZnSe (рис. 2а, б, при изменении ФНО φ_{CEP} импульса накачки, спектр не меняется. В случае максимального пересечения импульсов в образце (рис. 2с, д) отчетливо наблюдается генерация новых спектральных компонент как на длинноволновом, так и на коротковолновом краях спектра зондирующего импульса, которые осциллируют с периодом π при изменении фазы φ_{CEP} .

Анализ этого эффекта был проведен с помощью численного моделирования кинетического уравнения для динамики электронной плотности и нелинейного уравнения Шредингера для распространения лазерного излучения:

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho(z, t)}{\partial t} &= W(I_{pu}(z, t, \varphi_{CEP})) \\
 &+ \sigma(\omega_{pu})\rho(z, t)I_{pu}(z, t, \varphi_{CEP})/E_g \\
 &- \rho(z, t)/\tau_r,
 \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial A_{pr}(z, \omega)}{\partial z} &= -i \frac{\omega_{pr}^2}{2n_{pr}c\rho_c\omega(1 + \nu_e^2/\omega^2)} F[\rho(z, t)A_{pr}(z, t)] \\
 &- \frac{\sigma(\omega_{pr})}{2} F[\rho(z, t)A_{pr}(z, t)],
 \end{aligned} \quad (2)$$

где $\rho(z, t)$ – электронная плотность, z – координата распространения, t – время в сопровождающей им-

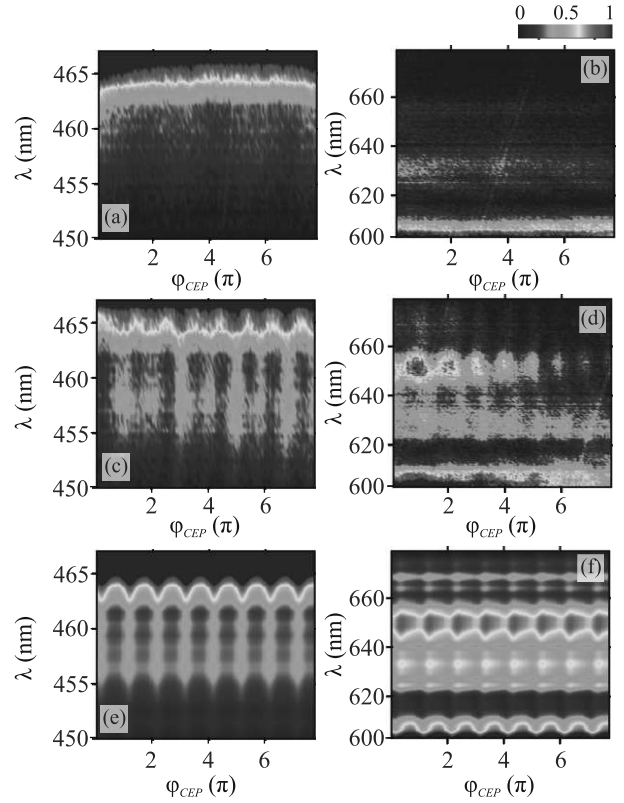


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости выходного спектра зондирующего импульса от фазы несущей относительно огибающей импульса накачки позади тонкой пленки ZnSe толщиной 1 мкм. Задержка была настроена на большое отставание импульса накачки без его пересечения с зондирующим импульсом (а)–(с) и на максимальное пересечение импульсов в образце (d)–(f)

пульс системе координат, $\sigma(\omega) = e^2[m_e\epsilon_0 n_{pu} c \nu_e (1 + \omega^2/\nu_e^2)]^{-1}$ – сечение ударной ионизации в модели Друде, $\nu_e = 1/\tau_e$ – частота электронных столкновений, $\tau_e = 3$ фс [41], ω_{pu} и ω_{pr} – центральные частоты импульсов накачки и зондирующего, $E_g = 2.65$ эВ – ширина запрещенной зоны в отсутствие поля, $n_{pu} = n(\omega_{pu})$ и $n_{pr} = n(\omega_{pr})$ – показатель преломления селенида цинка, вычисленный по формуле Селлмейера [42], m_e – масса электрона, ϵ_0 – диэлектрическая постоянная, A_{pr} – комплексный вид поля зондирующего импульса, I_{pu} – интенсивность импульса накачки, $F[\cdot]$ – преобразование Фурье. Скорость ионизации в туннельном режиме $W(I_{pu})$ рассчитана по модели Аммосова–Делоне–Крайнова [43], в которой она вычисляется от каждого пика электромагнитного поля без усреднения по оптическому периоду. В качестве начального зондирующего поля взят спектрально ограниченный импульс с измеренным в эксперименте спектром в отсутствие импульса накачки (показан на рис. 2а, б), а в качестве начального по-

ля накачки взят измеренный импульс (рис. 1б, с), к которому добавлена ФНО φ_{CER} . Модель учитывает эффекты туннельной и лавинной ионизации, вызванной мощным сверхкоротким импульсом накачки, а также рассеяние зондирующего импульса на плазменной нелинейности. Не включенный в модель керровский эффект не может приводить к наблюдаемому φ_{CER} -зависимому спектральному уширению, так как фазовая само- и кроссмодуляция зависят только от огибающей интенсивности и не зависят от фазы импульса накачки.

Полученный с помощью численного моделирования выходной спектр зондирующего импульса показан на рис. 2е, ф. Хорошее сходство результатов численного моделирования с экспериментально полученными спектрами (рис. 2с, д) подтверждает адекватность выбранной модели и позволяет глубже проникнуть в физический механизм генерации новых спектральных компонент. В зависимости от ФНО φ_{CER} максимальная мгновенная интенсивность импульса накачки различается и достигает максимума при $\varphi_{CER} = 0.4$, составляя ≈ 4 ТВт/см², и минимума при $\varphi_{CER} = 2.4$, составляя ≈ 1.5 ТВт/см². Соответствующие этим фазам временные профили поля показаны на рис. 3а. Мощный импульс накачки ин-

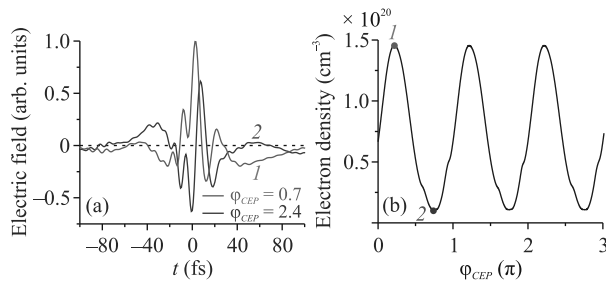


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Поле импульса накачки при двух значениях фазы несущей относительно огибающей $\varphi_{CER} = 0.78$ рад (1) и $\varphi_{CER} = 2.4$ рад (2). (б) – Расчетная зависимость электронной плотности на заднем фронте импульса накачки от фазы φ_{CER} несущей относительно огибающей импульса накачки

дуцирует ионизацию и рост электронной плотности $\rho(z, t)$, максимальное значение которой зависит от фазы φ_{CER} , как показано на рис. 3б, и варьируется от $0.1 \cdot 10^{20}$ до $1.5 \cdot 10^{20}$ см⁻³ при изменении φ_{CER} от 0.7 до 2.4 радиан. Для сравнения, критическая плотность плазмы на длине волны 1.7 мкм составляет $\rho_c = \omega_{pi}^2 m_e \epsilon_0 / e^2 \approx 3.8 \cdot 10^{20}$ см⁻³, где e – заряд электрона. Таким образом, отношение ρ/ρ_c колеблется от 0.03 до 0.4. Временной профиль электронной плотности приводит к зависимым от ФНО нелинейной плазменной добавке к показателю преломления

$\delta n_{pl}(z, t, \varphi_{CER}) \approx -\rho(z, t, \varphi_{CER}) / (2n_{pr}\rho_c)$ и нелинейному плазменному поглощению $\alpha_{pl}(z, t, \varphi_{CER}) \approx \sigma(\omega_{pr})\rho(z, t, \varphi_{CER})/2$, на которых рассеивается поле зондирующего импульса, генерируя по бокам спектра новые, зависящие от ФНО компоненты.

Следует отметить, что плазменная нелинейность в аргоне на выходном торце волновода, формирующего импульс накачки, где пиковая интенсивность достигает около 70 ТВт/см², также может приводить к осцилляциям с периодом π в зависимости спектра зондирующего импульса от φ_{CER} . Однако такая зависимость от фазы наблюдалась бы и в отсутствии импульса накачки на образце. Рисунки 2а, б демонстрируют отсутствие осцилляций с периодом π в спектре зондирующего импульса, тем самым подтверждая, что фазочувствительные спектральные компоненты генерируются в образце ZnSe.

На рисунке 4 показаны карты динамики длинноволнового (рис. 4а, б) и коротковолнового (рис. 4с, д)

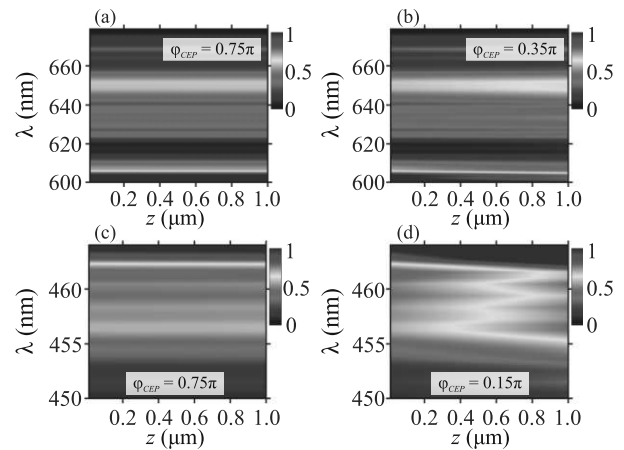


Рис. 4. (Цветной онлайн) Динамика длинноволнового (а), (б) и коротковолнового (с), (д) крыла спектра зондирующего импульса при его распространении в тонкой пленке ZnSe при различных значениях фазы несущей относительно огибающей импульса накачки $\varphi_{CER} = 0.75\pi$ (а), (б), $\varphi_{CER} = 0.35\pi$ (с) и $\varphi_{CER} = 0.15\pi$ (д)

крыла спектра зондирующего импульса при его распространении в ZnSe при двух значениях фазы φ_{CER} импульса накачки, соответствующей самому слабому (рис. 4а, с) и самому сильному (рис. 4б, д) росту спектральных компонент. При фазе $\varphi_{CER} = 0.75\pi$ электронная плотность, индуцированная импульсом накачки, минимальна (рис. 3б), поэтому спектр зондирующего импульса на рис. 4а, б не претерпевает существенных изменений. Напротив, при $\varphi_{CER} = 0.35\pi$ и $\varphi_{CER} = 0.15\pi$ наблюдается максимальный рост компонент в длинноволновой и коротковолно-

вой части спектра, соответственно. При этом электронная плотность составляет более $1.3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$. Фаза $\varphi_{\text{СЕР}}$ максимального роста компонент немного отличается от фазы $\varphi_{\text{СЕР}} = 0.25\pi$ максимальной электронной плотности из-за того, что максимальный рост наблюдается, когда новые, вызванные плазменной нелинейностью компоненты, генерируются в фазе с полем пробного импульса. Также на рис. 4d виден синий сдвиг длин волн коротковолнового крыла спектра зондирующего импульса по мере его распространения в образце, типичный для рассматриваемой плазменной нелинейности.

Полученный эффект можно использовать в дополнение к стандартным методикам в сложной задаче полной характеристики поля $\varphi_{\text{СЕР}}$ -стабильных предельно коротких импульсов видимого и ИК-диапазонов с длительностью около одного и даже меньше одного оптического периода, так как стандартные методики интерферометрии спектральной фазы для прямого восстановления электрического поля (X-SEA-F-SPIDER) и разрешенное по частоте оптическое стробирование сигнала второй гармоники (SHG FROG) восстанавливают только огибающую интенсивности столь коротких импульсов, но не дают информацию о их абсолютной фазе. Точный контроль над фазой однопериодных импульсов позволит управлять сверхбыстрой электронной динамикой в диэлектрических и полупроводниковых средах при процессах генерации гармоник высоких порядков и последовательностей аттосекундных импульсов.

4. Заключение. Таким образом, экспериментально продемонстрировано спектральное уширение, вызванное чувствительной к фазе накачки относительно огибающей плазменной нелинейностью. Реализована схема накачка-зондирование, в которой импульс накачки с длительностью около 1.5 оптического периода и с центральной длиной волны 1.7 мкм со стабилизированной фазой несущей относительно огибающей индуцирует чувствительную к этой фазе ионизацию в тонкой пленке селенида цинка. Зондирующий импульс рассеивается на плазме, генерируя новые спектральные компоненты на краях своего спектра. Выполненный с помощью численного моделирования анализ показывает, что новые спектральные компоненты генерируются за счет плазменной нелинейной добавки к показателю преломления и нелинейного плазменного поглощения.

Авторы выражают глубокую благодарность профессору А.М. Жёлтикову за всестороннюю поддержку. Работа выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования высокопроизводительными вычислительными ресур-

сами МГУ имени М.В. Ломоносова. П. Б. Глек благодарит фонд “Базис” (# 20-2-10-2-1). И. В. Савицкий благодарит фонд “Базис” (# 22-2-2-4-1).

Финансирование работы. Работа поддержана Российским научным фондом (19-72-10054, исследования в области мощных сверхкоротких лазерных импульсов; 22-12-00149, исследование в области стабилизации фазы предельно коротких импульсов).

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

1. T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. **72**, 545 (2000).
2. Л. В. Келдыш, ЖЭТФ **47**, 1945 (1965).
3. А. М. Переломов, В. С. Попов, М. В. Терентьев, ЖЭТФ **50**, 1393 (1966).
4. P. B. Corkum and F. Krausz, Nat. Phys. **3**, 381 (2007).
5. G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, and P. B. Corkum, Nature **522**, 462 (2015).
6. O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, Nat. Photonics **8**, 119, (2014).
7. A. Baltuška, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, and T. W. Hänsch, Nature **421**, 611 (2003).
8. M. Kreß, T. Löffler, M. D. Thomson, R. Dörner, H. Gimpel, K. Zrost, T. Ergler, R. Moshhammer, U. Morgner, J. Ullrich, and H. G. Roskos, Nat. Phys. **2**, 327 (2006).
9. A. Schiffrin, T. Paasch-Colberg, N. Karpowicz et al. (Collaboration), Nature **493**, 70 (2013).
10. F. Krausz and M. I. Stockman, Nat. Photonics **8**, 205 (2014).
11. M. Lucchini, S. A. Sato, A. Ludwig, J. Herrmann, M. Volkov, L. Kasmi, Y. Shinohara, K. Yabana, L. Gallmann, and U. Keller, Science **353**, 916 (2016).
12. А. А. Ланин, А. М. Желтиков, Письма в ЖЭТФ, **104**, 475 (2016).
13. А. А. Ланин, Е. А. Степанов, А. В. Митрофанов, Д. А. Сидоров-Бирюков, А. Б. Федотов, and А. М. Желтиков, Opt. Lett. **44**, 1888 (2019).
14. А. А. Ланин, Е. А. Степанов, А. Б. Федотов, and А. М. Желтиков, Optica **4**, 516 (2017).
15. A. Srivastava, R. Srivastava, J. Wang, and J. Kono, Phys. Rev. Lett. **93**, 157401 (2004).
16. S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, U. B. Szafruga, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, Phys. Rev. Lett. **107**, 167407 (2011).
17. Y. Zhong, Z. Zeng, Z. Jia, Y. Zheng, G. Li, X. Yuan, X. Ge, and R. Li, Opt. Commun. **395**, 261 (2017).

18. Л. В. Келдыш, ЖЭТФ **34**, 1138 (1958).
19. K. B. Nordstrom, K. Johnsen, S. J. Allen, A.-P. Jauho, B. Birnir, J. Kono, T. Noda, H. Akiyama, and H. Sakaki, Phys. Rev. Lett. **81**, 457 (1998).
20. A. H. Chin, J. M. Bakker, and J. Kono, Phys. Rev. Lett. **85**, 3293 (2000).
21. A. H. Chin, O. G. Calderón, and J. Kono, Phys. Rev. Lett. **86**, 3292 (2001).
22. S. Sederberg, D. Zimin, S. Keiber, F. Siegrist, M. S. Wismer, V. S. Yakovlev, I. Floss, C. Lemell, J. Burgdörfer, and M. Schultze, Nat. Commun. **11**, 430 (2020).
23. D. Hui, H. Alqattan, S. Yamada, V. Pervak, K. Yabana, and M. T. Hassan, Nat. Photonics **16**, 33 (2022).
24. G. Vampa, T. Hammond, M. Taucer, X. Ding, X. Ropagnol, T. Ozaki, S. Delprat, M. Chaker, N. Thiré, and B. Schmidt, Nat. Photonics **12**, 465 (2018).
25. G. Inzani, L. Adamska, A. Eskandari-asl, N. Di Palo, G. L. Dolso, B. Moio, L. J. D'Onofrio, A. Lamperti, A. Molle, and R. Borrego-Varillas, Nat. Photonics **17**, 1 (2023).
26. T. Higuchi, C. Heide, K. Ullmann, H. B. Weber, and P. Hommelhoff, Nature **550**, 224 (2017).
27. C. Heide, Y. Kobayashi, A. C. Johnson, F. Liu, T. F. Heinz, D. A. Reis, and S. Ghimire, Optica **9**, 512 (2022).
28. T. Boolakee, C. Heide, A. Garzón-Ramírez, H. B. Weber, I. Franco, and P. Hommelhoff, Nature **605**, 251 (2022).
29. A. Wirth, M. T. Hassan, I. Grguraš, J. Gagnon, A. Moulet, T. T. Luu, S. Pabst, R. Santra, Z. A. Alahmed, A. M. Azzeer, V. S. Yakovlev, V. Pervak, F. Krausz, and E. Goulielmakis, Science **334**, 195 (2011).
30. S.-W. Huang, G. Cirimi, J. Moses, K.-H. Hong, S. Bhardwaj, J. R. Birge, L.-J. Chen, E. Li, B. J. Eggleton, and G. Cerullo, Nat. Photonics **5**, 475 (2011).
31. E. Ridente, M. Mamaikin, N. Altwaijry, D. Zimin, M. F. Kling, V. Pervak, M. Weidman, F. Krausz, and N. Karpowicz, Nat. Commun. **13**, 1111 (2022).
32. И. В. Савицкий, Е. А. Степанов, А. А. Ланин, А. Б. Федотов, Письма в ЖЭТФ **117**, 285 (2023).
33. T. Balciunas, C. Fourcade-Dutin, G. Fan, T. Witting, A. A. Voronin, A. M. Zheltikov, F. Gerome, G. G. Paulus, A. Baltuska, and F. Benabid, Nat. Commun. **6**, 6117 (2015).
34. U. Elu, M. Baudisch, H. Pires, F. Tani, M. H. Frosz, F. Köttig, A. Ermolov, P. St. J. Russell, and J. Biegert, Optica **4**, 1024 (2017).
35. E. A. Stepanov, A. A. Voronin, F. Meng et al. (Collaboration), Phys. Rev. A **99**, 033855 (2019).
36. И. В. Савицкий, А. А. Воронин, Е. А. Степанов, А. А. Ланин, А. Б. Федотов, Письма в ЖЭТФ, **118** 493 (2023).
37. I. V. Savitsky, E. A. Stepanov, A. A. Lanin, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, ACS Photonics **9**, 1679 (2022).
38. I. V. Savitsky, A. A. Voronin, E. A. Stepanov, A. A. Lanin, and A. B. Fedotov, Opt. Lett. **48**, 4469 (2023).
39. G. Fan, T. Balčiūnas, C. Fourcade-Dutin, S. Haessler, A. A. Voronin, A. M. Zheltikov, F. Gérôme, F. Benabid, A. Baltuška, and T. Witting, Opt. Express **24**, 1614 (2016).
40. И. В. Савицкий, Е. А. Степанов, А. А. Ланин, А. А. Воронин, Е. Е. Серебрянников, А. А. Иванов, М. Ху, Я. Ли, А. Б. Федотов, А. М. Желтиков, Письма в ЖЭТФ **115**, 437 (2022).
41. S.-H. Nam, G. C. Nagar, D. Dempsey, O. Novák, B. Shim, and K.-H. Hong, High Power Laser Science and Engineering **9**, e12 (2021).
42. J. Connolly, B. diBenedetto, and R. Donadio, Proc. SPIE **181**, 141 (1979).
43. М. В. Аммосов, Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, ЖЭТФ **91**, 2008 (1986).

Измерение корреляций в поле параметрического рассеяния света с помощью аналоговых детекторов

Д. А. Сафроненков¹⁾, Г. Х. Китаева⁺*

⁺ Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

* Южно-Уральский государственный университет, лаборатория “Квантовая инженерия света”, 454080 Челябинск, Россия

Поступила в редакцию 4 июня 2024 г.

После переработки 6 июня 2024 г.

Принята к публикации 6 июня 2024 г.

Предложен и экспериментально апробирован метод измерения корреляционной функции бифотонного поля, не требующий применения однофотонных детекторов и схем совпадений фотоотсчетов. Метод основан на статистическом анализе токовых показаний аналоговых детекторов. На примере работы схемы с аналоговыми ФЭУ в сигнальном и холостом каналах вырожденного параметрического рассеяния света показано, что новый подход позволяет получить значения корреляционной функции, совпадающие с результатами применения стандартной техники счета фотонов. Показано, как по результатам измерения корреляционной функции определяются абсолютные значения чисел фотонов и мощности излучения в сигнальном канале схемы параметрического рассеяния. Переход на аналоговое детектирование способен расширить границы спектральных и динамических диапазонов электромагнитного излучения для применения квантово-оптических технологий. В качестве первого примера применения продемонстрирован метод безэталонного измерения спектральной чувствительности фотоприемного модуля аналогового типа.

DOI: 10.31857/S1234567824130032, EDN: SIEBJO

Бифотонное поле, генерируемое в процессе спонтанного параметрического рассеяния (СПР) при распаде фотонов лазерной накачки в нелинейной среде, широко применяется в самых различных схемах современной квантовой информации, криптографии и сенсорики [1–4]. Важным параметром, характеризующим его неклассические свойства, является взаимная корреляционная функция второго порядка $g_{si}^{(2)}$ сигнальных (индекс “s”) и холостых (“i”) фотонов в бифотонных парах

$$g_{si}^{(2)} = \frac{\langle I_s I_i \rangle}{\langle I_s \rangle \langle I_i \rangle} = \frac{\langle : \hat{N}_s \hat{N}_i : \rangle}{\langle \hat{N}_s \rangle \langle \hat{N}_i \rangle}. \quad (1)$$

Корреляционная функция формально определяется через интенсивности сигнального и холостого излучения $I_{s,i}$ и рассчитывается в теории через моменты операторов чисел фотонов $\hat{N}_{s,i}$. Примечательно, что эту характеристику можно измерять с помощью двух детекторов сигнального и холостого излучения без каких-либо поправок на их неидеальную квантовую эффективность, единственным условием является линейность связи отклика каждого детектора с интенсивностью измеряемого излучения. Согласно общей теории СПР [5], квантовое превышение ве-

личины $g_{si}^{(2)}$ над классическим уровнем однозначно связано со средним числом рождающихся бифотонов $N = \langle \hat{N}_i \rangle = \langle \hat{N}_s \rangle$. Например, в наиболее распространенном случае раздельного детектирования сигнального и холостого излучения СПР, измерив $g_{si}^{(2)}$, можно точно определить среднее число фотонов СПР, поступавших за время детектирования на каждый фотоприемник. При детектировании в пределах большого числа мод излучения $M \gg 1$ справедливо простое соотношение

$$N = \left(g_{si}^{(2)} - 1 \right)^{-1}. \quad (2)$$

Это свойство позволяет использовать поле СПР каждого канала в качестве источника с известным средним числом фотонов. Фактически на нем основан хорошо известный метод абсолютной калибровки квантовой эффективности однофотонных детекторов – счетчиков элементарных фото-отсчетов [6, 7]. Квантовая эффективность η , по определению равная отношению измеренных за одно и то же время чисел фото-отсчетов m и фотонов N , вычисляется как $\eta = m \left(g_{si}^{(2)} - 1 \right)$ для детектора, стоящего в сигнальном или холостом канале с более широким набором мод детектирования. В принципе, после этого легко определяется и спектральная ампер-ваттная чув-

¹⁾ e-mail: safronenkov.da14@physics.msu.ru

ствительность детектора на частоте детектирования ω , если известен средний заряд $\langle q_0 \rangle$, формирующий-ся на выходе фотоприемника при регистрации одного фотона:

$$S_\omega = \frac{\langle q_0 \rangle}{\hbar\omega} \eta. \quad (3)$$

Метод безэталонной квантовой калибровки счетчиков фотонов, предложенный Д.Н. Клышко [8], широко применяется сегодня при настройке квантово-оптических схем, однако до сих пор не нашел своего применения при аттестации спектральной чувствительности значительно более широкого класса детекторов – детекторов, которые не обладают функцией однофотонного отклика. Среди таких детекторов – большинство эффективных приемников оптического излучения с гораздо более высоким динамическим диапазоном и меньшим “мертвым” временем, подавляющее большинство пространственно-разрешающих матричных детекторов, приемников излучения дальней инфракрасной (ИК) и терагерцовой областей частот. Как правило, калибровка их аналоговых показаний в единицах энергетических параметров излучения проводится достаточно сложным путем передачи единиц от модельных эталонных устройств – через серию промежуточных вторичных эталонов и рабочих средств измерения [9].

Амплитуды мгновенных однофотонных и столь же коротких шумовых откликов аналоговых детекторов, не способных оперировать в счетном режиме, меняются в широких пределах и имеют слишком большие статистические разбросы с перекрывающимися распределениями. Тем не менее, статистический анализ гистограмм показаний таких детекторов, снятых за малые времена детектирования, в условиях маломощного облучения позволяет определить как среднее значение однофотонного заряда $\langle q_0 \rangle$, так и среднее число элементарных актов детектирования фотонов m [10, 11]. Подобный анализ позволил в нашей предыдущей работе [12] провести калибровку квантовой эффективности катода аналогового фото-электронного умножителя (ФЭУ) с помощью предложенной модификации метода Клышко. Число фото-отсчетов ФЭУ было определено путем моделирования статистических распределений его показаний, однако число падающих фотонов вычислялось при этом по измерениям корреляционной функции бифотонов $g_{si}^{(2)}$ стандартным способом – с заменой аналоговых детекторов счетчиками фотонов. Полностью отказаться от привлечения счетных детекторов, предложив адекватную процедуру моделирования статистических распределений показаний аналоговых приемников, не удалось. Действительно,

для определения $g_{si}^{(2)}$ необходимо исключить вклады шумовой природы не только из показаний отдельных детекторов, но и из произведений этих показаний. Сделать это путем моделирования двумерных распределений совместных показаний сигнального и холостого детекторов аналогового типа чрезвычайно сложно. Приведенный пример использования излучения СПР в качестве источника с эталонным числом фотонов показывает актуальность задачи измерения бифотонной корреляционной функции $g_{si}^{(2)}$ с помощью аналоговых приемников. Помимо абсолютной фотометрии, точные измерения $g_{si}^{(2)}$ по показаниям аналоговых детекторов требуются для применения квантовых технологий в тех областях спектра, где по-прежнему отсутствуют однофотонные детекторы или, тем более, детекторы с разрешением по числу фотонов, для применения аналоговых матричных фотоприемников, для измерения ковариации интенсивностей сигнальных и холостых полей, генерируемых при параметрическом рассеянии в условиях высокого усиления.

При создании однофотонных фотоприемников исключение шумовых вкладов проводится путем дискриминации тех показаний исходного детектора, амплитуда которых меньше выбранного уровня, а все прошедшие через окно дискриминации импульсы интерпретируются как результаты регистрации единичных фотонов. При этом фотоприемник освещается непрерывным излучением малой мощности, так что длительность отдельных элементарных импульсов фототока детектора существенно меньше, чем среднее расстояние между ними. Дискриминация шумовых импульсов по амплитуде возможна только для фоточувствительных устройств ограниченного типа. Применение этой процедуры к остальным детекторам, с более высоким разбросом амплитуд как шумовых, так и однофотонных импульсов, приводит к потере информации о низкоамплитудных фото-отсчетах. В итоге прошедшие дискриминацию показания перестают линейно зависеть от мощности падающего излучения.

При использовании аналогового детектора в одном из каналов СПР возможен также другой вариант исключения шумов. Так называемая условная (*heralding*) дискриминация осуществляется по показаниям однофотонного детектора, расположенного в противоположном (сигнальном) канале СПР [13]. Поскольку при СПР сигнальные и холостые фотоны генерируются только парами, отсутствие фотона за время детектирования в сигнальном канале с высокой вероятностью означает, что в это же время холостой аналоговый детектор также регистри-

ровал только темновой шум. На этом основании соответствующие показания в обоих каналах дискриминируются (приравниваются нулю). Тем не менее, эффективность применения этого варианта дискриминации для высокоточного измерения корреляционной функции $g_{si}^{(2)}$ зависит от того, насколько велика квантовая эффективность однофотонного приемника и насколько точно можно отделить его однофотонные показания от шумовых при аналоговом детектировании. И, как уже упоминалось, применение однофотонных детекторов возможно далеко не во всех схемах квантовых технологий на основе параметрического рассеяния.

В настоящей работе мы предлагаем другой вариант работы с показаниями аналоговых детекторов для определения $g_{si}^{(2)}$ в бифотонном поле СПР. В отличие от предыдущих подходов, какая-либо исходная дискриминация показаний в принципе отсутствует и при этом возможно использование в обоих каналах СПР аналоговых детекторов. В проведенных экспериментах метод продемонстрирован на фотоприемных модулях H7422-20 и H7422-50PA Hamamatsu на основе ФЭУ.

Схема экспериментальной установки изображена на рис. 1. Генерация одинаковых по частоте сигнальных и холостых фотонов осуществлялась в кристалле BiBO толщиной 0.5 мм при коллинеарном процессе СПР типа I. Накачкой при этом служило одномодовое излучение диодного лазера на длине волны 405 нм, сфокусированное кварцевой линзой с фокусным расстоянием $F = 40$ мм (L_1). Между кристаллом и лазером размещались также изолятор Фарадея (IF), полуволновая пластинка для поворота плоскости поляризации ($\lambda/2$) и фильтр (F_1), отсекающий излучение на частотах, меньших частоты генерации лазера. Следующий фильтр (F_2) стоял после кристалла и уже не пропускал излучение накачки; прошедшее через него бифотонное излучение СПР собиралась линзой (L_2 , $F=45$ мм) и попадало на светоделитель (BS), разделяющий фотоны по “сигнальным” или “холостым” каналам. Следует отметить, что в такой конфигурации возможно как попадание обоих фотонов из бифотонной пары в один и тот же канал, так и разделение их по двум разным каналам. Этого не происходит в случае применения СПР в геометрии типа II, когда однозначное разделение фотонов каждой пары по двум разным каналам регистрации производится на поляризационном светоделителе. Однако в геометрии типа I отсутствуют эффекты сноса лучей необыкновенной поляризации, а особенности разделения фотонов на неполяризационном светоделителе легко учитывают-

ся при расчете корреляционной функции исходного поля [14, 15].

Далее, в каналах отдельной регистрации использовались узкополосные фильтры (F_s и F_i с полосами пропускания 40 и 10 нм, соответственно) и волоконно-линзовые адаптеры (L_s и L_i), передававшие излучение на входы фотоприемных модулей Hamamatsu (D_s и D_i). Как видно на рис. 1, сигнальным назван канал, в котором регистрировалось излучение большего числа M продольных (частотных) и поперечных (угловых) мод. При этом выполнялось соотношение $M \gg 1$.

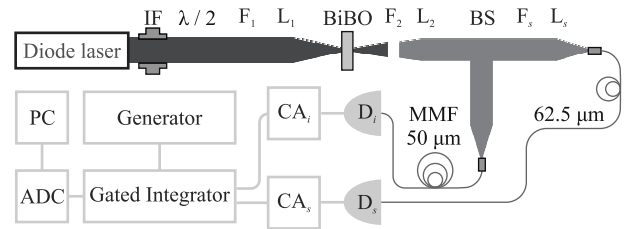


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. L_1 , L_2 , L_i , L_s – линзы; F_1 , F_2 , F_i , F_s – фильтры; BS – светоделитель; D_i , D_s – детекторы; CA_i , CA_s – зарядовые усилители; MMF – многомодовые волокна, Gated Integrator – стробируемый интегратор Voxcar SR-250

Все импульсы фототоков ФЭУ, поступающие в фотоприемных модулей, после прохождения зарядовых усилителей (CA_i и CA_s) направлялись на входы двух независимых ячеек стробируемого интегратора Voxcar SR-250. На выходе ячеек формировались сигналы, пропорциональные средним токам детекторов за короткие времена стробирования $t_s = 500$ нс. Выбор минимальной длительности интервала стробирования был ограничен длительностью элементарных импульсов фототоков ФЭУ, растянутых после прохождения зарядовых усилителей. Интервалы стробирования запускались синхронно на двух ячейках по сигналу с внешнего генератора с частотой 10 кГц. Многократно измеренные таким образом разовые показания детекторов J_s^k и J_i^k через аналого-цифровой преобразователь (ADC) поступали в базу данных компьютера (PC) для последующей математической обработки. Здесь анализировались статистические распределения измеренных показаний и определялись средние значения токов каждого детектора $\langle J_{s,i} \rangle = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n J_{s,i}^k$ (n – полное число данных в выборке) и средние произведения синхронно измеренных токов $\langle J_s J_i \rangle = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n J_s^k J_i^k$.

На рисунке 2 в качестве примера приведены гистограммы показаний одного из детекторов (Н7422-50РА), измеренные как при наличии, так и в отсутствие падающих фотонов СПР. Для удобства последующего анализа спектральной чувствительности детекторов, все снятые через АЦП показания здесь прокалиброваны в единицах тока непосредственно на выходе фотоприемного модуля (до предусилителя). Видно, что шумовые показания ФЭУ, измеренные отдельно при перекрытой накачке СПР (мощность 0 мВт), вносят весьма существенный вклад в суммарные показания при всех мощностях накачки. При увеличении мощности накачки в основном меняется только плавно растущее правое крыло распределения.

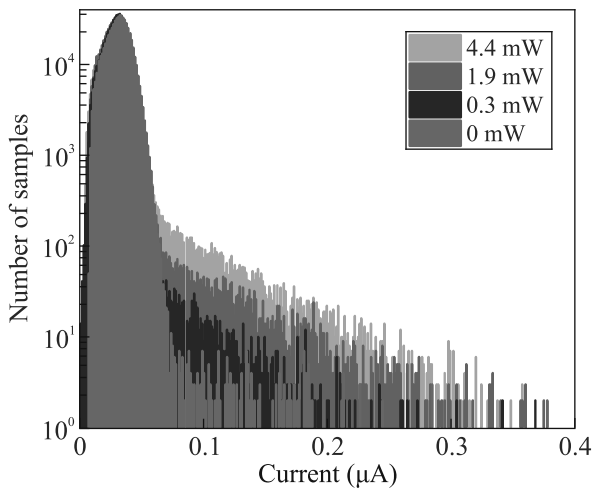


Рис. 2. (Цветной онлайн) Гистограммы статистических распределений токов ФЭУ, зарегистрированных в сигнальном канале при различных мощностях лазерной накачки: 4.5 мВт (желтый цвет), 1.9 мВт (зеленый цвет), 0.3 мВт (синий цвет) и 0 мВт (серый цвет)

Каждое измеренное показание $J_{s,i}^k$ состоит из суммы сильно флуктуирующих фототока $J_{s,i}^{k'}$ и темнового тока (J_{s0}^k или, соответственно, J_{i0}^k), присутствовавшего на момент регистрации $J_{s,i}^k$. Однако для измерения корреляционной функции необходимо знать средние моменты с участием только фототоков. С учетом того, что возможно попадание обоих фотонов коррелированной пары на один и тот же детектор, корреляционная функция (1) для исходного бифотонного поля при этом должна рассчитываться по формуле [15]

$$g_{si}^{(2)} = 2 \frac{\langle J_s' J_i' \rangle}{\langle J_s' \rangle \langle J_i' \rangle} - 1 - \frac{1}{M} \approx 2 \frac{\langle J_s' J_i' \rangle}{\langle J_s' \rangle \langle J_i' \rangle} - 1. \quad (4)$$

Средние значения фототоков определялись в нашей работе после независимого измерения средних шу-

мовых токов $\langle J_{s0,i0} \rangle = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n J_{s0,i0}^k$ при выключенном излучении лазера:

$$\langle J_{s,i}' \rangle = \langle J_{s,i} \rangle - \langle J_{s0,i0} \rangle. \quad (5)$$

В эксперименте важно было исключить любую возможную дискриминацию низких показаний при измерении полных токов детекторов. Действительно, малые шумовые токи, которые при измерении темновых показаний определяют только левое крыло соответствующей шумовой гистограммы, при освещении детектора внешним излучением дают вклады в суммарные показания с более высокими значениями. Будучи проигнорированы на стадии измерения $\langle J_{s0,i0} \rangle$, они не могли бы быть полностью исключены при вычислении среднего фототока с помощью простого вычитания (5).

Для адекватного вычисления корреляции фототоков $\langle J_s' J_i' \rangle$ потребовалось удостовериться в отсутствии взаимных ковариаций шумовых показаний двух детекторов. Действительно, корреляционная функция $g_{s0i0}^{(2)}$, измеренная при выключенном излучении СПР, составила $g_{s0i0}^{(2)} = 1 \pm 0.005$. Отсутствовали также ковариации фото- и темновых показаний двух различных детекторов. В этом случае нетрудно показать, что справедливо соотношение

$$\langle J_s' J_i' \rangle = \langle J_s J_i \rangle - \langle J_s \rangle \langle J_{i0} \rangle - \langle J_i \rangle \langle J_{s0} \rangle + \langle J_{s0} \rangle \langle J_{i0} \rangle. \quad (6)$$

Значения корреляционной функции $g_{si}^{(2)}$, рассчитанные с помощью соотношений (4)–(6) по данным, снятым при различных значениях мощности накачки, приведены на рис. 3. Характер поведения полученной зависимости полностью совпадает с теоретически предсказываемой для СПР: с уменьшением мощности накачки P пропорционально падает число генерируемых бифотонов и обратно пропорционально растет величина квантового превышения корреляционной функции, $g_{si}^{(2)} - 1 \propto P^{-1}$.

На рисунке 3 также приведены результаты независимого определения $g_{si}^{(2)}$ стандартным методом счета фотонов. С целью проверки численного совпадения полученных новым методом результатов с истинными значениями бифотонной корреляционной функции аналоговые детекторы ФЭУ D_i и D_s были заменены на детекторы-счетчики фотонов на основе однофотонных лавинных фотодиодов (ЛФД). Импульсы фототока с приемных модулей ЛФД поступали на схему, где в течение одного и того же интервала времени T измерялись числа фотоотсчетов в каждом канале m_s и m_i , а также число совпадений фотоимпульсов из двух каналов m_{cc} . Пространственные моды, в пределах которых измерялось поле СПР, опре-

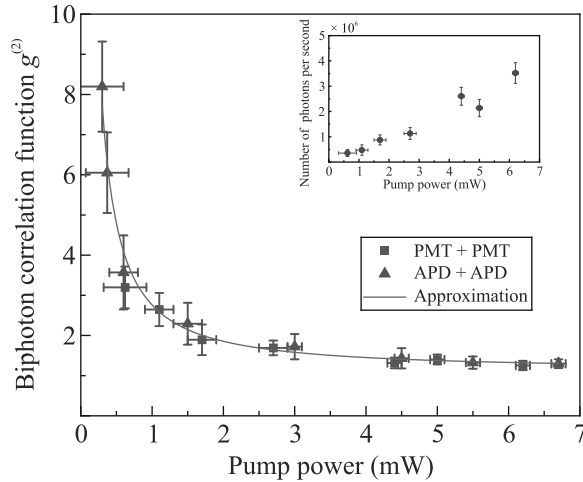


Рис. 3. (Цветной онлайн) Значения бифотонной корреляционной функции, определенные экспериментально при различных мощностях излучения накачки с использованием аналоговых фотоприемников на основе ФЭУ (голубые квадраты) и счетчиков фотонов на основе ЛФД (красные треугольники). Сплошная линия – результат аппроксимации теоретической зависимостью для СПР в режиме слабого усиления, на вставке – результат расчета чисел фотонов, генерируемых в единицу времени, с помощью соотношения (2)

делялись волоконными волноводами ММВ и оставались одними и теми же в обоих экспериментах. Однако совпадения определялись в пределах узкого временного окна $t_{cc} = 8$ нс, которое служило временем детектирования в данном эксперименте. Соответственно, регистрировалось значительно меньшее число продольных мод, чем в экспериментах с показаниями аналогового ФЭУ, усредняемыми в течение $t_s = 500$ нс. Сначала рассчитывалась корреляционная функция для поля СПР данного модового состава с помощью известного соотношения [5, 15]

$$g_{cc}^{(2)} = 2 \frac{m_{cc}T}{(m_i - m_{i0})(m_s - m_{s0})t_{cc}}, \quad (7)$$

в котором m_{s0} и m_{i0} – числа темновых фотоотсчетов ЛФД, измеренные за такой же интервал общего времени T . Далее, для сравнения с результатами определения $g_{si}^{(2)}$ в схеме аналогового детектирования, полученные значения корреляционной функции были пересчитаны в значения $g^{(2)}$, актуальные для проведенного эксперимента с более высоким числом мод. Для этого использовалось соотношение $(g_{cc}^{(2)} - 1)/(g^{(2)} - 1) = t_s/t_{cc} = 62.5$. Приведенные на рис. 3 данные независимых измерений демонстрируют хорошее совпадение результатов определения корреляционной функции одного и того же модового

поля СПР с помощью стандартной методики счета фотонов и предложенного подхода.

Вслед за измерением $g_{si}^{(2)}$, использование предложенного метода и соотношения (2) позволило определить средние числа N – числа бифотонов, генерируемых в кристалле BiBO, и, соответственно, числа фотонов, попадающих в сигнальный (более широкий) канал детектирования (см. вставку на рис. 3). Отметим, что эта информация, необходимая для метрологической аттестации аналоговых детекторов в сигнальном канале, была получена без помощи детекторов-счетчиков фотонов. По результатам независимого измерения, коэффициент пропускания сигнального излучения (на длине волны 808 нм) всеми элементами, расположенными между кристаллом и сигнальным детектором, составил $K_s = 0.390 \pm 0.005$. Таким образом, становится известным число фотонов $K_s \langle N_s \rangle$, падавшее на детектор, а также абсолютное значение мощности детектируемого излучения $P_s = \hbar\omega_s K_s \langle N_s \rangle / t_s$. Отношение среднего фототока к мощности падающего излучения P_s определяет анодную ампер-ваттную чувствительность фотоприемного модуля S_ω . Результаты соответствующих вычислений по данным, полученным при различных значениях мощности накачки СПР, приведены на рис. 4. Видно, что в пределах статистического разброса полученные значения чувствительности одинаковы и для исследованного излучения на длине волны 810 нм составляют $S_\omega \simeq (1.3 \pm 0.2) \cdot 10^4$ А/Вт. Эта величина хорошо согласуется с данными сайта корпорации Hamamatsu [16], где для модуля H7422-20 приводится величина $S_\omega = 3.6 \cdot 10^4$ А/Вт на длине волны максимальной чувствительности приемника 550 нм. При этом, по данным корпорации, чувствительность падает в несколько раз при смещении длины волны в область 810 нм.

Точность полученного в нашей работе значения чувствительности фотоприемного модуля определяется ошибками измерения всех экспериментальных параметров, входящих в итоговое выражение для расчета

$$S_\omega = \frac{t_s(g_{si}^{(2)} - 1)}{\hbar\omega_s K_s} (\langle J_s \rangle - \langle J_{s0} \rangle). \quad (8)$$

При необходимости, точность может быть значительно улучшена – в первую очередь, за счет увеличения объема статистической выборки данных при снятии токовых показаний детекторов и исключения возможных систематических ошибок при измерении коэффициента пропускания оптических элементов в сигнальном канале СПР.

Таким образом, в данной работе предложен и верифицирован новый метод измерения корреляци-

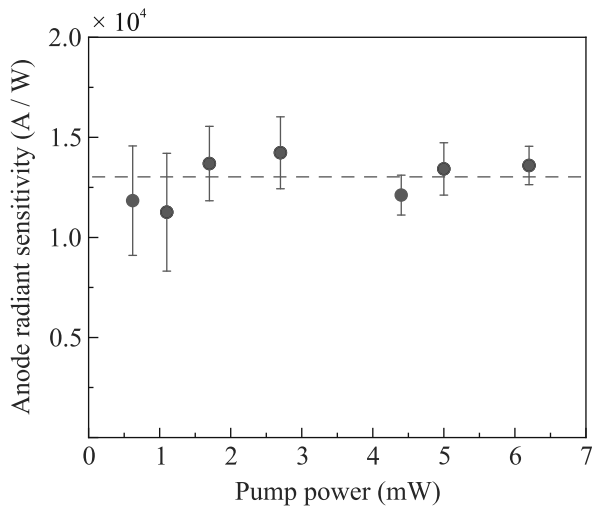


Рис. 4. (Цветной онлайн) Значения анодной амперваттной чувствительности фотоприемного модуля Н7422-20 на длине волны 810 нм, определенные методом СПР при различных мощностях излучения накачки

онной функции бифотонного поля. Метод не требует использования детекторов-счетчиков фотонов ни в одном из каналов детектирования и может быть использован для определения чисел фотонов, падающих на фотоприемник любого типа. Переход на аналоговые детекторы при регистрации корреляционных параметров неклассических полей будет способствовать расширению границ спектральных и динамических диапазонов электромагнитного излучения, в которых возможно применение квантово-оптических технологий. В качестве первого примера применения проведена демонстрация безэталонного измерения спектральной чувствительности фотоприемного модуля аналогового типа. Новый подход к измерению корреляций в бифотонном поле способен в будущем вывести метод квантовой калибровки детекторов на новый метрологический уровень, сделав доступными абсолютные измерения энергетических параметров излучения терагерцового и дальнего ИК излучения, спектральной чувствительности матричных и однопиксельных фотоприемников с существенно более широким динамическим диапазоном линейного отклика.

Авторы благодарны П. А. Прудковскому и К. А. Балыгину за помощь в обсуждении результатов, а также Д. А. Сафроненков выражает благо-

дарность фонду развития теоретической физики и математики “Базис”.

Финансирование работы. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант # 22-12-00055.

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

1. C. Couteau, *Contemp. Phys.* **59**, 291 (2018).
2. S. Slussarenko and G. J. Pryde, *Appl. Phys. Rev.* **6**, 041303 (2019).
3. S. Pirandola, U. L. Andersen, L. Banchi et al. (Collaboration), *Adv. Opt. Photonics* **12**, 1012 (2020).
4. K. Bai, Z. Peng, H.-G. Luo, and J.-H. An, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 129902 (2021).
5. D. N. Klyshko, *Photons and Nonlinear Optics*, Gordon and Breach, N. Y. (1988).
6. D. N. Klyshko and A. N. Penin, *Soviet Phys.-Uspekhi* **30**, 716 (1987).
7. S. V. Polyakov and A. L. Migdall, *Opt. Express* **15**, 1390 (2007).
8. Д. Н. Клышко, *Квантовая электроника* **7**, 1932 (1980).
9. J. C. Zwickels, E. Ikonen, N. P. Fox, G. Ulm, and M. L. Rastello, *Metrologia* **47**, R15 (2010).
10. I. Chirikov-Zorin, I. Fedorko, A. Menzione, M. Pikna, I. Šýkora, and S. Tokár, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **456**, 310 (2001).
11. P. Prudkovskii, A. Leontyev, K. Kuznetsov, and G. Kitaeva, *Sensors* **21**, 4964 (2021).
12. P. A. Prudkovskii, D. A. Safronenkov, and G. Kh. Kitaeva, *Opt. Lett.* **47**, 4842 (2022).
13. D. A. Safronenkov, N. A. Borshchevskaya, T. I. Novikova, K. G. Katamadze, K. A. Kuznetsov, and G. Kh. Kitaeva, *Opt. Express* **29**, 36644 (2021).
14. M. Arahata, Y. Mukai, B. Cao, T. Tashima, R. Okamoto, and S. Takeuchi, *J. Opt. Soc. Am. B* **38**, 1934 (2021).
15. P. A. Prudkovskii, D. A. Safronenkov, and G. Kh. Kitaeva, *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **88**, 866 (2024).
16. <https://datasheet4u.com/datasheet-pdf/HamamatsuCorporation/H7422-20/pdf.php?id=55471>.

Интерференция Hong-Ou-Mandel в квантовой оптике, моногамия запутанности, неортогональность, недоверенные узлы

С. П. Кулик⁺, С. Н. Молотков^{*1)}

⁺Центр квантовых технологий, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^{*}Институт физики твердого тела имени Ю. А. Осипьяна РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.

После переработки 6 июня 2024 г.

Принята к публикации 5 июня 2024 г.

В последнее десятилетие активно исследуются системы квантового распределения ключей с недоверенным промежуточным узлом, протокол квантового распределения ключей был назван MDI (Measurement Device Independent). В ранних работах были приведены лишь соображения, почему такая система квантового распределения ключей обеспечивает секретность распределяемых ключей, со ссылкой на то, что доказательство стойкости MDI протокола, которое не было приведено, аналогично доказательству секретности КРК для базового протокола BB84. По этой причине, несмотря на имеющиеся экспериментальные реализации системы квантового распределения ключей MDI, продолжают возникать вопросы о физических причинах стойкости такого протокола. Такие системы квантового распределения ключей позволяют получить общий ключ между двумя узлами сети, которые соединены через промежуточный недоверенный узел, который не требует защиты аппаратуры на нем, нарушитель видит всю работу аппаратуры, включая результаты работы фотодетекторов. В работе приведен анализ MDI протокола, показаны физические причины стойкости протокола, которые основаны на таких фундаментальных свойствах, как интерференция фотонов из разных источников, моногамия запутанности, неортогональность состояний. Приведен простой и явный вывод, показывающий эквивалентность MDI и BB84 протоколов и физические причины совпадения выражений для длины финального ключа.

DOI: 10.31857/S1234567824130044, EDN: HMMNJY

Введение. Идея MDI (Measurement Device Independent) квантового распределения ключей (КРК) была предложена в работе [1, дополнительный материал], в работах [1, доп.материал] были приведены лишь соображения, почему такая система КРК обеспечивает секретность распределяемых ключей, со ссылкой на то, что доказательство стойкости MDI протокола, которое не было приведено, аналогично доказательству секретности КРК для базового протокола BB84 [2–9].

В квантовой оптике существует замечательный эффект, который называют интерференцией Hong-Ou-Mandel (НОМ) [10] и, который связан с *различимостью/неразличимостью фотонов при преобразовании на светоделителе*. Следующий эффект, который получил название *моногамия квантовой запутанности* и, связан с тем, что *пара частиц, находящихся в максимально запутанном состоянии, не может быть запутана – коррелирована с третьей квантовой системой* [11]. Еще одно свойство квантовых состояний, которое играет принципиальную

роль в квантовой криптографии и, которое гарантирует на уровне фундаментальных законов квантовой механики, детектирование вторжений в квантовый канал связи, это *свойство неортогональности* [12].

В последнее десятилетие в связи с развитием сетей с квантовым распределением ключей (КРК) появились новые протоколы [1, дополнительный материал]. В сетях возможно распределение ключей через доверенные узлы [13–17], на которых работа аппаратуры недоступна нарушителю. Однако квантовая теория позволяет распределять ключи через недоверенные узлы, т.е. узлы, на которых работа аппаратуры известна нарушителю [1, дополнительный материал], что представляется далеко не очевидным. Такой протокол был предложен 10 лет назад [1, дополнительный материал], однако детального исследования причин стойкости такого протокола приведено не было [1, дополнительный материал]. Фактически для анализа протокола были приведены формулы, которые ранее использовались для протокола КРК BB84 в конфигурации точка-точка [1, дополнительный материал, 2–9]. Впоследствии появились экспериментальные реализации таких систем.

¹⁾e-mail: sergei.molotkov@gmail.com

Несмотря на это, до сих пор высказываются сомнения и недопонимание причин, которые гарантируют стойкость протокола. По-видимому, это связано с тем, что анализ стойкости протокола не был доведен до фундаментальных первопричин.

В работе [18] был приведен анализ протокола и получен точный результат, который использует фундаментальные энтропийные соотношения неопределенностей [19–23]. Данные соотношения позволяют не перебирать различные атаки на передаваемые состояния, поэтому точное решение является неявным. Энтропийные соотношения неопределенностей связывают утечку информации с возмущением квантовых состояний и ошибками на приемной стороне. Утечка информации через побочные каналы связи часто не приводит к возмущению информационных квантовых состояний, поэтому учет утечки информации через побочные каналы связи находится за пределами энтропийных соотношений неопределенностей [23]. По этой причине для учета побочных каналов утечки информации в системах КРК требуется уметь строить явные атаки нарушителя на состояния в квантовом канале связи [24].

Ниже мы приведем анализ протокола и продемонстрируем явные физические причины стойкости протокола, которые базируются на упомянутых выше фундаментальных явлениях – интерференции НОМ, моногамии запутанности и неортogonalности квантовых состояний. Будет также приведено явное сведение протокола распределения ключей через недоверенные узлы к классическому протоколу BB84 – распределению ключей в конфигурации точка-точка.

Интерференция НОМ из двух источников.

Пусть имеются два независимых источника квантовых однофотонных состояний Алисы и Боба (рис. 1). Пусть источники порождают фоковские состояния, которым отвечают операторы рождения a_i^+ и b_j^+ , индексы i, j отвечают различным состояниям поляризации $i = h, v$ $j = h, v$, которое могут принимать состояния. Состояния подвергаются следующим преобразованиям.

Преобразование на поляризационно-независимом симметричном светоделителе.

Преобразование операторов имеет вид

$$a_i^+ \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}} (c_i^+ + d_i^+), \quad b_j^+ \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}} (c_j^+ - d_j^+). \quad (1)$$

Для состояний в двух каналах светоделителя c, d получаем

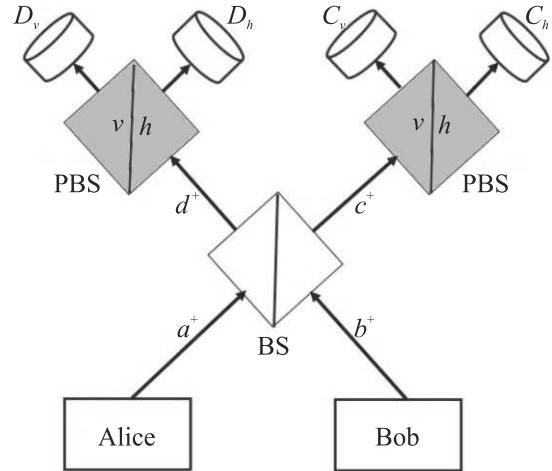


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема детектирования состояний на недоверенном узле. Обозначения: BS – поляризационно-нечувствительный симметричный 50/50 светоделитель, PBS – поляризационный светоделитель, D_v, D_h, C_v, C_h – детекторы

$$\begin{aligned} |\psi^{\text{out}}\rangle_{CD} &= U_{BS} |\Psi_{\text{in}}\rangle_{ab} = U_{BS} (a_i^+ b_j^+ |\text{vac}\rangle_{ab}) = \\ &= \frac{1}{2} (c_i^+ c_j^+ + c_j^+ d_i^+ - c_i^+ d_j^+ - d_i^+ d_j^+) |\text{vac}\rangle_{cd}, \end{aligned} \quad (2)$$

Состояния на выходе светоделителя BS (рис. 1) зависят от поляризаций фотонов.

1) Фотоны имеют различные поляризации – различимые по поляризациям фотоны $i \neq j$, пусть $i = h, j = v$. В этом случае на выходах c, d светоделителя будет общее запутанное состояние

$$\begin{aligned} |\psi^{\text{out}}\rangle_{CD} &= \\ &= \frac{1}{2} (c_h^+ c_v^+ + c_v^+ d_h^+ - c_h^+ d_v^+ - d_h^+ d_v^+) |\text{vac}\rangle_{cd} = \\ &= \frac{1}{2} (|h\rangle_c |v\rangle_c + |v\rangle_c |h\rangle_d - |h\rangle_c |v\rangle_d - |h\rangle_d |v\rangle_d). \end{aligned} \quad (3)$$

После прохождения состояний из канала D через поляризационный светоделитель PBS (рис. 1), поляризационные компоненты состояния (1), (2) h и v направляются на выходы D_h и D_v , соответственно. Аналогично для компонент поляризации состояния в канале C .

Таким образом, при различных поляризациях фотонов будут иметь место совпадение отсчетов одновременно в двух детекторах с одинаковой вероятностью. Детекторы, в которых будет совпадение отсчетов при $i \neq j$ приведены в строках 1 и 2 табл. 1. Например, состояния Алисы $|v\rangle_A$, и Боба $|h\rangle_B$, тогда будут отсчеты в одном из 4-х вариантов двух детекторов: $C_v C_h, C_v D_h, C_h D_v, D_h D_v$ (см. табл. 1).

Таблица 1. Детекторы, в которых будет регистрация в зависимости от входной поляризации состояний Алисы и Боба в прямом и сопряженном базисах. Приведены также вероятности отсчетов в различных детекторах, и соответствующие значения логических битов, для различных квантовых состояний

N	Состояние Алисы	Состояние Боба	Отсчет детектора	Вероятность отсчета	Значение бита Алисы–Боба
1	$ v\rangle_A$	$ h\rangle_B$	$C_v C_h, C_h D_v, C_v D_h, D_v D_h$	$\frac{1}{4}4 = 1$	1
2	$ h\rangle_A$	$ v\rangle_B$	$C_v C_h, C_h D_v, C_v D_h, D_v D_h$	$\frac{1}{4}4 = 1$	0
3	$ h\rangle_A$	$ h\rangle_B$	$C_h C_h, D_h D_h$	$\frac{1}{2}2 = 1$	–
4	$ v\rangle_A$	$ v\rangle_B$	$C_v C_v, D_v D_v$	$\frac{1}{2}2 = 1$	–
5	$ ad\rangle_A$	$ ad\rangle_B$	$C_h C_v, D_h D_v$	$\frac{1}{4}2 = \frac{1}{2}$	0
6	$ d\rangle_A$	$ d\rangle_B$	$C_h C_h, C_v C_v, D_h D_h, D_v D_v$	$\frac{1}{4}2 = \frac{1}{2}$	–
7	$ ad\rangle_A$	$ d\rangle_B$	$C_h D_v, C_v D_h$	$\frac{1}{4}2 = \frac{1}{2}$	1
8	$ d\rangle_A$	$ ad\rangle_B$	$C_h C_h, C_v C_v, D_h D_h, D_v D_v$	$\frac{1}{4}2 = \frac{1}{2}$	–

Такие же парные отсчеты в детекторах будут, если состояние Алисы $|h\rangle_A$, а Боба $|v\rangle_B$. Данное обстоятельство принципиально для протокола распределения ключей с недоверенным узлом. Это означает, что нарушитель, зная отсчеты в паре детекторов не знает какие состояния посылали Алиса и Боб, поскольку отсчеты от состояний $|h\rangle_A, |v\rangle_B$ или $|v\rangle_A, |h\rangle_B$ Алисы и Боба одинаковые (см. ниже).

2) Фотон имеет одинаковые поляризации – неразличимые фотоны, $i = j, i = j = h$ или $i = j = v$. На выходах c, d светоделителя будет общее запутанное состояние

$$\begin{aligned} |\psi^{\text{out}}\rangle_{CD} &= \\ &= \frac{1}{2} (c_i^+ c_i^+ + c_i^+ d_i^+ - c_i^+ d_i^+ - d_i^+ d_i^+) |\text{vac}\rangle_{cd} = \\ &= \frac{1}{2} (|i\rangle_c |i\rangle_c - |i\rangle_d |i\rangle_d), \end{aligned} \quad (4)$$

оба фотона синхронно “идут” в каналы c и d , что является проявлением неразличимости частиц – статистики Бозе–Эйнштейна. В этом и состоит эффект интерференция НОМ [10].

После прохождения состояний из канала D через поляризационный светоделитель PBS (рис. 1), обе одинаковые поляризационные компоненты состояния (2) – оба фотона направляются на выход D_h при поляризации h , и оба фотона на выход D_v при поляризации v .

Таким образом, при одинаковых поляризациях фотонов, будут отсчеты от обоих фотонов только в одном из детекторов, т.е. совпадения отсчетов одновременно в двух разных детекторах не будет (см. табл. 1, строки 3 и 4).

Состояния с одинаковой поляризацией не дают вклада в ключ – не используются в протоколе КРК, двойные отсчеты в одном из детекторов отбрасываются, поскольку по отсчету в детекторе с h или с v

можно достоверно сказать какие состояния, соответственно, какие логические биты, посылались Алисой и Бобом.

Выше были приведены преобразования состояний в прямом базисе. В сопряженном базисе диагональные d и антидиагональные ad входные состояния Алисы и Боб имеют вид

$$\begin{aligned} |d\rangle_{A,B} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|h\rangle_{A,B} + |v\rangle_{A,B}), \\ |ad\rangle_{A,B} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|h\rangle_{A,B} - |v\rangle_{A,B}). \end{aligned} \quad (5)$$

Анализ преобразования состояний в сопряженном базисе аналогичен анализу в прямом базисе. Для дальнейшего важно, что отсчеты в детекторах в сопряженном базисе такие же, как прямом (см. табл. 1, строки 5–8).

Преобразование информационных состояний, свойство моногамии парной запутанности. Прежде, чем рассмотреть атаку Евы на передаваемые состояния, рассмотрим преобразование состояний без нарушителя. Для дальнейшего удобнее ввести более привычные для квантовой криптографии обозначения информационных состояний. В прямом базисе + обозначим состояния как

$$|v\rangle \rightarrow |0\rangle, \quad |h\rangle \rightarrow |1\rangle, \quad (6)$$

соответственно обозначим информационные состояния в сопряженном базисе ×

$$\begin{aligned} |d\rangle &\rightarrow |0^\times\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle + |1\rangle), \\ |ad\rangle &\rightarrow |1^\times\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle - |1\rangle). \end{aligned} \quad (7)$$

Рассмотрим, какие отсчеты будут при посылке состояний Алисой и Бобом в отсутствие Евы.

Посылка состояний на недоверенный узел в базисе $+$:

$|0\rangle_A|0\rangle_B$ и $|1\rangle_A|1\rangle_B$ – парные отсчеты только в одном детекторе (4), такие отсчеты отбрасываются.

$|0\rangle_A|1\rangle_B$, $|1\rangle_A|0\rangle_B$ – удобно представить такие состояния как $|\Psi^+\rangle_{AB}$, $|\Psi^-\rangle_{AB}$, как обычно $|\Psi^\pm\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle_A|1\rangle_B \pm |1\rangle_A|0\rangle_B)$, что будет отвечать отсчетам по совпадению в каналах (3), что отвечает проекциям на запутанные состояния за счет перепутывания входных состояний светоделителями.

В отсутствии возмущения состояний имеются идеальные корреляции между битами Алисы и Боба. При вторжении Евы в канал связи – атака на состояния $|0\rangle_A|1\rangle_B$ или $|1\rangle_A|0\rangle_B$ приводит к нарушению идеальных корреляций. Самая общая атака Евы сводится к запутыванию вспомогательного состояния Евы (ancilla) с состояниями Алисы и Боба. Свойство моногамии парной запутанности [11] гарантирует, что любое запутывание пары состояний с третьим, приводит к нарушению идеальной запутанности, а значит и к нарушению идеальных корреляций между битом Алисы и Боба, т.е. к ошибкам. Фактически свойство парной запутанности на недоверенном узле является физической причиной, гарантирующей обнаружение любых вторжений в квантовый канал. Важно еще раз отметить, что без вторжения в канал связи, даже знание в каких детекторах произошел отсчет не дают Еве никакой информации о передаваемых битах. Действительно, состояния $|0\rangle_A|0\rangle_B$ и $|1\rangle_A|1\rangle_B$ дают одинаковые отсчеты (3). При этом Алиса и Боб, зная отсчеты детекторов и зная, что они посылали, могут достоверно сказать, какой бит посылал партнер, и привязаться к одному из битов, например, к биту Алисы.

$|0^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B = \frac{1}{2}(|0\rangle_A|0\rangle_B + |1\rangle_A|1\rangle_B + |0\rangle_A|1\rangle_B + |1\rangle_A|0\rangle_B) = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Phi^+\rangle_{AB} + |\Psi^+\rangle_{AB})$, – отсчеты будут в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$.
 $|1^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B = \frac{1}{2}(|0\rangle_A|0\rangle_B + |1\rangle_A|1\rangle_B - |0\rangle_A|1\rangle_B - |1\rangle_A|0\rangle_B) = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Phi^+\rangle_{AB} - |\Psi^+\rangle_{AB})$, – отсчеты будут в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$.

Посылка состояний на недоверенный узел в сопряженном базисе $\times$:

Состояния в базисе $\times$ также можно представить как суперпозицию пар запутанных состояний. $|\Phi^+\rangle_{AB}$, $|\Phi^-\rangle_{AB}$, где $|\Phi^+\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle_A|0\rangle_B + |1\rangle_A|1\rangle_B)$.

$|0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B = \frac{1}{2}(|0\rangle_A|0\rangle_B - |1\rangle_A|1\rangle_B - |0\rangle_A|1\rangle_B + |1\rangle_A|0\rangle_B) = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Phi^-\rangle_{AB} - |\Psi^-\rangle_{AB})$. Канал $|\Phi^+\rangle_{AB}$ – отсчеты будут только в одном детекторе (4), такие

отсчеты отбрасываются. Канал $|\Psi^+\rangle_{AB}$ – отсчеты будут по совпадению двух детекторов (3).

$|1^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B = \frac{1}{2}(|0\rangle_A|0\rangle_B - |1\rangle_A|1\rangle_B + |0\rangle_A|1\rangle_B - |1\rangle_A|0\rangle_B) = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Phi^-\rangle_{AB} + |\Psi^-\rangle_{AB})$. Отсчеты аналогичны ситуации с посылкой состояний $|0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B$. Так же, как и в базисе $+$, доступ к отсчетам в дух детекторах в базисе $\times$ по схеме совпадения (3) без вторжения в квантовый канал, не дает Еве никакой информации о передаваемых битах Алисы и Боба, поскольку отсчеты для состояний $|0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B$ и $|1^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B$ одинаковые.

Согласование битов Алисы и Боба. Пусть привязка общего бита идет к биту Алисы.

Базис $+$.

При посылке состояний $|0\rangle_A|0\rangle_B$ в базисе $+$ без вторжения Евы в квантовый канал отсчеты в детекторах отсутствуют. Вторжение в канал связи приводит к отсчетам в каналах $|\Psi^\pm\rangle_{AB}$ – отсчеты в двух детекторах. В этом случае такие отсчеты являются ошибочными. При наличии отсчета Боб инвертирует свой бит $0 \rightarrow 1$. В итоге для такой посылки Алиса имеет бит 0, а Боб ошибочный бит 1. Аналогично при посылке состояний $|1\rangle_A|1\rangle_B$ в базисе $+$.

Иначе говоря, отсчет в каналах $|\Psi^\pm\rangle_{AB}$ при передаче состояний $|1\rangle_A|1\rangle_B$ или $|0\rangle_A|0\rangle_B$ будет ошибочным. Зная этот факт, нарушителю нет никакого смысла производить ошибки в тех посылках, когда Алиса и Боб посылали $|1\rangle_A|1\rangle_B$ или $|0\rangle_A|0\rangle_B$. Посылки, в которых посылались Алиса и Боб одинаковые состояния, Ева может узнать, используя невозмущающие (nondestructive) измерения (см. ниже). После обнаружения в канале состояний $|1\rangle_A|1\rangle_B$ или $|0\rangle_A|0\rangle_B$ Ева перепосылает их на недоверенный узел, состояния дают отсчеты только в одном из детекторов, которые отбрасываются и не участвуют в формировании ключа. Неформально говоря, в таких посылках Ева действует на состояния “прозрачно”.

При посылке состояний $|0\rangle_A|1\rangle_B$ или $|1\rangle_A|0\rangle_B$ в базисе $+$ в отсутствии нарушителя отсчеты в двух детекторах будут происходить равновероятно как в канале $|\Psi^-\rangle_{AB}$, так и в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$. При наличии отсчетов в двух детекторах Боб инвертирует свой бит $0 \rightarrow 1$. В итоге в такой посылке Алиса имеет бит 0, а Боб – правильный бит 0, что аналогично посылке состояний $|1\rangle_A|1\rangle_B$ в базисе $+$.

Таким образом, происходит согласование битов Алисы и Боба для получения общего бита в базисе $+$.

Базис $\times$.

При посылке состояний $|0^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B$ в базисе $\times$ в отсутствии нарушителя отсчеты в детекторах будут

только в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$ – правильный отсчет. У Алисы бит 0, у Боба также бит 0. *Инвертировать свой бит Боб не должен при отсчете в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$.* Аналогично при посылке состояний $|1^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B$ в базисе $\times$.

При посылке состояний $|0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B$ в базисе $\times$ в отсутствии нарушителя отсчеты в детекторах будут только в канале $|\Psi^-\rangle_{AB}$ – правильный отсчет. У Алисы бит 0, у Боба после инверсии также бит 1. *Боб инвертирует свой бит при отсчете в канале $|\Psi^-\rangle_{AB}$. При отсчете в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$ Боб свой бит не инвертирует.*

Аналогично при посылке состояний $|1^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B$ в базисе $\times$.

При вторжении в канал связи приводят к отсчетам в каналах $|\Psi^+\rangle_{AB}$, которые будут ошибочными.

Таким образом, происходит согласование битов Алисы и Боба для получения общего бита в базисе $\times$.

Стратегия нарушителя при атаке на передаваемые состояния.

Прежде чем перейти к финальному доказательству эквивалентности протоколов MDI и BB84, обсудим стратегию атаки на квантовые состояния в канале связи. Напомним, тот факт, что Ева видит отсчеты детекторов на недоверенном узле, без вторжения в квантовый канал связи не дает Еве никакой информации о передаваемых битах Алисы и Боба (см. обсуждение выше).

Поскольку измерения устроены таким образом, что реализуют только проекции на состояния $|\Psi^\pm\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle_A|1\rangle_B \pm |1\rangle_A|0\rangle_B)$ – отсчеты по совпадению в двух детекторах, а двойной отсчеты только в одном детекторе, которые отвечают проекциям на состояния $|\Phi^\pm\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle_A|0\rangle_B \pm |1\rangle_A|1\rangle_B)$, отбрасываются, то Ева *предварительно может спроектировать передаваемые состояния на запутанные состояния – сделать неразрушающие измерения состояния пары фотонов.*

Поясним более детально, что имеется в виду.

Пусть Алиса и Боб посылают состояния $|0\rangle_A|0\rangle_B$ или $|1\rangle_A|1\rangle_B$ в базисе $+$. Такие состояния не дадут отсчетов, поскольку измерения сводятся к проекциям на состояния $|\Psi^\pm\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle_A|1\rangle_B \pm |1\rangle_A|0\rangle_B)$, и которые не содержат компонент состояний $|0\rangle_A|0\rangle_B$ или $|1\rangle_A|1\rangle_B$.

Отсчеты будут возникать только при посылке Алисой и Бобом состояний $|0\rangle_A|1\rangle_B$ или $|1\rangle_A|0\rangle_B$ в базисе $+$.

По этой причине, если нарушитель сделает *предварительно неразрушающие измерения*, которые даются разложением единицы $I_{AB} = \mathcal{P}_{\Phi^+} + \mathcal{P}_{\Phi^-}$ и

$\mathcal{P}_{\Psi^+} + \mathcal{P}_{\Psi^-}$, и которые имеют два исхода, отвечающие проекциям на $\mathcal{P}_{\Phi^\pm} = |\Phi^\pm\rangle_{ABAB}\langle\Phi^\pm|$ и проекциям на $\mathcal{P}_{\Psi^\pm} = |\Psi^\pm\rangle_{ABAB}\langle\Psi^\pm|$.

Такие измерения по сути являются *неразрушающими (nondestructive measurements)* – измерения не возмущают передаваемых состояний Алисы и Боба.

Если произошел исход в канале $\mathcal{P}_{\Phi^\pm}$, то нарушитель посылает одно из состояний $|\Phi^\pm\rangle_{AB}$, которые не дают ошибочных исходов. Такой перепосыл состояний является *прозрачным, состояния Алисы и Боба (00 или 11) Еве неизвестны, но эти состояния дадут отсчет в только одном детекторе, и будут отброшены.*

Если произошел исход в канале $\mathcal{P}_{\Psi^\pm}$, то Ева также не знает состояния Алисы и Боба (01 или 10), а само измерение их не возмущает.

Поскольку неразрушающие измерения и знание отсчетов детекторов после них не дают Еве никакой информации о передаваемых состояниях, то для того, чтобы получить информацию о передаваемых состояниях, Ева должна производить измерения, которые будут возмущать состояния – производить унитарную атаку (см. ниже).

Разберем теперь, что происходит, когда в канал посылаются состояния в базисе $\times$. Важно только отметить, что предварительные измерения Евы с проектированием на запутанные состояния, являются невозмущающими, с точки зрения отсчетов детекторов, в любом базисе.

Если произошел исход в канале $\mathcal{P}_{\Psi^\pm}$, то нарушитель посылает одно из состояний $|\Psi^\pm\rangle$, при этом Ева знает, что это могли быть состояния

$$|0\rangle_A|1\rangle_B, \text{ либо } |1\rangle_A|0\rangle_B, \text{ либо } |0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B, \quad (8)$$

$$\text{либо } |1^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B, \text{ либо } |0^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B, \text{ либо } |1^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B.$$

Если произошел исход в канале $\mathcal{P}_{\Phi^\pm}$, то нарушитель посылает одно из состояний $|\Phi^\pm\rangle$, то Ева знает, что это могли быть состояния

$$|0\rangle_A|0\rangle_B, \text{ либо } |1\rangle_A|1\rangle_B, \text{ либо } |0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B, \quad (9)$$

$$\text{либо } |1^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B, \text{ либо } |0^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B, \text{ либо } |1^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B.$$

Рассмотренные выше предварительные измерения Евы являются невозмущающими и не дают никакой информации о передаваемых битах, но позволяют Еве решить, проводить или нет атаку, уже с возмущением состояний. При исходах в канале $\mathcal{P}_{\Phi^\pm}$, Ева только перепосылает состояния. При исходе в канале $\mathcal{P}_{\Psi^\pm}$ Ева производит атаку на состояния с целью узнать передаваемые бит.

Эквивалентность Measurement Device Independent протокола и протокола Bennett-Brassard 84 (BB84). Теперь все готово, чтобы

Таблица 2. Соответствие информационных состояний для протокола BB84 и MDI протокола

Протокол BB84	Протокол MDI
Базис +, $ 0\rangle, 1\rangle$ Базис $\times$, $ 0^\times\rangle = \frac{ 0\rangle+ 1\rangle}{\sqrt{2}}, 1^\times\rangle = \frac{ 0\rangle- 1\rangle}{\sqrt{2}}$	Базис +, $ \bar{0}\rangle_{AB}, \bar{1}\rangle_{AB}$ Базис $\times$, $ \bar{0}^\times\rangle_{AB} = \frac{ \bar{0}\rangle_{AB}+ \bar{1}\rangle_{AB}}{\sqrt{2}}, \bar{1}^\times\rangle_{AB} = \frac{ \bar{0}\rangle_{AB}- \bar{1}\rangle_{AB}}{\sqrt{2}}$

показать формальную эквивалентность MDI протокола и протокола BB84. В отличие от более раннего и неявного доказательства эквивалентности протоколов [18], основанного на фундаментальных энтропийных соотношениях неопределенностей [19–23], ниже приведем доказательство прямым построением, что позволит в дальнейшем включать в рассмотрение побочные каналы утечки информации, которые требуют знания явной атаки Евы (см., например, [24]).

После проектирования имеем следующие состояния:

Базис + – состояния в канале связи:

$|\bar{0}\rangle_{AB} = |01\rangle_{AB}$ логический бит 0,

$|\bar{1}\rangle_{AB} = |10\rangle_{AB}$ логический бит 1,

Состояния $|\bar{0}\rangle_{AB}$ и $|\bar{1}\rangle_{AB}$ внутри базиса ортогональны и дают отсчет в канале $|\Psi^\pm\rangle_{AB}$.

Боб инвертирует свой бит при отсчете как в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$, так и $|\Psi^-\rangle_{AB}$. В итоге возникает общий бит. Напомним, что привязка идет к биту Алисы.

Базис $\times$ – состояния в канале связи:

Логический бит 0 возникает от состояний $|0^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B$, состояния в канале, которые видит подслушиватель

$$|0^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B \rightarrow |\bar{0}\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\bar{0}\rangle_{AB} + |\bar{1}\rangle_{AB}) = \frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle_{AB} + |10\rangle_{AB}),$$

а логический бит 1 возникает от состояний $|1^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B$, состояния в канале, которые видит подслушиватель

$$|1^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B \rightarrow |\bar{0}\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\bar{0}\rangle_{AB} + |\bar{1}\rangle_{AB}) = \frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle_{AB} + |10\rangle_{AB}).$$

Это то самое место, которое гарантирует секретность ключей в MDI протоколе даже при условии, что Ева видит отсчеты в детекторах. Общий бит 0 или 1 у Алисы и Боба возникает из одних и тех же состояний, которые Ева “видит” в канале связи. Состояния для логического 0 и для логической 1 в канале связи для Евы неразличимы.

При отсчете в канале $|\Psi^+\rangle_{AB}$ Боб свой бит не инвертирует, в итоге возникает общий бит с привязкой к биту Алисы.

Состояния для 0 и 1 в канале связи выглядят для подслушивателя одинаково, поэтому зная результат отсчета на недоверенном узле, нарушитель не знает передаваемого бита в отличии от Алисы и Боба, которые знают, какие состояния они посылали.

Логический бит 0 также возникает от состояний $|0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B$, состояния в канале, которые видит подслушиватель

$$|0^\times\rangle_A|1^\times\rangle_B \rightarrow |\bar{1}\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\bar{0}\rangle_{AB} - |\bar{1}\rangle_{AB}) = \frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle_{AB} - |10\rangle_{AB}).$$

Логический бит 1 возникает от состояний $|1^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B$, состояния в канале, которые видит подслушиватель

$$|1^\times\rangle_A|0^\times\rangle_B \rightarrow |\bar{1}\rangle_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\bar{0}\rangle_{AB} - |\bar{1}\rangle_{AB}) = \frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle_{AB} - |10\rangle_{AB}).$$

Состояния для 0 и для 1 неразличимы для Евы, ситуация аналогична выше рассмотренному случаю.

При отсчете в канале $|\Psi^-\rangle_{AB}$ Боб свой бит инвертирует, в итоге возникает общий бит с привязкой к биту Алисы.

Фактически для нарушителя ситуация выглядит как, если бы Алиса и Боб посылали равновероятно одно из 4-х состояний в двух базисах, а именно, состояния: $|\bar{0}^+\rangle_{AB}, |\bar{1}^+\rangle_{AB}$ – базис +; $|\bar{0}^\times\rangle_{AB}, |\bar{1}^\times\rangle_{AB}$ – базис $\times$.

Состояния $|\bar{0}^+\rangle_{AB}$ и $|\bar{1}^+\rangle_{AB}$ ортогональны внутри базиса +, состояния $|\bar{0}^\times\rangle_{AB}$ и $|\bar{1}^\times\rangle_{AB}$ ортогональны внутри базиса $\times$. Состояния из разных базисов попарно неортогональны в полной аналогии с протоколом BB84.

Соответствие состояний для MDI и BB84 протоколов приведены в табл. 2.

Таким образом, имеется формальное один в один соответствие между MDI и BB84 протоколами,

поэтому можно воспользоваться результатами для BB84 при явном построении атаки на протокол MDI.

Любое преобразование квантовых состояний в квантовые состояния является супероператором – вполне положительным отображением (CPM – Completely Positive Map) [25, 26]. Любой супероператор унитарно представим, т.е. может быть реализован как исходное состояние с дополнительным вспомогательным состоянием (ancilla) и запутывающим преобразованием, которое задается унитарным оператором, реализующим унитарную атаку.

Поскольку после предварительных невозмущающих измерений протоколы BB84 и MDI эквивалентны с точностью до изменения обозначений для информационных состояний (см. табл. 2), то для построения явной атаки на протокол MDI можно воспользоваться результатами для протокола BB84 [8]. Пусть Алиса и Боб имеют эталонные состояния (далее индекс $A'B'$), которые они оставляют у себя, а их копии (далее индекс AB) посылают в канал связи на недоверенный узел. Для состояний в базисе $+$ получаем (см. детали в [8, 9])

$$|\bar{0}\rangle_{A'B'} U_{ABE} (|\bar{0}\rangle_{AB} |E\rangle) = \quad (10)$$

$$= |\bar{0}\rangle_{A'B'} \left\{ \sqrt{1-Q} |\bar{0}\rangle_{AB} |\Phi_0\rangle + \sqrt{Q} |\bar{1}\rangle_{AB} |\Theta_0\rangle \right\},$$

$$|\bar{1}\rangle_{A'B'} U_{ABE} (|\bar{1}\rangle_{AB} |E\rangle) = \quad (11)$$

$$= |\bar{1}\rangle_{A'B'} \left\{ \sqrt{1-Q} |\bar{1}\rangle_{AB} |\Phi_1\rangle + \sqrt{Q} |\bar{0}\rangle_{AB} |\Theta_1\rangle \right\},$$

где величина Q имеет смысл вероятности ошибки между битами Алисы и Боба.

В сопряженном базисе $\times$ состояния получаются линейной комбинацией уравнений (6), (7) (см. также табл. 2).

Здесь, во избежании недоразумений, нужно сделать принципиально важный комментарий. Несмотря на формальное соответствие протоколов BB84 и MDI, имеются отличия. В протоколе BB84 состояния $|0, 1\rangle_B$, которые направляются от Алисы к Бобу, после атаки Евы и измерений на приемной стороне, доступны Бобу и недоступны Еве.

В (10), (11) также считаем, что состояния в правой части (10), (11) $|\bar{0}\rangle_{AB}$ и $|\bar{1}\rangle_{AB}$ после измерений на недоверенном узле недоступны Еве, хотя Ева и видит отсчеты детекторов. Естественно возникает вопрос – нет ли здесь противоречия, поскольку измерения в MDI протоколе проводятся на недоверенном узле и известны Еве, в отличие от протокола BB84.

Противоречия нет, поскольку, как детально обсуждалось в предыдущих разделах, знание результата измерения – отсчет в канале $|\Psi^\pm\rangle$ не дает Еве

никакой информации о передаваемой паре бит (0,1) или (1,0) Алисой и Бобом. Информацию о передаваемых битах Ева может получить только из своих вспомогательных состояний $|\Phi_{0,1}\rangle$ и $|\Theta_{0,1}\rangle$. По этой причине, так же как и в протоколе BB84, нужно считать, что состояния $|\bar{0}, \bar{1}\rangle_{AB}$ недоступны Еве. Фактически, это связано с тем, что логический бит 0 и 1 в каждом базисе ассоциируется с одним и тем же квантовым состоянием, которое “видит” Ева в канале связи (см. обсуждение выше).

Данное обстоятельство можно пояснить на теоретико-информационном языке. В известном базисе исходно от Алисы в канал поступает один бит информации 0 или 1, от Боба также один бит 0 или 1. В итоге в канал и на недоверенный узел от Алисы и Боба поступают два бита информации. Измерения на недоверенном узле дают Еве один бит информации, фактически, это бит четности передаваемых битов от Алисы и Боба, так как отсчеты от состояний для битов $(0_A, 1_B)$ и $(1_A, 0_B)$ одинаковые для Евы. Известность результата отсчета дает Еве один бит информации. Один бит остается для Евы неизвестным, неформально говоря, из данного бита формируется общий секретный бит Алисы и Боба, с привязкой общего бита к биту Алисы.

Матрица плотности в базисе $+$ после измерений на недоверенном узле принимает вид

$$\rho_{A'B'ABE} = \quad (12)$$

$$= \frac{1}{2} |\bar{0}\rangle_{A'B'} \langle \bar{0}| \left\{ (1-Q) |\bar{0}\rangle_{AB} \langle \bar{0}| |\Phi_0\rangle \langle \Phi_0| + \right.$$

$$+ Q |\bar{1}\rangle_{AB} \langle \bar{1}| |\Theta_0\rangle \langle \Theta_0| \left. \right\} +$$

$$+ \frac{1}{2} |\bar{1}\rangle_{A'B'} \langle \bar{1}| \left\{ (1-Q) |\bar{1}\rangle_{AB} \langle \bar{1}| |\Phi_1\rangle \langle \Phi_1| + \right.$$

$$+ Q |\bar{0}\rangle_{AB} \langle \bar{0}| |\Theta_1\rangle \langle \Theta_1| \left. \right\}.$$

Длина ключа определяется через условные квантовые энтропии фон Неймана, последние выражаются через частичные матрицы плотности. Для длины ключа ℓ в асимптотическом пределе длинных последовательностей, аналогично протоколу BB84, находим (см. подробности, например, в [8, 9])

$$\ell = H(\rho_{A'B'E} | \rho_E) - H(\rho_{A'B'AB} | \rho_{AB}), \quad (13)$$

$$H(\rho_{A'B'E} | \rho_E) = H(\rho_{A'B'E}) - H(\rho_E),$$

$$H(\rho_{A'B'AB} | \rho_{AB}) = H(\rho_{A'B'AB}) - H(\rho_{AB}).$$

Частичные матрицы плотности имеют вид

$$\rho_{A'B'E} = \text{Tr}_{AB} \{ \rho_{A'B'ABE} \}, \quad \rho_E = \text{Tr}_{A'B'} \{ \rho_{A'B'E} \},$$

$$\rho_{A'B'AB} = \text{Tr}_E \{ \rho_{A'B'ABE} \}, \quad \rho_{AB} = \text{Tr}_{A'B'E} \{ \rho_{A'B'ABE} \}.$$

Далее, считаем для экономии места, что детекторы на недоверенном узле имеют одинаковую квантовую эффективность. Решение может быть обобщено для детекторов с разной квантовой эффективностью, например, методом работы [24, 27], что требует большего места. При одинаковых квантовых эффективностях детекторов оптимальным, в смысле – максимальная утечка информации к Еве при данной вероятности ошибки Q , достигается при [5, 8]

$$\langle \Phi_0 | \Phi_1 \rangle = 1 - 2Q, \quad \langle \Theta_0 | \Theta_1 \rangle = 1 - 2Q, \quad \langle \Phi_{0,1} | \Theta_{0,1} \rangle = 0, \quad (14)$$

т.е. состояния $|\Phi_{0,1}\rangle$ и $|\Theta_{0,1}\rangle$ лежат в ортогональных подпространствах.

Вычисление длины ключа, в пересчете на одну посылку, с использованием формул (10)–(14), приводят к знаменитой формуле для длины ключа для протокола BB84, которая была получена в нескольких работах разными методами (см. [5–9])

$$\ell = (1 - h(Q)) - h(Q), \quad (15)$$

$$h(Q) = -Q \log_2(Q) - (1 - Q) \log_2(1 - Q),$$

где первое слагаемое представляет собой нехватку информации Евы о бите ключа Алисы, второе – нехватку информации Боба о бите Алисы.

Заключение. Таким образом, несмотря на существенно разную структуру протоколов MDI и BB84, явным образом показана формальная эквивалентность MDI и BB84 протоколов, а также детально обсуждены физические причины совпадения выражений для длины финального ключа.

Отметим в заключение, одной из главных мотиваций для MDI протокола служил тот факт, что при недоверенном узле – недоверенных детекторах, и доступности для нарушителя знания отсчетов детекторов, не нужно защищать работу детекторов от внешних вторжений через линию связи, которые могут изменить их штатную работу. Кроме MDI протокола [1, дополнительный материал], существует более простой способ реализовать недоверенные – открытые для нарушителя детекторы [28], который не требует сложных экспериментальных методов достижения интерференции из разных источников.

Наконец, MDI протокол использует на недоверенном узле только элементы линейной оптики. Известно, что в рамках линейной оптики можно реализовать проекции только на пару белловских состояний, такие неполные белловские измерения используются также в квантовой телепортации [29]. Для реализации полных белловских измерений приходится использовать нелинейные оптические элементы, что

впервые в экспериментах по телепортации было реализовано в [30].

Выражаем благодарность И. М. Арбекову, В. Л. Елисееву, А. В. Уривскому за интерес к работе, обсуждения и замечания, коллегам по Академии криптографии Российской Федерации и сотрудникам ИнфоТекс и СФБ Лаборатории, которые фактически инициировали данную работу для поддержки экспериментальных исследований.

Финансирование работы. Работа выполнялась в рамках госзадания. 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. H.-K. Lo, M. Curty, and B. Qi, Phys. Rev. Lett. **108**, 130503 (2012); Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.108.130503>.
2. C. H. Bennett and G. Brassard, *Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing*, in Proc. IEEE Int. Conf. on Comp., Sys. and Signal Process., Bangalore, India (1984), p. 175.
3. D. Mayers, J. ACM, **48**, 351 (2001).
4. H.-K. Lo and H. F. Chau, Science **283**, 2050 (1999).
5. P. Shor and J. Preskill, Phys. Rev. Lett. **85**, 441 (2000).
6. R. Renner, arXiv/quant-ph:0512258 (2005).
7. M. Tomamichel, Ch. C. W. Lim, N. Gisin, and R. Renner, Nature Commun. **3**, 1 (2012).
8. С. Н. Молотков, А. В. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **85**, 632 (2007).
9. S. N. Molotov, Laser Phys. Lett. **16**, 075203 (2019).
10. C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **59**, 2044 (1987).
11. M. Koashi and A. Winter, Phys. Rev. A **69**, 022309 (2004).
12. C. H. Bennett, Phys. Rev. Lett. **68**, 3121 (1992).
13. Д. Д. Сукачев, Успехи физических наук **191**(10), 1077 (2021), раздел **6.2 Доверенные узлы**.
14. И. М. Арбеков, С. Н. Молотков, Математические вопросы криптографии **14**(3), 9 (2023).
15. С. Н. Молотков, Письма в ЖЭТФ **117**, 470 (2023).
16. Q. Zhang, F. Xu, Y.-A. Chen, C.-Zh. Peng, and J. Pan, Opt. Express **26**, 24260 (2018).
17. <https://www.youtube.com/watch?v=0WAuDeYhKbo>
18. С. П. Кулик, С. Н. Молотков, Письма в ЖЭТФ **118**, 62 (2023).
19. D. Deutsch, Phys. Rev. Lett. **50**, 631 (1983).
20. H. Maassen and J. B. M. Uffink, Phys. Rev. Lett. **60**, 1103 (1988).

21. M. Tomamichel and R. Renner, Phys. Rev. Lett. **106**, 110506 (2011).
22. M. Tomamichel, *A Framework for Non-Asymptotic Quantum Information Theory*, PhD thesis, ETH Zürich (2012); arXiv/quant-ph:1203.2142.
23. P. J. Coles, M. Berta, M. Tomamichel, and S. Wehner, Rev. Mod. Phys. **89**, 015002-1 (2017).
24. С. Н. Молотков, ЖЭТФ **160**, 327 (2021).
25. K. Kraus, *States, Effects and Operations: Fundamental Notions of Quantum Theory*, Springer Verlag, Berlin (1983).
26. А. С. Холево, *Квантовые системы, каналы, информация*, МЦНМО, М. (2010).
27. S. N. Molotkov, Laser Phys. Lett. **18**, 045202 (2021).
28. К. А. Балыгин, С. П. Кулик, С. Н. Молотков, Письма в ЖЭТФ **116**, 128 (2022).
29. D. Bouwmeester, J-W. Pan, K. Mattle, M. Eible, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Nature (London) **390**, 575 (1997).
30. Y.-H. Kim, S. P. Kulik, and Y. Shih, Phys. Rev. Lett. **86**, 1370 (2001).

Теория композитных рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов вне рамок резонансного приближения

В. И. Юдин^{+*×1)}, О. Н. Прудников⁺*, А. В. Тайченачев⁺*, М. Ю. Басалаев⁺*, В. Г. Пальчиков^{°∇},
С. Н. Багаев⁺*

⁺Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

^{*}Институт лазерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

[×]Новосибирский государственный технический университет, 630073 Новосибирск, Россия

[°]Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений,
141570 Менделеево, Россия

[∇]Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 июня 2024 г.

После переработки 6 июня 2024 г.

Принята к публикации 10 июня 2024 г.

Мы развиваем теорию композитных рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов, взаимодействующих с зеemanовской структурой на долгоживущем энергетическом уровне атома (иона), вне рамок резонансного приближения. Такие последовательности предложено использовать в экспериментах по обнаружению нарушения локальной Лоренц-инвариантности [R. Shaniv, R. Ozeri, M. S. Safronova, S. G. Porsev, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, and H. Häffner, Phys. Rev. Lett. **120**, 103202 (2018)]. Основываясь на Фурье-анализе, нами показано, что учет нерезонансных вкладов приводит к радикальному изменению динамики квантовой системы (по отношению к резонансному приближению) в случае, когда число рамсеевских импульсов превышает несколько десятков. В результате, эффективность использования таких последовательностей радиочастотных импульсов для тестирования локальной Лоренц-инвариантности до конца не определена и требует дополнительных исследований.

DOI: 10.31857/S1234567824130056, EDN: OEENIL

Независимость результатов любого локального эксперимента от скорости и пространственной ориентации измерительных приборов теоретически формулируется как локальная Лоренц-инвариантность (ЛЛИ), которая является одним из основных фундаментальных принципов симметрии в современной физике. Однако в некоторых теориях, объединяющих Стандартную Модель и гравитацию в единую квантово-согласованную теорию, предполагается возможное нарушение симметрии Лоренца на планковском масштабе [1–3].

С точки зрения обнаружения гипотетического нарушения ЛЛИ, прецизионные спектроскопические эксперименты с захваченными атомами и ионами являются в настоящее время одним из наиболее перспективных направлений исследований [4–10]. Например, в работе [9] рассматриваются атомы (ионы), находящиеся на долгоживущем энергетическом уровне с угловым моментом $J > 1/2$, в присутствии

статического магнитного поля, снимающего вырождение по магнитным подуровням с квантовым числом m ($-J \leq m \leq J$). В этом случае нарушение ЛЛИ приводит к дополнительному энергетическому сдвигу зеemanовских подуровней по закону κm^2 , которое можно детектировать при долговременном опросе квантовой системы с помощью рамсеевской последовательности радиочастотных импульсов. При этом обнаружение суточной вариации измеряемого коэффициента κ (из-за вращения Земли, при прочих неизменных лабораторных условиях) и будет являться критерием нарушения ЛЛИ.

Чтобы подавить влияние флуктуаций статического и радиочастотного магнитных полей, сохраняя при этом высокую чувствительность к малому тензорному сдвигу ($\propto m^2$), в [9] предложено использовать метод динамической развязки (*dynamical decoupling*) [11–16], когда композитная рамсеевская последовательность состоит из большого числа индивидуальных импульсов (в нашем случае сотни и тысячи), фазы которых также индивидуальны и сле-

¹⁾e-mail: viyudin@mail.ru

дуют определенному закону. Применительно к тестированию ЛЛИ подобная техника впервые была апробирована в эксперименте [10], где рамсеевская последовательность состояла из нескольких тысяч импульсов. Следует отметить, что эффективность техники динамической развязки строго обоснована в рамках модели двухуровневого атома и резонансного приближения, которое является абсолютно адекватным в случае оптических переходов с частотой выше 10^{13} Гц. Однако, поскольку частота зеемановского расщепления в [9, 10] не превышает 10 МГц, то в этом случае нельзя автоматически полагать сохранение эффективности данной техники для композитных рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов. Поэтому для более детальной разработки метода [9] теоретический анализ необходимо вести без использования резонансного приближения.

В настоящей работе, на основе Фурье-анализа вне рамок резонансного приближения, нами численно исследована спектроскопическая схема, предложенная в [9]. Показано, что учет нерезонансных вкладов приводит к радикальному изменению динамики квантовой системы (по отношению к резонансному приближению, используемому в [9]) в случае, когда число радиочастотных рамсеевских импульсов превышает несколько десятков.

Рассмотрим атом (ион), находящийся на долгоживущем энергетическом уровне с угловым моментом J , волновую функцию которого мы будем описывать в базисе магнитных (зеемановских) подуровней $|J, m\rangle$ ($-J \leq m \leq J$). Метод рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов основан на наличии статического магнитного поля $\mathbf{B}_{\text{st}} = B_{\text{st}}\mathbf{n}_{\text{st}}$ и переменного поля $\mathbf{B}_{\text{rf}}(t) = B_{\text{rf}}(t)\mathbf{n}_{\text{rf}}$, где единичные векторы $\mathbf{n}_{\text{st}}$ и $\mathbf{n}_{\text{rf}}$ описывают ориентацию статического и переменного полей, соответственно. Для серии импульсов магнитного поля с гармонической модуляцией на частоте ν скалярная амплитуда переменного магнитного поля описывается следующим образом:

$$B_{\text{rf}}(t) = \eta(t)\mathcal{B}\cos[\nu t + \phi(t)], \quad (1)$$

где $\eta(t) = 1$ во время действия рамсеевского импульса и $\eta(t) = 0$ в промежутках между импульсами, $\mathcal{B}$ есть амплитуда поля во время действия импульсов, $\phi(t)$ есть фаза импульса, которая для различных импульсов может быть различной. В этом случае гамильтониан атома имеет следующий вид:

$$\hat{H}(t) = \Omega_L(\hat{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{n}_{\text{st}}) + \eta(t)2\Omega_{\text{rf}}\cos[\nu t + \phi(t)](\hat{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{n}_{\text{rf}}), \quad (2)$$

где $\hat{\mathbf{J}}$ есть оператор углового момента, $\Omega_L = \mu_B g_J B_{\text{st}}/\hbar$ есть частота ларморовской прецессии

в статическом магнитном поле (μ_B есть магнетон Бора, g_J есть g -фактор рассматриваемого энергетического уровня), а $\Omega_{\text{rf}} = \mu_B g_J \mathcal{B}/(2\hbar)$ есть эффективная частота Раби для радиочастотной гармонической модуляции.

В случае взаимно ортогональной ориентации векторов ($\mathbf{n}_{\text{st}} \perp \mathbf{n}_{\text{rf}}$) выберем ось Oz вдоль $\mathbf{n}_{\text{st}}$ и ось Ox вдоль $\mathbf{n}_{\text{rf}}$, что приводит к следующему выражению

$$\hat{H}(t) = \Omega_L \hat{J}_z + \kappa \hat{J}_z^2 + \eta(t)2\Omega_{\text{rf}}\cos[\nu t + \phi(t)]\hat{J}_x, \quad (3)$$

где мы также ввели малый тензорный сдвиг $\kappa \hat{J}_z^2$ ($\propto m^2$), обусловленный предполагаемым нарушением ЛЛИ, а также квадратичным зеемановским сдвигом и квадрупольным сдвигом (возникающим в ионных ловушках из-за их собственного градиента электрического поля) (см. [9]). При этом волновая функция $|\Psi(t)\rangle$, удовлетворяющая уравнению Шредингера

$$i\hbar\partial_t|\Psi(t)\rangle = \hat{H}(t)|\Psi(t)\rangle, \quad |\Psi(t)\rangle = \sum_m a_m(t)|J, m\rangle, \quad (4)$$

определяется стандартным образом как суперпозиция по магнитным подуровням.

Используя в выражении (4) следующее преобразование

$$a_m(t) = \tilde{a}_m(t)e^{-im\nu t}, \quad (5)$$

можно показать, что новая волновая функция $|\tilde{\Psi}(t)\rangle$ определяется из другого уравнения Шредингера

$$i\hbar\partial_t|\tilde{\Psi}(t)\rangle = \hat{H}_2(t)|\tilde{\Psi}(t)\rangle, \quad |\tilde{\Psi}(t)\rangle = \sum_m \tilde{a}_m(t)|J, m\rangle, \quad (6)$$

с модифицированным гамильтонианом

$$\hat{H}_2(t) = -\delta\hat{J}_z + \kappa\hat{J}_z^2 + \eta(t)\frac{\Omega_{\text{rf}}}{2}\{e^{i\phi(t)}\hat{J}_- + e^{-i\phi(t)}\hat{J}_+\} + \eta(t)\frac{\Omega_{\text{rf}}}{2}\{e^{-i2\nu t - i\phi(t)}\hat{J}_- + e^{i2\nu t + i\phi(t)}\hat{J}_+\}, \quad (7)$$

где $\delta = \nu - \Omega_L$ есть отстройка от резонанса, а $\hat{J}_{\pm} = \hat{J}_x \pm i\hat{J}_y$ есть стандартные повышающий (+) и понижающий (−) операторы.

Далее, в случае выполнения условий

$$\frac{|\delta|}{\Omega_L} \ll 1, \quad \frac{\Omega_{\text{rf}}}{\Omega_L} \ll 1, \quad (8)$$

можно перейти к резонансному приближению, отбросив в (7) осциллирующие вклады и используя только эффективный (укороченный) резонансный гамильтониан

$$\hat{H}_{\text{res}} = -\delta\hat{J}_z + \kappa\hat{J}_z^2 + \eta(t)\frac{\Omega_{\text{rf}}}{2}\{e^{i\phi(t)}\hat{J}_- + e^{-i\phi(t)}\hat{J}_+\} - \delta\hat{J}_z + \kappa\hat{J}_z^2 + \eta(t)\Omega_{\text{rf}}\{\cos\phi(t)\hat{J}_x + \sin\phi(t)\hat{J}_y\}. \quad (9)$$

Именно такой резонансный подход использовался в [9, 17] для теоретического обоснования метода по обнаружению нарушения ЛЛИ.

Нашей целью является анализ применимости резонансного приближения в случае рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов, включающих сотни и тысячи индивидуальных импульсов. Для этого мы проводим численные расчеты эволюции атома в рамках решения уравнения Шредингера с полным гамильтонианом (3) [или (7)] и сопоставляем их с расчетами для эффективного гамильтониана (9).

В данной работе мы будем рассматривать композитные рамсеевские последовательности радиочастотных импульсов, использующие технику динамической развязки. Общая схема таких последовательностей представлена на рис. 1. Здесь начальный $\pi/2$ -импульс длительностью $\tau/2$ (т.е. $\Omega_{\text{rf}}\tau/2 = \pi/2$) имеет фазу $\phi_{\text{in}} = 0$, в то время как завершающий $\pi/2$ -импульс имеет фазу ϕ_{fin} . Между этими двумя $\pi/2$ -импульсами по шкале времени расположены n число одинаковых N -боксов, каждый из которых состоит из N числа π -импульсов длительности τ ($\Omega_{\text{rf}}\tau = \pi$) с соответствующими фазами $(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_N)$. Таким образом, имеет место полное число $(Nn + 2)$ индивидуальных рамсеевских импульсов (включая начальный и финальный $\pi/2$ -импульсы). При этом время свободной эволюции между соседними π -импульсами равно τ_R , а время между начальным $\pi/2$ -импульсом и первым π -импульсом, а также время между последним π -импульсом и финальным $\pi/2$ -импульсом составляет $\tau_R/2$. Описанную выше композитную рамсеевскую последовательность радиочастотных импульсов (см. рис. 1) мы будем обозначать как $\{(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_N)^n, \phi_{\text{fin}}\}$.

Для определенности рассмотрим энергетический уровень с $J = 7/2$. Именно такой долгоживущий (метастабильный) уровень ($^2F_{7/2}$) существует в энергетической структуре иона $^{171}\text{Yb}^+$, который рассматривается в [9, 10, 17] как один из наиболее перспективных объектов для обнаружения нарушения ЛЛИ. В расчетах будем полагать, что в начальный момент времени атом (ион) находится на магнитном подуровне с квантовым числом m' . При этом после воздействия композитной рамсеевской последовательности радиочастотных импульсов мы будем анализировать населенность на этом же подуровне, $P_{m'} = |a_{m'}|^2 = |\tilde{a}_{m'}|^2$.

В качестве конкретного примера мы провели расчеты для рамсеевской последовательности $\{(\pi/2, -\pi/2)^n, \pi\}$ из работы [9], для которой N -бокс

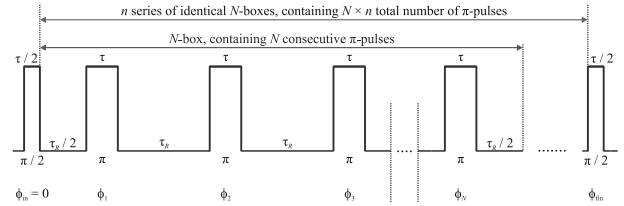


Рис. 1. (Цветной онлайн) Общая схема композитной рамсеевской последовательности радиочастотных импульсов $\{(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_N)^n, \phi_{\text{fin}}\}$, состоящей из $(Nn + 2)$ индивидуальных рамсеевских импульсов.

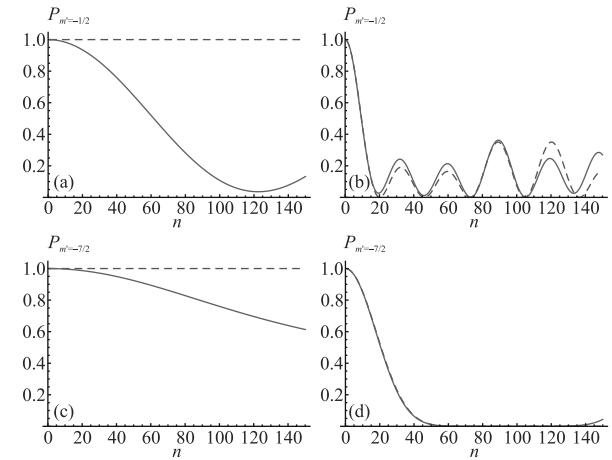


Рис. 2. (Цветной онлайн) Расчеты величины $P_{m'}$ после действия композитной рамсеевской последовательности $\{(\pi/2, -\pi/2)^n, \pi\}$ для $\kappa = 0$ (красная штриховая линия) и $\hbar\kappa/\Omega_{\text{rf}} = 0.00004$ (зеленая сплошная линия): (a) — $P_{m'=-1/2}$ на основе резонансного гамильтониана (9); (b) — $P_{m'=-1/2}$ на основе полного гамильтониана (3) [или (7)] с использованием Фурье-анализа; (c) — $P_{m'=-7/2}$ на основе резонансного гамильтониана (9); (d) — $P_{m'=-7/2}$ на основе полного гамильтониана (3) [или (7)] с использованием Фурье-анализа. Параметры расчетов: $\Omega_{\text{rf}}\tau = \pi$, $\Omega_L/\Omega_{\text{rf}} = 100$, $\delta = 0$, $\tau_R = 10\tau$

состоит из двух π -импульсов с фазами $\phi_1 = \pi/2$ и $\phi_2 = -\pi/2$, а завершающий $\pi/2$ -импульс имеет фазу $\phi_{\text{fin}} = \pi$. На рисунке 2а, б представлена зависимость $P_{m'=-1/2}$ от числа n одинаковых N -боксов в случае магнитного квантового числа $m' = -1/2$. При этом рис. 2а соответствует резонансному подходу с эффективным гамильтонианом (9) и совпадает с расчетами в [9], в то время как расчеты на рис. 2б сделаны на основе полного гамильтониана (3) [или (7)], используя Фурье-анализ. В последнем случае мы проводим разложение волновой функции по конечному числу гармоник $(2\mathcal{F} + 1)$ с номерами от $-\mathcal{F}$ до $\mathcal{F}$. При этом вычисления полагаются выполненными, когда дальнейшее увеличение $\mathcal{F}$

не ведет ко сколько-нибудь заметному изменению расчетных зависимостей (для расчета кривых на рис. 2–4 с хорошим запасом оказалось достаточно $\mathcal{F} = 50$).

Следует отметить, что именно существенное влияние слабого тензорного сдвига $\kappa \hat{J}_z^2$ на долговременную динамику, наблюдаемое в резонансной теории (подобно зеленой кривой на рис. 2а), и является главной идеей метода [9], предложенного для экспериментального обнаружения нарушения ЛЛИ. Однако, как видно из сопоставления рис. 2а и б, резонансное приближение весьма неудовлетворительно описывает динамику системы для $n \gg 1$. Более того, наши расчеты для полного гамильтониана (3) [или (7)] показывают, что наличие малого тензорного вклада ($\kappa \hat{J}_z^2$) практически не оказывает заметного влияния в случае выполнения условия

$$\frac{\hbar \kappa}{\Omega_{\text{rf}}} \ll \frac{\tau}{\tau_R} \frac{\Omega_{\text{rf}}}{\Omega_L}. \quad (10)$$

Этот факт также ясно демонстрируют рис. 2с, д, на которых представлена зависимость $P_{m'=-\frac{7}{2}}$ от числа n одинаковых N -боксов. Подобные радикальные несоответствия между резонансной теорией, использующей эффективный гамильтониан (9), и расчетами на основе полного гамильтониана (3) [или (7)] наблюдаются также для других значений m' и J (например, $J = 1/2; 3/2; 5/2$).

В случае же нарушения условия (10), точные вычисления на основе полного гамильтониана уже близки к резонансной теории (см. рис. 3). Поэтому хорошее совпадение в [9] результатов эксперимента для иона $^{88}\text{Sr}^+$ ($J = 5/2$, $m' = -3/2$, для последовательностей от $n = 1$ до $n = 55$) с расчетами по резонансной теории объясняется тем, что контролируемый в эксперименте тензорный сдвиг (квадрупольный сдвиг в линейной ловушке Пауля) является относительно большим и условие (10) не выполняется. Действительно, наши вычисления для $J = 5/2$, использующие экспериментальные данные из сопроводительных материалов к [9], подтверждают достаточно близкое совпадение резонансной теории с точными вычислениями. Однако вклад от предполагаемого нарушения ЛЛИ является заведомо очень малым и с гарантированным выполнением неравенства (10) для реальных экспериментов с $n \gg 1$. Таким образом, если тензорный сдвиг $\kappa \hat{J}_z^2$ определяется в основном нарушением ЛЛИ, то использование рамсеевской последовательности радиочастотных импульсов $\{(\pi/2, -\pi/2)^n, \phi_{\text{fin}}\}$, рассмотренной в [9], не позволит надежно обнаружить этот сдвиг, даже если он имеет место в действительности.

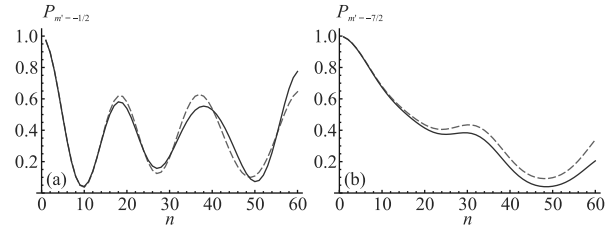


Рис. 3. (Цветной онлайн) Расчеты величины $P_{m'}$ после действия композитной рамсеевской последовательности $\{(\pi/2, -\pi/2)^n, \pi\}$ в случае, когда условие (10) нарушено, на основе резонансного гамильтониана (9) (штриховая коричневая линия) и точный расчет на основе полного гамильтониана (3) [или (7)] (сплошная синяя линия): (а) – для $m' = -1/2$; (б) – для $m' = -7/2$. Параметры расчетов: $\Omega_{\text{rf}}\tau = \pi$, $\hbar\kappa/\Omega_{\text{rf}} = 0.0005$, $\Omega_L/\Omega_{\text{rf}} = 400$, $\delta = 0$, $\tau_R = 10\tau$

Объяснение того, что для $n \gg 1$ резонансная теория становится неадекватной [если выполняется условие (10)], на качественном уровне формулируется следующим образом. Пусть, например, имеет место отношение $(\Omega_{\text{rf}}/\Omega_L) \sim 0.01$. Тогда, как следует из Фурье-анализа уравнения Шредингера (6) с гамильтонианом (7), вклад высших гармоник у волновой функции $|\Psi(t)\rangle$ по отношению к нулевой гармонике (которая и составляет суть резонансного приближения), также составляет 0.01 по порядку величины. Таким образом, для одного рамсеевского π -импульса точный расчет дает отклонение порядка 1% от резонансного приближения. Поэтому, после нескольких десятков последовательных π -импульсов можно ожидать существенное расхождение между резонансной теорией и точным расчетом, что и наблюдается нами в действительности (см. рис. 2). Аналогично, для величины отношения $(\Omega_{\text{rf}}/\Omega_L) \sim 0.001$ значительное отклонение от резонансного подхода можно ожидать после нескольких сотен рамсеевских импульсов (что также подтверждается вычислениями). При этом существенно уменьшить “параметр нерезонансных вкладов” $(\Omega_{\text{rf}}/\Omega_L)$ так, чтобы достичь выполнения условия (10), крайне проблематично. Действительно, сильно увеличивая зеemanовское расщепление Ω_L (т.е. статическое магнитное поле B_{st}), мы автоматически увеличиваем квадратичный зеemanовский сдвиг, который имеет такую же тензорную структуру ($\propto \hat{J}_z^2$), как и предполагаемый сдвиг за счет нарушения ЛЛИ. Кроме того, возможна заметная неконтролируемая вариация отстройки δ . Сильное уменьшение радиочастотного поля также неприемлемо, поскольку будут иметь место сильные относительные флуктуации малой величины Ω_{rf} , что резко снизит чувствительность метода.

Вышеприведенные обстоятельства принципиально отличают рамсеевские последовательности радиочастотных импульсов от рамсеевских последовательностей на оптических переходах, где “параметр нерезонансных вкладов” может быть крайне малым ($\Omega_{\text{Rabi}}/\omega_0 < 10^{-10}$ (где Ω_{Rabi} есть частота Раби пробного поля на оптическом переходе с частотой ω_0). При этом, метод динамической развязки [11–16] разработан именно в рамках резонансного приближения для модели двухуровневого атома. Поэтому эффективность данной техники для композитных рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов должна быть исследована отдельно вне рамок резонансного приближения.

Также хорошо известно, что первой поправкой к резонансному приближению является сдвиг уровней, вызванный нерезонансными осциллирующими членами в полном гамильтониане (сдвиг Блоха–Зигерта [18]). В нашем случае, рассматривая полный гамильтониан (7) при выполнении условий (8), нетрудно показать, что учет первых нерезонансных вкладов приводит к модифицированному резонансному гамильтониану

$$\hat{H}_{\text{res}}^{(\text{mod})} = \hat{H}_{\text{res}} + \eta(t) \frac{\Omega_{\text{rf}}^2}{4\Omega_L} \hat{J}_z, \quad (11)$$

где мы использовали $\eta^2(t) = \eta(t)$. Как видно, выражение для $\hat{H}_{\text{res}}^{(\text{mod})}$ отличается от (9) дополнительными малыми сдвигами энергии магнитных подуровней ($\propto \hat{J}_z$) во время действия импульсов ($\eta(t) = 1$), в то время как во время свободной эволюции эти сдвиги отсутствуют ($\eta(t) = 0$). Однако, как показано на рис. 4, даже переход к модифицированному резонансному приближению на основе гамильтониана (11) не приводит к адекватному описанию динамики атома под действием композитной последовательности радиочастотных импульсов при $n \gg 1$.

В заключении, используя Фурье-анализ вне рамок резонансного приближения, мы рассмотрели действие композитных рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов, взаимодействующих с зеэмановской структурой на долгоживущем энергетическом уровне атома (иона). Такие последовательности предложены в [9] для экспериментального тестирования ЛЛИ. Нами показано, что учет нерезонансных вкладов приводит к радикальному изменению динамики квантовой системы (по отношению к резонансному приближению) в случае, когда число рамсеевских импульсов превышает несколько десятков или сотен. Это объясняется тем, что “параметр нерезонансных вкладов” (отношение $\Omega_{\text{rf}}/\Omega_L$) является не очень маленьким ($\Omega_{\text{rf}}/\Omega_L \sim 10^{-2} - 10^{-3}$). В результате, возмож-

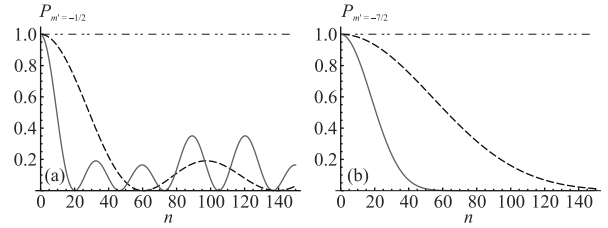


Рис. 4. (Цветной онлайн) Расчеты величины $P_{m'}$ после действия композитной рамсеевской последовательности $\{(\pi/2, -\pi/2)^n, \pi\}$ на основе резонансного гамильтониана (9) (штрих-пунктирная красная линия), на основе модифицированного резонансного гамильтониана (11) (штриховая черная линия), и точный расчет на основе полного гамильтониана (3) [или (7)] (сплошная зеленая линия): (а) – для $m' = -1/2$; (б) – для $m' = -7/2$. Параметры расчетов: $\Omega_{\text{rf}}\tau = \pi$, $\kappa = 0$, $\Omega_L/\Omega_{\text{rf}} = 100$, $\delta = 0$, $\tau_R = 10\tau$

ность использования таких рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов с целью обнаружения нарушения ЛЛИ требует дополнительных исследований и поиска наиболее подходящих спектроскопических схем. При этом эффективность техники динамической развязки (т.е. эффективность подавления влияния флуктуаций магнитных полей, в нашем случае) также не является гарантированной и должна быть исследована отдельно вне рамок резонансного приближения.

Полученные результаты, помимо разработки методов тестирования ЛЛИ, могут иметь значение также для теоретического анализа различных разделов квантовой метрологии, использующих вырожденные энергетические уровни атомов (ионов) и поля с радиочастотной модуляцией (например, в атомных часах [19]).

Мы благодарим Т. Мехльштаублер (T. Mehlstäubler), Л. Дрейсен (L. Dreissen), Ч.-Х. Ёе (Ch.-H. Yeh), Х. Фурст (H. Furst) и К. Гренсеман (K. Grensemann) за полезные дискуссии.

Финансирование работы. Данная работа была поддержана Российским научным фондом (грант 22-12-00279). В. И. Юдин был также поддержан Министерством Науки и Высшего Образования РФ (грант # FSUS-2020-0036).

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

1. P. Horava, Phys. Rev. D **79**, 084008 (2009).
2. M. Pospelov and Y. Shang, Phys. Rev. D **85**, 105001 (2012).
3. G. Cognola, R. Myrzakulov, L. Sebastiani, S. Vagnozzi, and S. Zerbini, Class. Quantum Gravity **33**, 225014 (2016).

4. T. Pruttivarasin, M. Ramm, S. G. Porsev, I. I. Tupitsyn, M. S. Safronova, M. A. Hohensee, and H. Häffner, *Nature* **517**, 592 (2015).
5. V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, M. S. Safronova, S. G. Porsev, T. Pruttivarasin, M. A. Hohensee, and H. Häffner, *Nature Phys.* **12**, 465 (2016).
6. M. S. Safronova, D. Budker, D. DeMille, Derek F. Jackson Kimball, A. Derevianko, and Ch. W. Clark, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 025008 (2018).
7. E. Megidish, J. Broz, N. Greene, and H. Häffner, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 123605 (2019).
8. C. Sanner, N. Huntemann, R. Lange, C. Tamm, E. Peik, M. S. Safronova, and S. G. Porsev, *Nature* **567**, 204 (2019).
9. R. Shaniv, R. Ozeri, M. S. Safronova, S. G. Porsev, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, and H. Häffner, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 103202 (2018).
10. L. S. Dreissen, Ch.-H. Yeh, H. A. Füst, K. C. Grensemann, and T. E. Mehlstäubler, *Nat. Commun.* **13**, 7314 (2022).
11. L. Viola, E. Knill, and S. Lloyd, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2417 (1999).
12. K. Khodjasteh and D. A. Lidar, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 180501 (2005).
13. K. Khodjasteh and D. A. Lidar, *Phys. Rev. A* **75**, 062310 (2007).
14. K. Khodjasteh, J. Sastrawan, D. Hayes, T. J. Green, M. J. Biercuk, and L. Viola, *Nat. Commun.* **4**, 2045 (2013).
15. D. A. Lidar and T. A. Brun, *Quantum Error Correction*, Cambridge University Press, Cambridge, England (2013).
16. G. T. Genov, D. Schraft, N. V. Vitanov, and T. Halfmann, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 133202 (2017).
17. C.-H. Yeh, K. C. Grensemann, L. S. Dreissen, H. A. Füst, and T. E. Mehlstäubler, *New J. Phys.* **25**, 093054 (2023).
18. F. Bloch and A. Siegert, *Phys. Rev.* **57**, 522 (1940).
19. T. Zanon-Willette, E. de Clercq, and E. Arimondo, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 223003 (2012).

“Асимметрия ветвления” резонанса когерентного пленения населенностей

Е. А. Цыганков¹⁾, Д. С. Чучелов, М. И. Васьковская, С. А. Зибров, В. В. Васильев, В. Л. Величанский

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

Поступила в редакцию 28 мая 2024
После переработки 10 июня 2024 г.
Принята к публикации 10 июня 2024 г.

Рассматривается ситуация, когда разность населенностей в основном состоянии Λ -схемы уровней возникает за счет спонтанного распада верхнего уровня в нижние. Показано, что возникающая из-за этого асимметрия резонанса когерентного пленения населенностей приводит к сдвигу частоты квадратурного сигнала, который нелинейно зависит от интенсивности оптического излучения. При этом данный вклад не подавляется за счет использования высоких частот модуляции по сравнению со скоростью релаксации поляризации основного состояния (аналог режима Паунда–Древера–Холла). Обсуждается, что указанный сдвиг существенно мал при использовании бинарной смеси благородных буферных газов.

DOI: 10.31857/S1234567824130068, EDN: CERHMD

Для применения в микроволновых стандартах частоты [1, 2] на основе газовых ячеек с атомами щелочного металла опорный резонанс должен иметь достаточно малую ширину. Для увеличения времени жизни поляризации основного состояния атомов могут быть использованы два стандартных способа. Первый заключается в использовании антирелаксационного покрытия, уменьшающего вероятность релаксации атомов при столкновениях со стенками ячейки. Известны алкановые, алкеновые, органхлорсилановые и другие типы покрытий, имеющие различные преимущества и недостатки [3]. Главный общий недостаток покрытий — отсутствие максимума в зависимости частоты микроволнового перехода между уровнями $m_{F_g} = 0$ (здесь и далее индексы g, e соответствуют основному и возбужденному состоянию) от температуры [4], что требует ее строгого контроля при исполнении стандарта частоты [5]. Второй способ состоит в наполнении газовой ячейки буферным газом, который уменьшает время достижения атомами стенок, при этом вероятность релаксации при столкновении атомов щелочного металла с его частицами много меньше, чем со стенками. Роль буферного могут выполнять инертные газы и ряд молекулярных [6]. Часть из них приводит к положительному линейному температурному сдвигу частоты микроволнового перехода, часть — к отрицательному. Это позволяет подобрать бинарную смесь, которая обеспечивает квадратичную температурную зависимость частоты в приемлемом для стандарта

частоты диапазоне температур, поэтому в большинстве случаев используют буферный газ, а не антирелаксационные покрытия.

Благородные газы эффективно деполаризуют возбужденное состояние $nP_{1/2}$ атомов щелочных металлов при столкновениях [7], что связано с его ненулевым орбитальным моментом L [8, 9]. Некоторые молекулярные газы, например, азот и метан, обладают свойством тушения флуоресценции атомов щелочных металлов: энергия возбужденного состояния последних переходит в колебательную энергию молекул. Поскольку спонтанное излучение должно приводить к уширению опорного резонанса и уменьшению его амплитуды [5, 6, 10], то азот считают более предпочтительным буферным газом.

Известно, что происходящее при деполаризующих столкновениях выравнивание населенностей магнитных подуровней возбужденного состояния уменьшает эффективность оптической накачки на подуровень основного состояния с максимальным значением m_{F_g} при использовании излучения циркулярной поляризации [8]. В нашей работе был рассмотрен случай электродипольных переходов между уровнями $F_g = 1$, $F_g = 2$ и $F_e = 1$, $F_e = 2$. В предположении полного выравнивания населенностей магнитных подуровней последних было теоретически показано, что такой результат справедлив и для случая резонанса когерентного пленения населенностей (КПН) [11], который используется в малогабаритных атомных часах [12, 13]. При этом амплитуда КПН-резонанса, по сравнению с ситуацией отсутствия выравнивания населенно-

¹⁾e-mail: tsyganov.e.a@yandex.ru

стей уровней $F_e = 1$, $F_e = 2$, возрастает. Измерение технического контраста резонанса в атомах ^{87}Rb , определяемого как отношение уровня пропускания в точном резонансе к разности между полным и нерезонансным уровнями пропускания излучения атомной средой [14], показало, что, в случае аргона и неона, он в разы больше, чем при использовании азота, когда скорость оптической накачки заметно превышает релаксацию населенностей основного состояния к равновесному. Данный результат можно объяснить следующим. Азот обеспечивает меньшую степень выравнивания населенностей состояния $5P_{1/2}$, чем инертные газы, поскольку часть столкновений приводит только к их безызлучательной релаксации. В такой ситуации населенности рабочих подуровней $m_{F_g} = 0$ различны на величину около 10 % из-за притока с неодинаково заселенных подуровней $m_{F_e} = 0$ [11].

В работе [15] мы рассмотрели случай, когда модулируется разность частот компонент бихроматического излучения, индуцирующего резонанс КПН. Это обеспечивает в поглощении наличие отклика на частоте модуляции, амплитуда которого является нечетной функцией двухфотонной расстройки (отличия разности частот и частоты микроволнового перехода), что дает сигнал ошибки и позволяет организовать обратную связь для привязки частоты стандарта к микроволновому переходу. Его можно представить в виде суммы синфазного и квадратурного сигналов. Первый определяет осцилляции, происходящие в фазе с модуляцией разности частот компонент поля, осцилляции второго сдвинуты по фазе на $\pi/2$. Было показано, что модуляция обеспечивает многопиковую структуру КПН-резонанса. В случае отличия частот Раби компонент поля пики становятся асимметричны и возникает эффект затягивания частоты, смещающий положение центрального. Соответствующий сдвиг частоты нелинейно зависит от интенсивности оптического излучения. Как известно, методы подавления светового сдвига частоты исходят из предположения о линейной зависимости частоты сигнала ошибки от интенсивности излучения. Нелинейный сдвиг, вызванный асимметрией резонанса, снижает их эффективность. Однако было показано, что переход в режим высоких частот модуляции (предложено в [16]) приводит к подавлению нелинейного сдвига частоты, что происходит в силу разрешения многопиковой структуры резонанса [15].

В данной работе мы показываем, что при асимметрии КПН-резонанса, связанной с неодинаковым заселением уровней основного состояния за счет спон-

танного распада верхнего, возникает нелинейный сдвиг частоты квадратурного сигнала от интенсивности излучения. При этом он не оказывается подавлен в режиме высоких частот модуляции, который обеспечивает разрешение многопиковой структуры и подавление эффекта затягивания частоты. Отметим, что указанный механизм отличия населенностей нижних уровней Λ -схемы и его влияние на сдвиг частоты резонанса КПН рассматривался ранее в [17, 18]. В работах был исследован вариант Рэмси-спектроскопии перехода между уровнями основного состояния для получения сигнала ошибки.

Рассмотрим Λ -схему уровней, в которой приход в уровень $|2\rangle$ за счет спонтанного распада верхнего равен $(1 - \beta)\gamma/2$, а в другой уровень основного состояния $-(1 + \beta)\gamma/2$; см. рис. 1. Здесь γ есть естественная ширина верхнего уровня, параметр β задает отличие каналов спонтанного распада, т.е. моделирует различный приток с подуровней $m_{F_e} = 0$ в рабочие $m_{F_g} = 0$ атомов щелочного металла. В рамках модели β в принципе может принимать значения из интервала $[-1, 1]$, но мы рассматриваем случай $|\beta| \sim 0.1$.

Электродипольные переходы между уровнями $|2\rangle$, $|e\rangle$ и $|1\rangle$, $|e\rangle$ вызывает следующее бихроматическое поле:

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} \left\{ \mathcal{E}_{-1} e^{-i[\omega_{-1}t - \varphi(t)]} + \mathcal{E}_1 e^{-i[\omega_1 t + \varphi(t)]} \right\} + \text{к. с.}, \quad (1)$$

где $\omega_{\mp 1} = \omega_L \mp \Omega$, а модуляционное слагаемое $\varphi(t) = a \cdot \sin \omega_m t$ обеспечивает синфазный и квадратурный сигнал. Частота лазерного излучения содержит отстройку от полусуммы частот оптических переходов, $\omega_L - \omega_0 = \Delta_L$. При этом $\omega_L, \omega_0 \gg \omega_g$, где ω_g есть частотный интервал между уровнями основного состояния. Считается, что низкочастотная компонен-

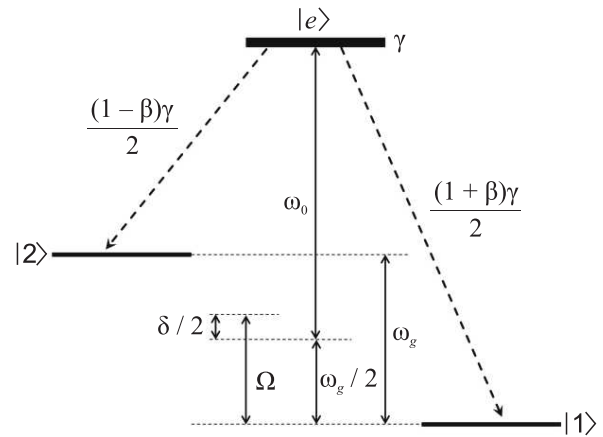


Рис. 1. Рассматриваемая схема уровней

та поля вызывает переходы только между уровнями $|2\rangle$, $|e\rangle$, а высокочастотная – между $|1\rangle$, $|e\rangle$. Частоты Раби переходов считаются реальными и равными величинами, $d\mathcal{E}_{-1}/2\hbar = d\mathcal{E}_1/2\hbar = V$. Разность частот компонент поля имеет малую отстройку от интервала между уровнями основного состояния, $2\Omega - \omega_g = \delta$.

Исходную систему уравнений для элементов атомной матрицы плотности упрощаем с помощью приближений малого насыщения, резонансного (вращающейся волны) и за счет адиабатического исключения возбужденного состояния. Соответствующие выкладки можно найти в [15, 19], они предполагают следующую иерархию параметров:

$$\delta \sim \omega_m \lesssim \Gamma_{g,c} \sim V^2/\Gamma \ll \gamma \ll \Gamma \ll \Omega \sim \omega_g \ll \omega_0, \omega_L, \quad (2)$$

где параметр Γ определяет однородное уширение оптической линии, Γ_g , Γ_c – релаксацию населенностей основного состояния к равновесному значению $1/2$ и затухание недиагонального элемента ρ_{21} , определяющего поляризацию основного состояния, соответственно.

Указанные выше приближения позволяют выразить населенность верхнего уровня через элементы матрицы плотности основного состояния, которая в рассматриваемой ситуации определяет поглощение оптического излучения:

$$\rho_{ee} = 2S \frac{\Gamma}{\gamma} (1 + \rho_{21} + \rho_{12}), \quad (3)$$

где $S = V^2 / (\Gamma^2 + \Delta_L^2)$.

Для элементов основного состояния имеет место следующая система уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \rho_{22} = & -\Gamma S [2\rho_{22} - 1 + \beta(1 - \rho_{21} - \rho_{12})] \\ & -i\Delta_L S (\rho_{21} - \rho_{12}) - \Gamma_g (\rho_{22} - 1/2), \end{aligned} \quad (4a)$$

$$\begin{aligned} \left(i \frac{\partial}{\partial t} + \delta + 2a \cdot \omega_m \cos \omega_m t + i\Gamma_c + 2i\Gamma S \right) \rho_{21} = & \\ & -i\Gamma S + \Delta_L S (1 - 2\rho_{22}). \end{aligned} \quad (4b)$$

Сперва опустим модуляционное слагаемое $2a \cdot \omega_m \cos \omega_m t$ в скобках левой части уравнения (4b) и проанализируем влияние отличия каналов спонтанного распада на элементы основного состояния. В общем случае квазистационарное решение громоздко, но в случае $\Delta_L = \delta = 0$ (точный оптический и двухфотонный резонанс) для населенности уровня $|2\rangle$ можно получить удобное выражение

$$\rho_{22} = \frac{1}{2} \left[1 - \beta \frac{P_g}{(1 + P_g)^2} \right], \quad (5)$$

где $P_g = 2\Gamma S/\Gamma_g$, которое показывает, что в слабом поле $P_g \ll 1$ населенность ведет себя как $1/2(1 - \beta P_g)$, т.е. линейно убывает с ростом интенсивности излучения. В противоположном случае $P_g \gg 1$ поведение описывается выражением $1/2(1 - \beta/P_g)$ и ρ_{22} стремится к $1/2$ снизу – сильное поле задает распределение населенностей нижних уровней несмотря на то, что они неодинаковым образом заселяются за счет распада верхнего уровня. Таким образом, отличие каналов спонтанного распада приводит к неравенству $\rho_{11} \neq \rho_{22}$ только в случае ненулевой релаксации основного состояния $\Gamma_g \neq 0$. Минимум населенности ρ_{22} и, соответственно, максимум для ρ_{11} достигается при $P_g = 1$ и равен $1/2 \mp \beta/8$. Для получения компактного выражения для недиагонального элемента достаточно упрощения $\Delta_L = 0$:

$$\rho_{21} = -\frac{1}{2} P_c \frac{i\tilde{\delta} + 1 + P_c}{\tilde{\delta}^2 + (1 + P_c)^2}, \quad (6)$$

где $P_c = 2\Gamma S/\Gamma_c$, $\tilde{\delta} = \delta/\Gamma_c$. Выражение (6) показывает, что в сильном поле $P_c \gg 1$ при $\delta = 0$ имеет место равенство $\rho_{21} = 1/2$, из чего следует, что $\rho_{ee} \equiv 0$, т.е. оптическое поле не испытывает поглощения. Также отметим, что в окрестности $\delta = 0$ линейная по δ часть $\text{Im}(\rho_{21})$ достигает минимума $-1/8$ при $P_c = 1$. Напомним, что при $\Delta_L \neq 0$ реальная часть ρ_{21} приобретает пропорциональный δ член, в результате чего функция $\rho_{ee}(\delta)$ перестает быть четной, то есть КПН-резонанс становится асимметричным.

Далее учтем модуляционное слагаемое $2a \cdot \omega_m \cos \omega_m t$ в уравнении (4b) и численно решим систему уравнений (4) при значении индекса модуляции $a \simeq 0.541$, обеспечивающего максимальную крутизну центральной дисперсионной кривой квадратурного сигнала. Также будем использовать следующие значения параметров: $\Gamma_c = 2\Gamma_g = 2\pi \cdot 500$ Гц, $\Gamma = 2\pi \cdot 1.5 \cdot 10^9$ Гц, $\Delta_L/\Gamma = -1/10$, $\beta = 0.15$.

На рисунке 2 приведена многопиковая структура A_0 (неосциллирующая часть ρ_{ee} или ее нулевая гармоника по частоте ω_m) и соответствующий ей квадратурный сигнал A_Q , полученные как усредненная по периоду частоты ω_m населенность ρ_{ee} без и с ее домножением на $\sin \omega_m t$. Усреднение проводилось в интервале времени $[2\pi \cdot 199/\omega_m, 2\pi \cdot 200/\omega_m]$, где заведомо достигается установившийся режим. Частота модуляции ω_m равна $2\pi \cdot 10$ кГц для всех случаев, кроме рис. 3, при таком значении эффект затягивания частоты уже пренебрежимо мал по сравнению со сдвигом нулей дисперсионных кривых квадратурного сигнала, связанным с асимметрией резонанса КПН.

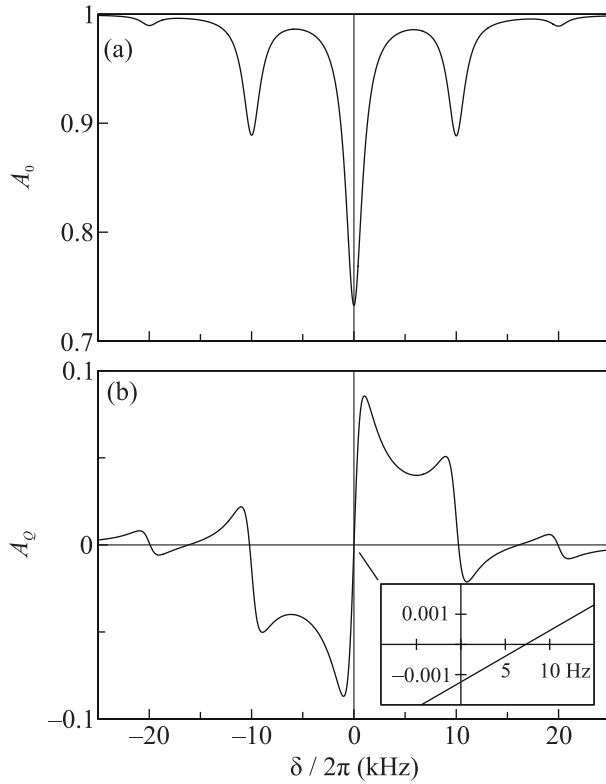


Рис. 2. (a) – Неосциллирующая часть населенности верхнего уровня. (b) – Квадратурный сигнал (амплитуда осцилляций поглощения $\propto \sin \omega_m t$). Вставка демонстрирует смещение частоты нуля центральной дисперсионной кривой, связанное с асимметрией резонанса. Вертикальные оси приведены в единицах $2S\Gamma/\gamma$

На рисунке 3 представлена зависимость сдвига частоты нуля центральной дисперсионной кривой квадратурного сигнала от величины $P_c = 2S\Gamma/\Gamma_c$ – отношения полевого уширения к скорости релаксации недиагонального элемента основного состояния. Как показывает зависимость, нелинейная часть сдвига наиболее выражена при умеренных частотах Раби, когда населенности заметно отклоняются от равновесных значений.

Полученный результат позволяет сделать следующее заключение. В ячейках с антирелаксационным покрытием за счет неодинакового заселения подуровней $m_{F_g} = 0$ спонтанным распадом верхнего уровня частота сигнала ошибки будет нелинейно зависеть от интенсивности излучения даже в случае режима высоких частот модуляции, который позволяет избежать эффекта затягивания частоты. Это дополнительная причина, по которой в стандартах частоты на основе эффекта КПН в газовых ячейках с атомами щелочного металла следует использовать буферный газ. При этом более предпочтительна бинарная смесь из благородных газов, поскольку из-

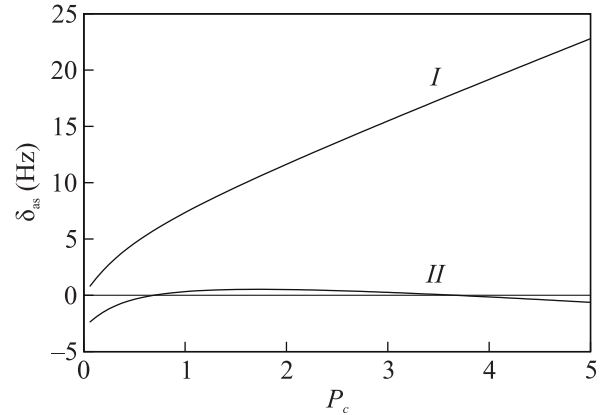


Рис. 3. Кривая I – зависимость сдвига частоты нуля центральной дисперсионной кривой квадратурного сигнала от отношения полевого уширения к скорости релаксации поляризации основного состояния. Кривая II – нелинейная часть сдвига. Выбранная частота модуляции $\omega_m = 2\pi \cdot 100$ кГц обеспечивает подавление сдвига частоты из-за эффекта затягивания в случае существенного полевого уширения. Сдвиг посчитан с точностью $5 \cdot 10^{-3}$ Гц

вестно, что они в значительной степени выравнивают населенности подуровней состояния $nP_{1/2}$ атомов щелочного металла. В результате спонтанный распад практически одинаково заселяет подуровни и нелинейный по интенсивности излучения сдвиг частоты сигнала ошибки оказывается существенно подавлен.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств Физического института академии наук им. П. Н. Лебедева. 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. J. Vanier and C. Tómbescu, *The quantum physics of atomic frequency standards: recent developments*, CRC Press, Boca Raton (2015).
2. F. Riehle, *Frequency standards: basics and applications*, John Wiley & Sons, Darmstadt (2006).
3. H. Chi, W. Quan, J. Zhang, L. Zhao, and J. Fang, *Applied Surface Science* **501**, 143897 (2020).
4. M. Abdel Hafiz, V. Maurice, R. Chutani, N. Passilly, C. Gorecki, S. Guérandel, E. de Clercq, and R. Boudot, *J. Appl. Phys.* **117**, 184901 (2015).
5. J. Kitching, *Appl. Phys. Rev.*, **5**, 031302 (2018).
6. J. Vanier and C. Audoin, *The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards*, CRC Press, Boca Raton (1989).

7. W. Happer, Rev. of Mod. Phys. **44**, 169 (1972).
8. W. Franzen and A.G. Emslie, Phys. Rev. **108**, 1453 (1957).
9. A.I. Okunevich and V.I. Perel', Soviet Physics JETP **31**, 666 (1970).
10. J. Vanier and C. Mandache, Appl. Phys. B **87**, 565, (2007).
11. K.M. Sabakar, M.I. Vaskovskaya, D.S. Chuchelov, E.A. Tsygankov, V.V. Vassiliev, S.A. Zibrov, and V.L. Velichansky, Phys. Rev. Appl. **20**, 034015 (2023).
12. M. Travagnin, Joint Research Center, <https://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/handle/JRC125394>.
13. Microchip Technology Incorporated, <https://ww1.microchip.com/downloads/en/DeviceDoc/00003876.pdf>.
14. V. Shah and J. Kitching, *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, Academic Press, New Jersey (2010), v. 59, ch. 2, p. 21.
15. E.A. Tsygankov, D.S. Chuchelov, M.I. Vaskovskaya, V.V. Vassiliev, S.A. Zibrov, and V.L. Velichansky, Phys. Rev. A, **109**, 053703 (2024).
16. V.I. Yudin, M.Yu. Basalaev, A.V. Taichenachev, O.N. Prudnikov, D.A. Radnatarov, S.M. Kobtsev, S.M. Ignatovich, and M.N. Skvortsov, Phys. Rev. A **108**, 013103 (2023).
17. T. Zanon-Willette, E. De Clercq, and E. Arimondo, Phys. Rev. A **84**, 062502 (2011).
18. L. Xiaoyan, Zh. Xu, S. Jianfang, X. Zhen, and H. Zhengfeng, Chin. Phys. B **30**, 083203 (2021).
19. D.S. Chuchelov, V.V. Vassiliev, M.I. Vaskovskaya, V.L. Velichansky, E.A. Tsygankov, S.A. Zibrov, S.V. Petropavlovsky, and V.P. Yakovlev, Phys. Scr. **93**, 114002 (2018).

Спинодальный распад вискеро́в NbS_3 с волнами зарядовой плотности

В. П. Мартовицкий⁺, М. В. Никитин*, В. Я. Покровский^{*1)}

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

*Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

Поступила в редакцию 30 мая 2024 г.

После переработки 30 мая 2024 г.

Принята к публикации 30 мая 2024 г.

Рентгенодифракционное исследование в скользящей геометрии вискеро́в NbS_3 II фазы с волнами зарядовой плотности показало, что в них вместо одиночных пиков ($h0l$) присутствуют пары уширенных рефлексов от двух близких фаз с углами моноклинности β_1 и β_2 . Фаза с меньшим углом моноклинности $\beta_1 = 95.9 \div 97.2^\circ$ близка по структурным параметрам к фазе I без волн зарядовой плотности. Фаза II с $\beta_2 = 99.9 \div 100.0^\circ$ имеет пониженное значение параметра решетки вдоль сильнейшей связи (оси **b**), что предполагает повышенную концентрацию вакансий серы в этой фазе по сравнению с фазой I. Сделан вывод, что в исследованных вискеро́х произошел спинодальный распад с перераспределением вакансий серы, в результате которого наблюдается чередование фаз в направлении поперек слоев (001). В лучшем по структурному совершенству вискеро́е II фазы наблюдается сателлитная структура, свидетельствующая об образовании сверхрешетки с периодом 35.2 нм в этом направлении. Спинодальный распад сочетается с высокими внутренними напряжениями, присутствующими в вискеро́х с моноклинной решеткой. Частичный спинодальный распад наблюдается и в некоторых вискеро́х I фазы без волн зарядовой плотности с появлением тонких прослоек фазы IV и фазы II с углом моноклинности $\beta = 104^\circ$. Существование тонких слоев фазы II в объеме фазы I таких образцов подтверждается наблюдением ступенек Шапиро на вольт-амперных характеристиках при подаче высокочастотного напряжения. Фактор спинодального распада необходимо учитывать при описании свойств вискеро́в NbS_3 , номинально относящихся к тому или иному полимиту.

DOI: 10.31857/S123456782413007X, EDN: CGTOAF

Вискеро́ы NbS_3 в настоящее время являются единственным известным квазиодномерным материалом, в котором волны зарядовой плотности (ВЗП) наблюдаются при комнатной температуре: ВЗП-1 формируется ниже $T_{P1} = 360$ К, а точка формирования ВЗП-0 – $T_{P0} = 460$ К [1]. Это предполагает возможное практическое применение этого соединения. Еще одна ВЗП, ВЗП-2, образуется при $T_{P2} = 150$ К. Волны зарядовой плотности наблюдаются в моноклинной фазе, известной как фаза II. В ней, как и в других фазах NbS_3 [2–4], цепочки ниобия, окруженные трехгранными призмами серы, ориентированы вдоль сильнейшей связи (оси **b**). В этой системе известны также полимиту́ без ВЗП: триклинная фаза [2] (фаза I) и почти ромбическая фаза с отклонением менее чем на 0.1° от прямого угла α между осями **b** и **c** (фаза IV) [4]. К настоящему времени экспериментально обнаружено еще несколько полимиту́ структур NbS_3 [1, 5], а еще большее число полимиту́

предсказано теоретически [6]. Хотя интенсивное изучение этого соединения началось около 2009 г., когда были установлены условия воспроизводимого получения вискеро́в с ВЗП [7, 8], до сих пор некоторые вопросы взаимосвязи структурных особенностей вискеро́в NbS_3 с наблюдаемыми в них ВЗП остаются нерешенными.

Основными методами исследования структурных особенностей монокристаллов являются электронная микроскопия и рентгеновская дифракция. Эти два метода не конкурируют между собой, у них практически непересекающиеся области исследований. Электронная микроскопия имеет беспрецедентно высокое пространственное разрешение, вплоть до визуализации отдельных атомов. При этом поле зрения электронной микроскопии составляет всего несколько десятков или сотен нанометров. Рентгеновская же дифракция отличается беспрецедентно высоким угловым разрешением: пики начинают уширяться при толщине областей когерентного рассеяния (ОКР) меньше 100 нм, при том что глубина

¹⁾e-mail: vadim.pokrovskiy@mail.ru

проникновения мягкого медного излучения достигает нескольких десятков микрон, а исследуемая область образца при освещении монохроматизированным пучком может составлять до 30 мм^2 . В то время как электронная микроскопия требует специально подготовленных для анализа утоненных шлифов образцов и может определить значение параметров решетки с точностью не выше 0.001 нм , рентгеновская дифракция является неразрушающим методом анализа и может достоверно определить пять-семь десятичных знаков, в зависимости от структурного совершенства кристаллов. Поэтому макрораспределение существующих фаз в вискерах и их параметры решетки предпочтительнее изучать рентгенодифракционными методами.

В настоящей работе методом скользящей рентгеновской дифракции по нескольким рефлексам ($h0l$) установлено, что вискеры, номинально относящиеся к фазе II, содержат две фазы с различными углами моноклинности, β_1 и β_2 . Фаза с меньшим углом моноклинности, β_1 , близка по структурным параметрам к фазе I без ВЗП. Фаза с большим углом моноклинности, β_2 , близка по параметрам к фазе II с ВЗП и отличается пониженным параметром решетки **b** вдоль сильнейшей связи, по сравнению с фазой I. Это указывает на повышенную концентрацию вакансий серы во второй фазе. Мы связываем изменение углов моноклинности двух фаз с перераспределением вакансий между ними при спинодальном распаде. В лучшем по структурному совершенству вискере II фазы наблюдается сателлитная структура, свидетельствующая о периодическом чередовании этих фаз вдоль оси *c*. Частичный спинодальный распад наблюдался нами и в вискере I фазы с образованием прослоек IV и II фаз. Ступеньки Шапиро на ВАХ этого образца при подаче на него высокочастотного (ВЧ) напряжения подтверждают присутствие прослоек II фазы.

Структурные исследования проводились на рентгеновском дифрактометре Panalytical X'Pert MRD с первичным гибридным монохроматором или параболическим рентгеновским зеркалом (для менее совершенных образцов). В отличие от обычной, скользящая дифракция, в которой угол асимметрии отражающей плоскости к (001) выбирается за счет отклонения образца от вертикали на угол асимметрии, позволяет записать в псевдосимметричной геометрии сразу несколько рефлексов с близкими углами наклона к (001). Все 12 исследованных вискером были отобраны из одной ростовой партии. Они имели плоскую боковую грань (001), перпендикулярную к ван-дер-ваальсовой связи, с размерами $(1 \div 3 \text{ мм}) \times (30 \div 160 \text{ мкм})$.

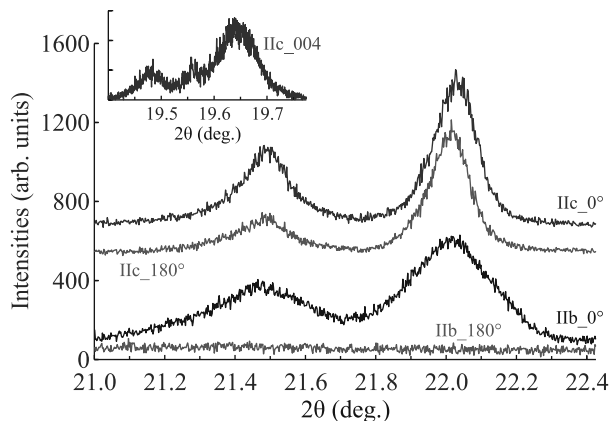


Рис. 1. (Цветной онлайн) Кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования на асимметричном рефлексе (202) с отклонением образцов от вертикали на угол $\psi_{(202)} = 55.7^\circ$ до и после поворота на 180° вокруг оси [001] образцов Pb и Ps. На вставке: кривая $(2\theta - \omega)$ -сканирования с кристаллоанализатором на рефлексе (004) образца Ps

На рисунке 1 приведены кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования на асимметричном рефлексе (202) со средним углом наклона к плоскости (001) $\psi = 55.7^\circ$ для двух вискером, Pb и Ps. Главное, на что следует обратить внимание, это то, что эти кривые, как и кривые других рефлексом ($h0l$), состоят из пары уширенных пиков, выявляющих две тесно сросшиеся фазы с малыми размерами ОКР ($35\text{--}60 \text{ нм}$) и различными углами моноклинности.

Из кривых, приведенных на рис. 1, также видно, что образец Pb – без двойников, а Ps – с двойниками. Присутствие двойников выявляется по ненулевым интенсивностям того же самого рефлекса (202) после поворота образца на 180° вокруг [001]. В образце Ps угловые положения пиков и интенсивности для двойников близки, но не совпадают с угловыми положениями основных индивидов, что предполагает небольшие отличия в их структурных параметрах. Вставка на рис. 1 получена на рефлексе (004) образца Ps с кристаллоанализатором, пропускающим в детектор дифрагированный луч в очень узком угловом диапазоне ($12''$). Кривая, приведенная на вставке, выявляет не только различные параметры решетки вдоль оси *c* для двух фаз, но и остаточную интенсивность от еще одной фазы. В образце Pb без двойников (рис. 1) соотношение интенсивностей двух фаз примерно такое же, как и в основном индивиде образца Ps.

Нужно отметить, что существуют вискеры NbS_3 -II, в которых наблюдается только одна фаза (образец Pm в табл. 1). В таких образцах параметры решетки примерно совпадают с параметрами фазы

с большим углом моноклинности. Это предполагает существование области стабильности II фазы с углом моноклинности $\beta = 99.5 \div 100^\circ$.

Параметры решетки исследованных вискеро с ВЗП приведены в табл. 1, в которую для сравнения добавлены два образца I типа. Для вискеро, в которых удалось получить параметры решеток для отдельных фаз, в табл. 1 отведено две или даже три строки с указанием типа образовавшейся фазы в подстрочном индексе. Отдельная строка отведена для частично отколовшейся пластины в образце Пд (Пд_p). Как видно из рефлектометрической кривой [9], приведенной на вставке к рис. 3, толщина этой пластины – 52 нм. Полуширина дифракционного рефлекса (008) этой пластины (0.176°), записанная с кристаллоанализатором, также соответствует толщине примерно 50 нм. Для вискеро с двойниками структурные параметры приведены для индивида с большей интенсивностью. При невозможности достоверно определить какой-либо из параметров решетки в табл. 1 поставлен прочерк.

Таблица 1. Параметры псевдоромбической решетки вискеро с ВЗП (II-типа), претерпевающих спинодальный распад на фазы I и II, и без ВЗП (I-типа) с частичным распадом на фазы IV и II

#	<i>a</i> (Å)	<i>b</i> (Å)	<i>c</i> (Å)	β_1 (°)	β_2 (°)
Па _I	9.905	3.36477	18.183	96.25	
Па _{II}	9.941	3.3453	18.100		100.0
Пб _I	9.882	3.372	18.155	96.6	
Пб _{II}	9.912	3.3608	18.124		99.75
Пс _I	9.844	3.373	18.195	96.3	
Пс _{II}	9.950	3.363	18.074		99.9
Пд	–	3.348	18.090	–	–
Пд _p	9.689	3.447	17.212	96.6	
Пм	9.793	3.347	18.078		99.55
Пн _I	9.776	3.370	18.176	97.2	
Пн _{II}	9.851	3.361	18.070		99.9
Ia	9.853*	3.375*	18.132*	97.8	
Ic	9.816*	3.373*	18.143*	96.7	
Ис _{IV}	9.838	–	18.375	90	
Ис _{II}	9.807	–	18.067		104

*Для вискеро I типа приведены в два раза меньшие значения параметра решетки вдоль оси **b** и в два раза большие вдоль осей **a** и **c** для наглядного сравнения их со значениями параметров вискеро II типа.

Поясним, что для определения угла β моноклинной решетки сначала определяется параметр псевдоромбической решетки c_{rhomb} по угловому положению симметричного рефлекса (00*l*), затем при горизонтальном расположении длинной оси вискера прописываются два асимметричных рефлекса ($h_1 0 l_1$) и

($h_2 0 l_2$), каждый со своим углом отклонения ψ образца от вертикали, и потом по формулам кристаллографии находятся параметры решетки вдоль оси **a** и угол β для каждой фазы. Из-за присутствия внутренних напряжений, приводящих к понижению интенсивностей и сдвигу рефлексов с возрастанием угла дифракции, лучше использовать рефлексы с малыми индексами, например, ($\bar{2}02$) и (202). Отметим, что при расчетах моноклинной решетки необходимо учитывать, что с изменением угла β изменяется длина оси **c** = $c_{\text{rhomb}} / \cos \beta$. Параметр решетки вдоль оси **b** определяется по паре сильных рефлексов (014) и ($0\bar{1}4$) при начальном вертикальном расположении длинной оси вискера и последующим отклонением гониометрической головки дифрактометра на угол асимметрии $\psi_{(014)} = 53.45^\circ$.

На рисунке 2 приведены кривые ($2\theta - \omega$)-сканирования асимметричных рефлексов ($h0l$) образцов Пн и Пб. На верхней кривой рефлекса

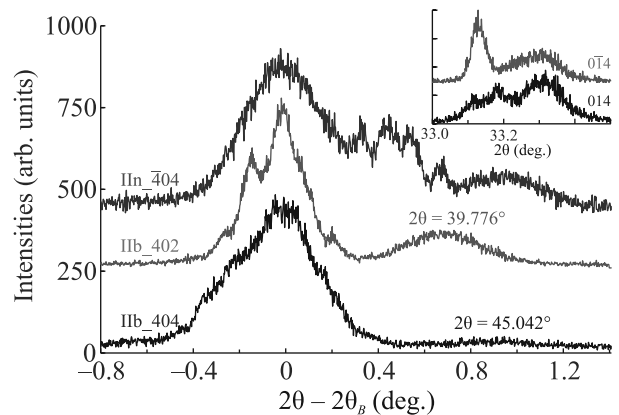


Рис. 2. (Цветной онлайн) Кривые ($2\theta - \omega$)-сканирования асимметричных рефлексов ($h0l$). Верхняя кривая: образец Пн. Видна сателлитная структура из-за сверхрешетки с периодом 35.2 нм на рефлексе ($\bar{4}04$). Нижние кривые: образец Пб. Видно понижение интенсивности пика фазы с большим углом моноклинности на рефлексе ($\bar{4}04$) при возрастании угла дифракции. На вставке: кривые ($2\theta - \omega$)-сканирования с кристаллоанализатором на рефлексах (014) и ($0\bar{1}4$) образца Пн с одним узким и интенсивным пиком

($\bar{4}04$) образца Пн видна сателлитная структура, свидетельствующая об образовании почти регулярной сверхрешетки. По угловому расстоянию между первым и третьим сателлитами $\Delta(2\theta) = 0.208^\circ$ или $\Delta(\theta) = 0.104^\circ$ для симметричного рефлекса вычисляется период сверхрешетки [10] $L = \frac{(n_2 - n_1)\lambda}{2\Delta(\theta)\cos\theta} = 90$ нм, где n_2, n_1 – номера сателлитов, $\lambda = 1.540598$ Å – длина волны линии Cu K $_{\alpha 1}$, $\theta = 19.566^\circ$ – средний угол дифракции

между сателлитами. Поскольку образец отклонен от плоскости (001) на $\psi = 67^\circ$, период $L_{[001]}$ вдоль направления [001] равен $L_{[001]} = L \times \cos \psi = 35.2$ нм.

На вставке к рис. 2 приведены кривые ($2\theta - \omega$)-сканирования с кристаллом-анализатором на рефлексах (014) и (0 $\bar{1}$ 4) образца Пн, из которых следует, что максимумы пиков с большим углом дифракции, т.е. принадлежащих фазе II, совпадают, тогда как для пиков с меньшими углами дифракции видны различные угловые положения и интенсивности пиков. Такие особенности характерны при небольшом отклонении от прямого угла между осями **b** и **c** в структурах без ВЗП, которые наблюдаются в IV [11] и I фазах.

Таким образом, в вискерах NbS₃, номинально относящихся к политутипу II, вдоль оси **c** наблюдается чередование фаз, среди которых появляется и фаза I. В некоторых кристаллах чередование фаз может быть периодическим. Однако прежде чем перейти к обсуждению происхождения наблюдаемой структуры фаз, необходимо отметить еще одно общее свойство изученных вискеро́в, а именно, – огромные внутренние напряжения в них.

Рассмотрим две нижних кривых на рис. 2, приведенных для образца Пв. На них можно заметить понижение интенсивности пика фазы с большим углом моноклинности при переходе от рефлекса (402) к рефлексу (404). На рефлексах (4012), (4018) и (4020) с еще большими углами дифракции второй пик вообще отсутствует. С другой стороны, на серии асимметричных рефлексов ($\bar{h}0l$) с возрастанием угла дифракции тоже сначала понижается, а затем и исчезает пик со стороны больших углов, принадлежащий уже политутипу с меньшим углом моноклинности. Это означает, что даже в самых совершенных из исследованных нами вискерах присутствуют внутренние напряжения.

В менее совершенных образцах понижение и исчезновение пиков с возрастанием угла дифракции наглядно видно на дифрактограммах (рис. 3). В образце Па интенсивность рефлексов с большими углами дифракции ниже, чем у аналогичных рефлексов образца Пв, а в образце Пд из-за внутренних напряжений присутствуют только два первых сильных рефлекса и очень слабый рефлекс с углом дифракции $2\theta \approx 39.8^\circ$. Все остальные рефлексы образца Пд видны только на частично отколовшейся от основного тела вискера и слегка разориентированной пластине, что подтверждается возрастанием интенсивности пиков при выставлении ее в точное отражающее положение. Фрагмент такой дифрактограммы приведен непосредственно выше дифрактограммы образца Пд.

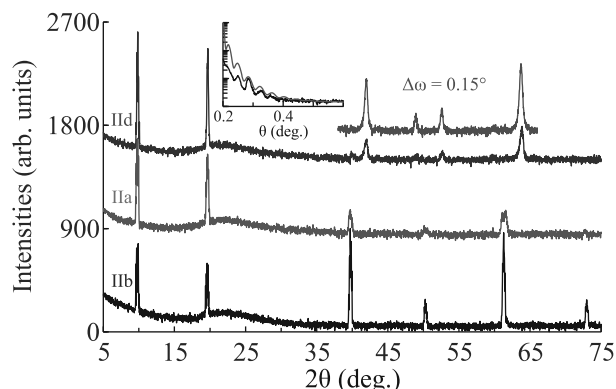


Рис. 3. (Цветной онлайн) Дифрактограммы вискеро́в NbS₃ с ВЗП. Сверху приведен фрагмент дифрактограммы пластинки, частично отщепившейся от основного вискера Пд. Вставка: рефлектометрические кривые образца Пд – измеренная (нижняя) и расчетная для слоя толщиной 52 нм (верхняя)

Все пики от отколовшейся пластины принадлежат серии (00 l), как и на всех других дифрактограммах, но они заметно сдвинуты в сторону больших углов. Таким образом, благодаря отсутствию большинства рефлексов от основного вискера, мы смогли определить все параметры решетки свободно висящей пластины. Они приведены в табл. 1 отдельной строкой.

Возрастание параметра **b**, длины сильнейшей связи, в отщепившейся пластине на 2.9 % по сравнению с основным телом кристалла можно связать с уменьшением в ней концентрации вакансий серы. Хорошо известно, что подвижность вакансий примерно на два порядка выше, чем атомов, и они имеют тенденцию выходить на внешние поверхности кристалла [12]. В тонкой пластине вакансий может остаться минимальное количество из-за их диффузии на обе поверхности пластины. На это указывает и рост сопротивления вискеро́в в процессе хранения при комнатной температуре в течение нескольких лет²⁾. С ростом параметра **b** можно связать и понижение параметра решетки отщепившейся пластины вдоль оси **c** на 4.85 %. Однако одним уменьшением концентрации вакансий невозможно объяснить такое возрастание длины сильнейшей связи в тонкой пластине. Колоссальный уровень внутренних неоднородных напряжений в вискерах NbS₃, приводящих к понижению или даже к исчезновению рефлексов с возрастанием угла дифракции, можно оценить по результатам работы [13], в которой было показано, что гидростатическое давление в 0.6 ГПа сжимает длину сильнейшей связи La-O(1) всего на 0.2 % в соединении

²⁾ С. Г. Зыбцев, частное сообщение

La_{2-x}Sr_xCuO₄. Можно предположить, что такие колоссальные напряжения возникают в NbS₃ в области фазовых границ.

Итак, наш эксперимент показал, что в вискерах NbS₃, чередование фаз вдоль оси *c* сочетается с огромными внутренними напряжениями. Эти свойства указывают на спинодальный распад наших кристаллов.

Тут необходимо пояснить, что спинодальный распад [14] представляет собой быстрый процесс распада термодинамически неустойчивой фазы, не требующий образования зародышей новых фаз, на тонкие прослойки двух более устойчивых фаз при перераспределении между ними либо точечных дефектов в двухкомпонентных системах, либо катионов в более сложных структурах. Например, в минералогии хорошо изучены калий-натриевые полевые шпаты, в которых оба катиона растворимы при высоких температурах, но совсем не растворимы ниже некоторой критической температуры. Эти минералы распадаются при охлаждении на тонкие прослойки силикатов калия и натрия [15]. На шлифах этой системы видно, что, чем больше скорость охлаждения породы, тем тоньше прослойки двух фаз. При тщательном рассмотрении таких шлифов видно, что толщины отдельных прослоек слегка различаются друг от друга из-за статистического характера процесса распада. Спинодальный распад используется для получения сверхрешеток при выращивании эпитаксиальных слоев Ga_xIn_{1-x}As_yP_{1-y} на подложках (001) GaAs [16] или Ga_xIn_{1-x}As на подложках (001) InP [17]. Ниже мы покажем, что спинодальный распад исходной II фазы NbS₃ должен приводить именно к такой структуре фаз, ключевой особенностью которой будет чередование углов моноклинности β .

Мы предполагаем, что в образцах NbS₃ спинодальный распад произошел в процессе охлаждения, завершающего ростовой цикл. Исходно однородный кристалл NbS₃-II из-за высокой концентрации вакансий серы в нем оказывается неустойчив относительно спинодального распада. Более устойчивым оказывается состояние, возникающее при самосогласованном процессе диффузии вакансий вдоль оси *c* с изменением β . Вискер оказывается разбитым на слои с меньшими и большими значениями β и, соответственно, с меньшей и большей концентрацией вакансий серы. Толщина слоев может определяться соотношением скорости охлаждения и скорости диффузии вакансий, а также возрастающими напряжениями при отклонении углов β_1 и β_2 от значения угла β_{m1} , который соответствует условию решеток совпадающих узлов [18, 19]. В процессе спино-

дального распада исходное значение β в части слоев увеличивается до β_2 , в части – уменьшается до β_1 . При частичном спинодальном распаде может остаться и исходная фаза. Теперь понятно, что вид кривой $(2\theta-\omega)$ -сканирования с кристаллом-анализатором на рефлексе (004), показанной на вставке к рис. 1, означает, что образец Пс претерпел частичный спинодальный распад: наблюдаемый слабый пик принадлежит исходной, нераспавшейся фазе, и расположен он между пиками фаз с меньшим и большим углом моноклинности.

Природу напряжений в кристаллах с моноклинной структурой, распавшихся на слои разных фаз, проще всего понять при рассмотрении решеток двойников, в которых ось *a* одного индивида параллельна оси $-\bar{a}$ другого индивида. В идеальном варианте, когда двойники расположены в различных слоях вдоль оси [001], напряжения не должны возникать. Однако в реальных кристаллах при одновременном зарождении нового слоя во многих центрах из-за моноклинности структуры в одном и том же направлении будут соседствовать более короткое расстояние $d'_{(h0l)}$ основного индивида с более длинным расстоянием $d'_{(\bar{h}0l)}$ двойника (вставка на рис. 4). Для рефлексов

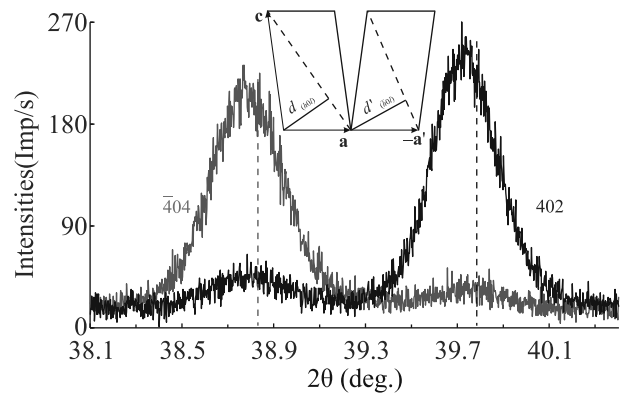


Рис. 4. (Цветной онлайн) Кривые $(2\theta-\omega)$ -сканирования на рефлексе (402) основного индивида и $(\bar{4}04)'$ двойника образца Пм (черная) и $(\bar{4}04)$ основного индивида и $(402)'$ двойника после поворота этого же образца на 180° вокруг нормали к плоскости (001) (красная). Вставка иллюстрирует возрастание $d'_{(\bar{h}0l)}$ двойника с моноклинной решеткой по сравнению с $d_{(h0l)}$

$d_{(\bar{h}0l)}$ и $d'_{(h0l)}$ возникает обратная ситуация. В процессе роста некоторые двойники будут “упираться” друг в друга, что и объясняет возникновение напряжений.

Чем больше угол моноклинности, тем большим будет расхождение между этими двумя расстояниями и тем большими будут напряжения между двой-

никами. Это будет наблюдаться вплоть до такого значения угла, при котором возникнет выполнение условия решеток совпадающих узлов [17, 18], т.е. две периодичности в наклонных направлениях к плоскости (001) будут относиться друг к другу как близкие натуральные числа, например, 1:2, 2:3, 3:4 и т.д. В этом случае напряжения резко понизятся.

Для иллюстрации рассмотрим образец Пс, предположив, что он возник в процессе распада на двойники некой исходной фазы, параметры которой зададим как усредненные по фазам I и II значения параметров псевдо ромбической решетки образца Пс: $a = 9.897 \text{ \AA}$, $c = 18.135 \text{ \AA}$. Можно найти такой угол моноклинности, для которого напряжения между двойниками будут минимальными. Для угла моноклинности $\beta_{m1} = 97.77^\circ$ углы дифракции и углы асимметрии к плоскости (001) для рефлексов (402) основного индивида и $(\bar{4}04)'$ двойника совпадают с точностью до трех десятичных знаков ($\theta_B = 19.657^\circ$, $\psi = 67.740^\circ$), т.е. практически выполняется условие решеток совпадающих узлов.

Точно такие же рассуждения применимы и для распада на две параллельные решетки с различными углами моноклинности с тем отличием, что уровень напряжений в этом случае будет меньшим. Если при отклонении от угла β_{m1} на один градус относительное изменение межплоскостного расстояния между двойниками равно $(d - d')/d = 1.26 \%$, то при параллельном срастании двух фаз $(d_1 - d_2)/d_2 = 0.63 \%$. Поэтому при спинодальном распаде вискеро́в без двойников величина расхождения углов β_1 и β_2 может быть вдвое большей, чем с двойниками.

Отдельно рассмотрим образец Пм, в котором спинодальный распад отсутствует, однако четко выражено двойникование. На рисунке 4 приведены кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования на рефлексе (402) основного индивида и $(\bar{4}04)'$ двойника (черная), а также $(\bar{4}04)$ основного индивида и $(402)'$ двойника после поворота образца Пм на 180° вокруг нормали к плоскости (001) (красная). Соотношение интенсивностей основного индивида и двойника на этих рефлексах 85:15, тогда как на рефлексах (202) и $(202)'$ соотношение 60:40. Это означает, что с возрастанием угла дифракции из-за напряжений интенсивность пиков двойника падает быстрее, чем пиков основного индивида. Это и понятно: одна и та же сила давления вызывает большую деформацию в более тонком слое. Угловые расстояния между пиками (402) и $(\bar{4}04)$ основного индивида и двойника $\Delta(2\theta) = 0.95^\circ$ соответствуют углу моноклинности $\beta = 99.55^\circ$. Это значение угла меньше, чем в вискерах II фазы без двойников ($99.9 \div 100^\circ$). Кроме того, для одного и того же

вискера значение угла β_2 фазы II, определенное на рефлексах (402) или (404), примерно на $0.05 \div 0.07^\circ$ меньше, чем на рефлексах (202) и $(\bar{2}02)$, из-за падения интенсивности от областей с самым большим углом моноклинности при возрастании угла дифракции.

Все приведенные выше результаты свидетельствуют о структурной неустойчивости большинства вискеро́в II фазы, претерпевающих спинодальный распад на две фазы с различными углами моноклинности β_1 и β_2 . Близкий пример подобного распада наблюдался при росте эпитаксиальных слоев гексагональных политипов карбида кремния на кубической подложке SiC [20, 21]. Авторы этих работ пришли к выводу, что каждый политип SiC стабилен при определенной концентрации вакансий в подрешетках углерода и кремния. Например, для кубического политипа 3C концентрация вакансий в углеродной подрешетке $N_C^{3C} = 23.5 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$, тогда как для гексагонального политипа 4H $N_C^{4H} = 7.3 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$. Поэтому из-за диффузии вакансий из кубической подложки при эпитаксиальном росте слоя 4H образуется нестабильная переходная область толщиной 500–800 нм с промежуточной концентрацией вакансий, распадающаяся на чередующиеся прослойки фаз 4H и 3C.

Спинодальный распад иногда встречается и в образцах I фазы. На рисунке 5 приведены кривые

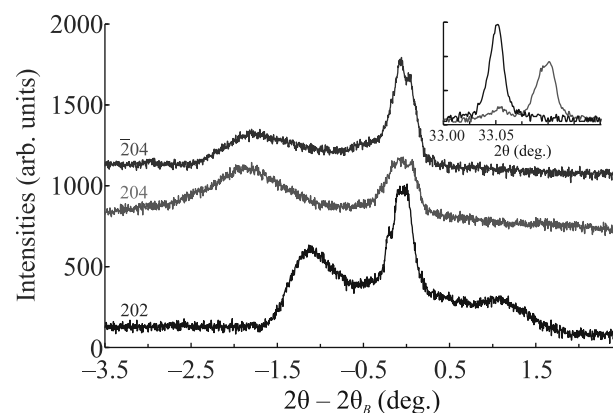


Рис. 5. (Цветной онлайн) Кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования на рефлексах (202) (черная), (204) (красная) и $(\bar{2}04)$ (синяя) образца Ic с частичным спинодальным распадом фазы I на тонкие прослойки фаз IV и II. На вставке: кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования на рефлексах (014) и $(\bar{0}14)$ образца Ic, свидетельствующие об искажении прямого угла между осями **b** и **c** в триклинной фазе

$(2\theta - \omega)$ -сканирования в квадратичном масштабе на рефлексах (202), (204) и $(\bar{2}04)$ образца NbS_3 -I с углом моноклинности $\beta = 96.7^\circ$, на которых присутствуют уширенные из-за малой толщины пики двух

фаз, свидетельствующие о частичном спинодальном распаде этого вискера. Отличительной структурной особенностью I фазы без ВЗП является отклонение от прямого угла α между осями **b** и **c**, превращающего моноклинную структуру в триклинную. На вставке к рис. 5 приведены кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования с кристаллом-анализатором на рефлексах (014) и (0 $\bar{1}$ 4) образца Ic, выявляющие не только искажение угла ($\alpha = 90.093^\circ$), но и появление слабого пика от IV фазы без ВЗП, наблюдавшейся нами в наиболее крупных и совершенных по структуре вискерах NbS₃ [11]. Появившиеся при частичном спинодальном распаде тонкие прослойки фазы IV (структурные параметры которой вычисляются по рефлексам (202) и (204)) и фазы II (рефлексы (202) и (204)) быстро исчезают с возрастанием угла дифракции, будучи зажатыми толстыми прослойками основной фазы.

Появление тонких прослоек II фазы в вискерах I фазы, очевидно, вследствие спинодального распада, проявляется и в транспортных свойствах. На температурных зависимостях сопротивления, $R(T)$, заметны особенности при $T_{P1} = 360$ К и $T_{P2} = 150$ К. Кривые $R(T)$ таких образцов практически такие же, как у образцов II фазы [1], однако их удельное сопротивление на 3–4 порядка выше. Вклад II фазы еще более очевиден из ВАХ таких образцов. На зависимостях дифференциального сопротивления dV/dI от напряжения V , измеренных при наложении ВЧ напряжения, видны ступеньки Шапиро – максимумы dV/dI [22, 23]. Ступеньки Шапиро – явное свидетельство скольжения ВЗП. Более того, по отношению нелинейного тока – тока ВЗП, I_{CDW} – к частоте ВЧ напряжения можно определить число цепочек ВЗП, участвующих в проводимости. Из рисунка 6, на котором приведены зависимости dV/dI от V для образца Ic, видно, что пики расположены очень близко друг к другу, несмотря на относительно высокую частоту обучения, $f = 100$ МГц. Это означает, что число проводящих цепочек, n , дающих вклад в ток ВЗП, относительно мало. Действительно, поскольку за период ВЧ поля $1/f$ каждая цепочка ВЗП переносит заряд $2e$, находим $n = I_{CDW}/2ef = 19000$. В фазе II площадь сечения, приходящаяся на одну цепочку – $180 \text{ \AA}^2$ [22]. Из этого находим, что общая площадь II фазы в образце – 0.034 мкм^2 , что составляет 4.5×10^{-5} от общей площади образца, 760 мкм^2 .

Представление о спинодальном распаде позволяет нам сделать некоторые предположения о концентрации вакансий серы в вискерах. Перераспределение вакансий в результате их диффузии при спинодальном распаде вискеров II типа сопровождается изменением угла β моноклинной решетки. С возрас-

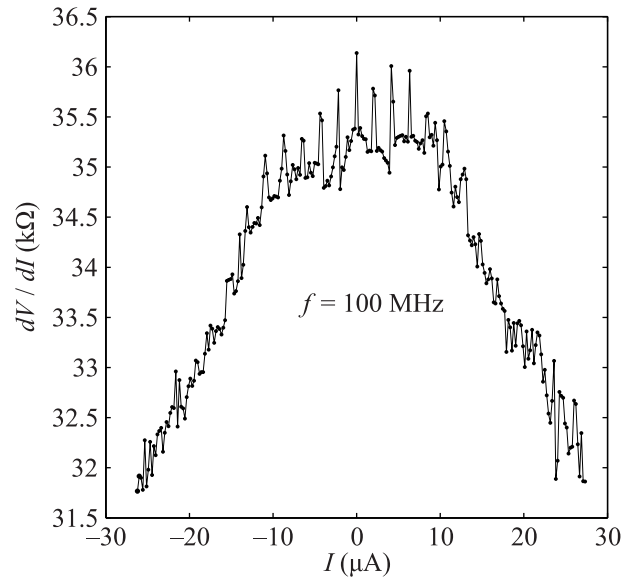


Рис. 6. Зависимость дифференциального сопротивления, dV/dI , образца Ic от тока. Пики dV/dI – ступеньки Шапиро. Измерения в 4-х-контактной конфигурации. Расстояние между потенциальными контактами – 220 мкм , площадь сечения – 760 мкм^2 . Температура 296 К

танием концентрации вакансий возрастает и величина угла моноклинности. Аналогично, частичный распад вискера I фазы на прослойки IV и II фаз позволяет нам предположить, что наименьшая концентрация вакансий должна быть в IV фазе с углом $\beta_{IV} = 90^\circ$, а наибольшая – во II фазе с углом моноклинности $\beta_{II} = 104^\circ$. Такое большое значение угла моноклинности прослоек второй фазы внутри вискера I фазы по сравнению с остальными вискерами II фазы связано, по нашему мнению, с минимизацией напряжений между основной и вновь образовавшейся фазами. Например, для псевдо ромбической решетки $a = 9.897 \text{ \AA}$, $c = 18.135 \text{ \AA}$ существует не только первый угол решеток совпадающих узлов $\beta_{m1} = 97.77^\circ$, но и второй угол $\beta_{m2} = 105.28^\circ$, к которому и стремится угол моноклинности II фазы для минимизации напряжений с основной фазой. Сам факт того, что фаза I может выделяться при распаде фазы II, а прослойки фазы II могут появляться при распаде фазы I, предполагает структурную близость этих двух фаз [24]. Тогда ключевым параметром, определяющим фазу NbS₃ – с ВЗП или без – может быть концентрация вакансий серы, а не особая решетка. При этом из-за спинодального распада фазы могут чередоваться и даже упорядочиваться с образованием сверхструктур.

В заключение, в вискерах NbS₃-II с ВЗП наблюдается чередование фаз, в некоторых случаях перио-

дическое, вызванное спинодальным распадом с перераспределением вакансий серы между фазами. Величина угла β моноклинной решетки возрастает с ростом концентрации вакансий. Частичный спинодальный распад наблюдается и в некоторых вискерах I фазы с появлением тонких прослоек IV и II фаз. Результат подтверждается транспортными свойствами этого вискера, номинально NbS_3 -I, свидетельствующими о тонких прослойках фазы II в нем. Таким образом, вискры NbS_3 во многих случаях нельзя рассматривать как однофазные образцы.

Финансирование работы. Работа выполнена при финансовой поддержке проекта Российского научного фонда 22-12-00319.

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

1. S. G. Zybtshev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova, S. V. Zaitsev-Zotov, E. Zupanic, M. van Midden, W. W. Pai, J. Alloys Compd. **854**, 157098 (2021).
2. E. Zupanic, H. J. P. van Midden, M. van Midden, S. Sturm, E. Tchernychova, V. Ya. Pokrovskii, S. G. Zybtshev, 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).
3. J. Rijnsdorp and F. Jellinek, J. Solid State Chem. **25**, 32 (1978).
4. M. A. Bloodgood, P. Wei, E. Aytan, K. N. Bozhilov, A. A. Balandin, and T. T. Salguero, APL Materials **6**, 026602 (2018).
5. S. G. Zybtshev, N. Yu. Tabachkova, V. Ya. Pokrovskii, S. A. Nikonov, A. A. Maizlakh, and S. V. Zaitsev-Zotov, JETP Lett. **114**, 40 (2021).
6. S. Conejeros, B. Guster, P. Alemany, J.-P. Pouget, and E. Canadell, Chem. Mater. **33**, 5449 (2021).
7. S. G. Zybtshev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova, and S. V. Zaitsev-Zotov, Appl. Phys. Lett. **94**, 152112 (2009).
8. В. Я. Покровский, С. Г. Зыбцев, М. В. Никитин, И. Г. Горлова, В. Ф. Насретдинова, С. В. Зайцев-Зотов, УФН **183**, 33 (2013).
9. I. Kojima and B. Li, The Rigaku J. **16**, 31 (1999).
10. P. F. Fewster, *X-ray scattering from Semiconductors*, Imperial College Press, London (2003), 299 p.
11. В. П. Мартовицкий, А. Ю. Клоков, В. Я. Покровский, Письма в ЖЭТФ **118**, 191 (2023).
12. P. M. Fahey, P. B. Griffin, and J. D. Plummer. Rev. Mod. Phys. **61**, 289 (1989).
13. H. Takahashi, H. Shaked, B. A. Hunter, P. G. Radaelli, R. L. Hitterman, D. G. Hinks, and J. D. Jorgensen, Phys. Rev. B **50**, 3221 (1994).
14. В. П. Скрипов, А. В. Скрипов, УФН **128**, 193 (1979).
15. К. Херлбат, К. Клейн, *Минералогия по системе Дэна*, Недра, М. (1982), 728 с.
16. П. В. Середин, А. В. Глотов, В. Е. Терновая, Э. П. Домашевская, И. Н. Арсентьев, Л. С. Вавилова, И. С. Тарасов, ФТП **45**, 1489 (2011).
17. P. Henoc, A. Izrael, M. Quillec, and H. L. Launois, Appl. Phys. Lett. **40**, 963 (1982).
18. S. Ranganathan, Acta Crystallogr. **21**, 197 (1966).
19. Р. З. Бахтизин, Ч.-Ж. Шье, Ч.-К. Шье, К.-Х. Ву, Т. Сакурай, УФН **174**, 383 (2004).
20. А. А. Лебедев, М. В. Заморянская, С. Ю. Давыдов, Д. А. Кириленко, С. П. Лебедев, Л. М. Сорокин, Д. Б. Шустов, М. П. Щеглов, ФТП **47**, 1554 (2013).
21. С. Ю. Давыдов, А. А. Лебедев, С. П. Лебедев, А. А. Ситникова, Л. М. Сорокин, Письма в ЖТФ **42**, 66 (2016).
22. P. Monceau, Adv. Phys. **61**, 325 (2012).
23. S. Brown and A. Zettl, in *Charge Density Wave Current Oscillations and Interference Effects, in Charge Density Waves in Solids*, ed. by L. P. Gor'kov and G. Gruner, Elsevier, Amsterdam, North-Holland (1989), v. 25, p. 223.
24. A. Prodan, A. Budkowski, S. W. Boswell, V. Marinkovic, J. C. Bennett, and J. M. Corbett, J. Phys. C: Solid State Phys. **21**, 4171 (1988).

Взаимосвязь концентрационных зависимостей спиновой восприимчивости и электронной структуры в купратах

В. И. Кузьмин⁺¹⁾, М. М. Коршунов⁺, С. В. Николаев^{+,*}, Т. М. Овчинникова[×], С. Г. Овчинников^{+,*}

⁺Институт физики им. Л. В. Киренского, Федеральный исследовательский центр
“Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”, 660036 Красноярск, Россия

^{*}Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия

[×]Институт леса им. В. Н. Сукачева, Федеральный исследовательский центр
“Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 3 июня 2024 г.

После переработки 3 июня 2024 г.

Принята к публикации 5 июня 2024 г.

В рамках кластерной теории возмущений для сильно-коррелированных электронных систем рассчитаны зависимости электронной структуры и спиновой восприимчивости от допирования. Изменение восприимчивости при увеличении допирования качественно соответствуют экспериментальным данным по резонансному неупругому рентгеновскому рассеянию и неупругому рассеянию нейтронов, а также расчетам в рамках квантового метода Монте-Карло.

DOI: 10.31857/S1234567824130081, EDN: FJAJLE

1. Введение. Развитие методов резонансного неупругого рентгеновского рассеяния (RIXS – *Resonant inelastic x-ray scattering*) позволило экспериментально получить информацию о динамической магнитной восприимчивости [1–3], что дополняет результаты неупругого рассеяния нейтронов (INS – *inelastic neutron scattering*) [4–6]. Для купратов типа $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ известна сильная зависимость электронных и магнитных свойств от допирования x . Так, с ростом x система эволюционирует от антиферромагнитного мотт-Хаббардовского диэлектрика при $x = 0$ через еще недостаточно понятое псевдощелевое состояние с ближним магнитным порядком до нормального металла с ферми-жидкостными свойствами при больших допированиях $x \propto 0.25$. Известно, что сильные электронные корреляции (СЭК) в этих материалах не позволяют описать их физические свойства в рамках стандартных одноэлектронных приближений в широкой области фазовой диаграммы. Для адекватного описания псевдощелевого состояния необходимо учесть зависящие от допирования изменения ближнего антиферромагнитного состояния. Для решения такой задачи привлекаются численно точные методы для конечных кластеров, например, квантовый метод Монте-Карло (КМК) [7–9]. В то же время и для электронной структуры, и для коллективных

возбуждений в кристалле важна и трансляционная инвариантность, которая может быть учтена с помощью таких подходов, как динамическая теория среднего поля и ее обобщения [10] и в рамках кластерных теорий [11]. В настоящей работе используется кластерная теория возмущений (СРТ – *cluster perturbation theory*) [12–14], в которой собственные состояния малого кластера находятся численно точно и используются для записи межкластерных перескоков и взаимодействий в рамках теории возмущений с помощью собственных многоэлектронных состояний кластера.

2. Метод расчета. Метод расчета электронной структуры в СРТ описан во многих работах и, де-факто, уже является стандартным [12–14]. Недавно были развиты методы расчета динамических зарядовых и спиновых корреляционных функций на основе СРТ [15], названные, соответственно, Charge-СРТ и Spin-СРТ. Там использовалась точная диагонализация кластеров 3×3 в модели Эмери. В таком кластере точно учитываются спиновые корреляции до 5-й координационной сферы. Метод расчета близок к использованным в работах [16–18] подходам. В настоящей работе метод Spin-СРТ применяется к модели Хаббарда

$$H = \sum_{i,\sigma} \left\{ (\varepsilon - \mu) n_{i,\sigma} + \frac{U}{2} n_{i,\sigma} n_{i,\bar{\sigma}} \right\} - \sum_{ij,\sigma} t_{ij} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma}, \quad (1)$$

¹⁾e-mail: kuz@iph.krasn.ru

где $c_{i,\sigma}$ обозначает оператор уничтожения электрона на узле i со спином σ , $\bar{\sigma} = -\sigma$, $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}$ – оператор количества частиц, t_{ij} – интеграл перескока, U – кулоновское отталкивание на узле.

На первом этапе локальная спиновая корреляционная функция вычисляется точно через собственные многоэлектронные состояния кластера:

$$[\hat{\chi}_c]_{i,j}(\Omega) = \sum_{\mu} \left[\frac{\langle 0 | S_i^+ | \mu \rangle \langle \mu | S_j^- | 0 \rangle}{\Omega - (E_{\mu} - E_0) + i\delta} - \frac{\langle 0 | S_j^- | \mu \rangle \langle \mu | S_i^+ | 0 \rangle}{\Omega + (E_{\mu} - E_0) + i\delta} \right], \quad (2)$$

где индексы i и j нумеруют узлы в кластере, $S_i^{+(-)}$ – оператор увеличения (уменьшения) проекции спина на узле i , $|\mu\rangle$ – собственные состояния кластера с энергиями E_{μ} , Ω – частота. Процедура получения матрицы межкластерных взаимодействий аналогична построению одночастичной СРТ на X -операторах Хаббарда [14] и приводит к двухчастичной функции Грина в приближении СРТ в виде, подобном приближению хаотических фаз (RPA – Random phase approximation):

$$\hat{\chi}_{CPT}^{-1}(\mathbf{k}, \Omega) = \hat{\chi}_c^{-1}(\Omega) - \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{k}), \quad (3)$$

где $\mathbf{k}$ – волновой вектор, матрица $\hat{\mathbf{J}}(\mathbf{k})$ получена посредством рассмотрения межкластерных взаимодействий в пределе $t - J$ модели и аналогична по структуре обычной матрице перескоков $\hat{\mathbf{T}}(\mathbf{k})$ в СРТ. Трансляционная инвариантность решетки восстанавливается при расчете функции

$$\chi(\mathbf{k}, \Omega) = \frac{1}{N_c} \sum_{i,j} e^{-i(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)\mathbf{k}} [\hat{\chi}_{CPT}]_{i,j}(\mathbf{k}, \Omega), \quad (4)$$

где $\mathbf{r}_i$ – положение узла i в кластере. В настоящей работе мы делаем расчет электронной структуры и спиновых корреляционных функций с кластером 4×4 , что позволяет точно учесть ближний магнитный порядок до 9-го соседа включительно.

3. Результаты расчета. На рисунке 1 показаны изменения с допированием электронной структуры и спиновой восприимчивости в рамках модели Хаббарда с учетом перескоков между первыми и вторыми соседями с параметрами $t = 0.56$ и $t' = -0.06$ и хаббардовским отталкиванием $U = 3.22$. Здесь и далее энергия приводится в эВ, а параметры подобраны для воспроизведения низкоэнергетической электронной структуры модели Эмери купратов [19]. Верхний ряд демонстрирует карты распределения спектральной плотности электронов на нулевой частоте, $A(\mathbf{k}, \omega = 0)$, в первой четверти зоны Бриллюэна.

Это распределение соответствует поверхности Ферми. В недопированном случае мотт-хаббардовского диэлектрика спектральная плотность везде близка к нулю. При малом допировании $x = 0.0625$ в антинодальном направлении спектральный вес мал для всех волновых векторов, в то время как в нодальном направлении имеется максимум функции распределения электронов – это и есть псевдощелевое состояние и широко обсуждаемая ферми-арка, наблюдаемая в экспериментах. Для $x = 0.125$ спектральный вес электронов на поверхности Ферми в антинодальном направлении еще заметно меньше, чем вес в нодальном направлении. Такое состояние можно назвать слабой псевдощелью с центром поверхности Ферми в точке (π, π) . Вблизи оптимального допирования $x = 0.1875$ спектральный вес практически одинаков на всей поверхности Ферми, что характерно для нормальной ферми-жидкости. Распределение спектрального веса электронов для передопированного случая с $p = 0.25$ показывает, что произошел переход Лифшица и сформировалась новая поверхность Ферми с центром в точке $\Gamma = (0, 0)$.

Проанализируем теперь спиновую восприимчивость как функцию волнового вектора и энергии (нижний ряд на рис. 1). В недопированном случае четко виден спин-волновой характер возбуждений с линейным законом дисперсии и максимумом спинового отклика в точке (π, π) . Похожая дисперсия и распределение спектрального веса получены методом КМК в работе [16]. При допировании и ослаблении антиферромагнитных корреляций в окрестности точки (π, π) максимум спиновго отклика сдвигается в область больших энергий. Аналогичное поведение также было получено методом КМК [16]. Рост энергии спиновых возбуждений при допировании обнаружен экспериментально в спектрах RIXS [18]. В этих экспериментах не обнаружено низкоэнергетических спиновых возбуждений, предсказанных в расчетах RPA [20]. Заметим, что в области больших допирований, характеризующейся дисперсией почти свободных электронов ($x = 0.1875$ и $x = 0.25$), низкоэнергетический спиновый отклик присутствует на несоизмеримых волновых векторах, что согласуется с данными INS по $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [21, 5], а также с расчетами RPA [20] и кластерного обобщения RPA – CPT-RPA [15].

4. Заключение. Изучена эволюция электронной структуры и спиновых возбуждений с допированием в кластерной теории возмущений для модели Хаббарда купратов с кластером 4×4 . Расчет динамической спиновой восприимчивости на основе кластерной теории возмущений в рамках метода Spin-CPT

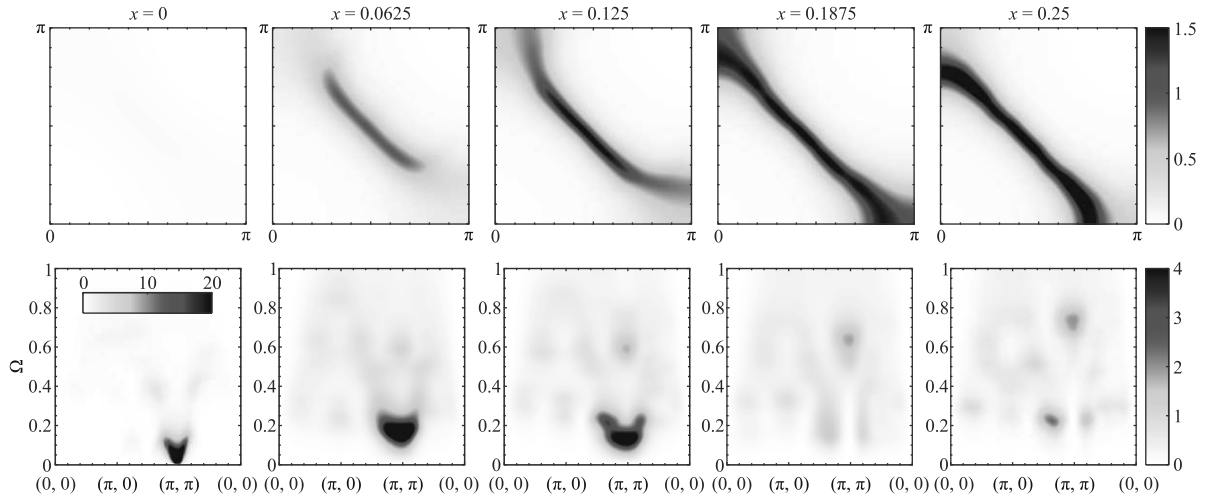


Рис. 1. (Цветной онлайн) Изменения с допированием спектральной функции на уровне Ферми, суть поверхности Ферми (верхний ряд), и карты спинового отклика $\text{Im}\chi(\mathbf{k}, \Omega)$ (нижний ряд) для пяти концентраций допирования $x = 0, 0.0625, 0.125, 0.1875, 0.25$. Отметим, что для наглядности шкала интенсивности в нижнем левом рисунке отличается от всех остальных рисунков нижнего ряда

дополнен межкластерным взаимодействием, имеющим подобную RPA структуру. Показано, как при переходе от диэлектрического состояния к псевдощелевому происходит переход от магнотонной дисперсии к парамагнитной с доминирующим вкладом спектрального веса на антиферромагнитном волновом векторе (π, π) . В то же время, при переходе от псевдощелевого состояния к слабо коррелированному металлу, спиновый отклик при низких энергиях перераспределяется на несоизмеримые вектора.

В данных расчетах не возникает несоизмеримого отклика при малых допированиях на малых энергиях, который был обнаружен в купратах $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ и $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$ [4, 5] и получен в рамках теории возмущений для сильно коррелированных электронов [22–25]. В нашей теории для электронной структуры, характерной для псевдощелевой фазы, имеют место максимум спинового отклика в точке (π, π) и возбуждения, схожие с парамагнонами. Такого рода картина спиновой восприимчивости наблюдалась в $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ [6]. Возможно, другие наборы параметров могут привести к несоизмеримому отклику типа нижней ветви “песочных часов”, что представляет интерес для дальнейших исследований.

Финансирование работы. Авторы В.И. Кузьмин, С.В. Николаев, С.Г. Овчинников выражают благодарность Российскому научному фонду, проект # 24-12-00044, за поддержку.

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

1. L. J. P. Ament, M. van Veenendaal, T. P. Devereaux, J. P. Hill, and J. van den Brink, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 705 (2011).
2. Y. Peng, G. Dellea, M. Minola, and et al. (Collaboration), *Nature Phys.* **13**, 1201 (2017).
3. H. C. Robarts, M. García-Fernández, J. Li, A. Nag, A. C. Walters, N. E. Headings, S. M. Hayden, and K.-J. Zhou, *Phys. Rev. B* **103**, 224427 (2021).
4. V. Hinkov, P. Bourges, S. Pailhes, Y. Sidis, A. Ivanov, C. D. Frost, T. G. Perring, C. T. Lin, D. P. Chen, and B. Keimer, *Nat. Phys.* **3**(11), 780 (2007).
5. O. J. Lipscombe, B. Vignolle, T. G. Perring, C. D. Frost, and S. M. Hayden, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 167002 (2009).
6. M. K. Chan, C. J. Dorow, L. Mangin-Thro, Y. Tang, Y. Ge, M. J. Veit, G. Yu, X. Zhao, A. D. Christianson, J. T. Park, Y. Sidis, P. Steffens, D. L. Abernathy, P. Bourges, and M. Greven, *Nat. Commun.* **7**(1), 10819 (2016).
7. N. Prokof'ev, B. Svistunov, and I. Tupitsyn, *JETP Lett.* **64**, 911 (1996).
8. V. Kashurnikov and A. Krasavin, *JETP* **105**, 69 (2007).
9. E. Gull, A. J. Millis, A. I. Lichtenstein, A. N. Rubtsov, M. Troyer, and P. Werner, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 349 (2011).
10. G. Rohringer, H. Hafermann, A. Toschi, A. A. Katanin, A. E. Antipov, M. I. Katsnelson, A. I. Lichtenstein, A. N. Rubtsov, and K. Held, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 025003 (2018).
11. T. Maier, M. Jarrell, T. Pruschke, and M. H. Hettler, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1027 (2005).
12. D. Sénéchal, D. Perez, and M. Pioro-Ladrière, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 522 (2000).

13. С. В. Николаев, С. Г. Овчинников, *ЖЭТФ* **141**, 135 (2011).
14. V. I. Kuz'min, M. A. Visotin, S. V. Nikolaev, and S. G. Ovchinnikov, *Phys. Rev. B* **101**, 115141 (2020).
15. V. I. Kuz'min, S. V. Nikolaev, M. M. Korshunov, and S. G. Ovchinnikov, *Materials* **16**(13), 4640 (2023).
16. Y. F. Kung, C. Bazin, K. Wohlfeld, Y. Wang, C.-C. Chen, C. J. Jia, S. Johnston, B. Moritz, F. Mila, and T. P. Devereaux, *Phys. Rev. B* **96**, 195106 (2017).
17. E. M. Pärskke, Y. Wang, B. Moritz, T. P. Devereaux, C.-C. Chen, and K. Wohlfeld, *Phys. Rev. B* **99**, 205102 (2019).
18. Y. Y. Peng, E. W. Huang, R. Fumagalli, M. Minola, Y. Wang, X. Sun, Y. Ding, K. Kummer, X. J. Zhou, N. B. Brookes, B. Moritz, L. Braicovich, T. P. Devereaux, and G. Ghiringhelli, *Phys. Rev. B* **98**, 144507 (2018).
19. M. M. Korshunov, V. A. Gavrichkov, S. G. Ovchinnikov, I. A. Nekrasov, Z. V. Pchelkina, and V. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **72**, 165104 (2005).
20. C. Monney, T. Schmitt, C. E. Matt, J. Mesot, V. N. Strocov, O. J. Lipscombe, S. M. Hayden, and J. Chang, *Phys. Rev. B* **93**, 075103 (2016).
21. S. Wakimoto, K. Yamada, J. M. Tranquada, C. D. Frost, R. J. Birgeneau, and H. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 247003 (2007).
22. M. V. Eremin, A. A. Aleev, and I. M. Eremin, *JETP Lett.* **84**, 167 (2006).
23. M. V. Eremin, A. A. Aleev, and I. M. Eremin, *JETP* **106**, 752 (2008).
24. M. V. Eremin, I. M. Shigapov, and I. M. Eremin, *Eur. Phys. J.* **85**, 1 (2012).
25. M. V. Eremin, I. M. Shigapov, and H. T. D. Thuy, *J. Phys. Condens. Matter* **25**(34), 345701 (2013).

Structural and magnetic transformations from CuCl to Cu₂Cl(OH)₃ induced by H₂O and CuCl₂

D. P. Pimentel¹⁾

Institute of Physics Gleb Wataghin (IFGW), University of Campinas (UNICAMP), 13083-859 Campinas, Sao Paulo, Brazil

Federal Institute of Maranhão, IFMA-PPGEM, Avenida Getúlio Vargas, 4, CEP 65030-005 Sao Luis, MA, Brazil

PPGCM-Materials Science and Engineering Graduate Program, UFPI-Federal University of Piaui, 64049-550 Teresina, PI, Brazil

Submitted 20 May 2024

Resubmitted 6 June 2024

Accepted 7 June 2024

DOI: 10.31857/S1234567824130093, EDN: GRSZDL

Introduction. This study investigates the oxidation dynamics of “pure” CuCl during prolonged environmental exposure using X-ray diffraction and temperature-dependent magnetization measurements. Traditionally considered diamagnetic [1, 2], CuCl reveals an antiferromagnetic transition at 4.7 K, potentially induced by the integration of water molecules into the CuCl matrix [3]. The hydration process initiates oxidation reactions that transform CuCl into Cu₂Cl(OH)₃, as confirmed by X-ray analysis and magnetization measurements, which show magnetic transitions at 6.4 and 16 K.

Experimental techniques. CuCl powder samples with 99.9 % purity were analyzed using a SQUID magnetometer (MPMS-7) and a high-precision X-ray diffractometer (D2 PHASER).

Results and discussions.

X-ray diffraction (XRD) analysis. Time-resolved X-ray diffraction analysis revealed that after 24 h of air exposure, incipient secondary phases become detectable, with their intensities increasing over time. After six weeks, the characteristic peaks of CuCl disappear, indicating a complete conversion to Cu₂Cl(OH)₃. This transformation is driven by atmospheric moisture, confirming the total phase transition of CuCl. The proposed reaction is: $6\text{CuCl} + 3\text{H}_2\text{O} + 3/2\text{O}_2 \rightarrow 2\text{Cu}_2\text{Cl}(\text{OH})_3 + 2\text{CuCl}_2$. The resulting CuCl₂ may further react with water as follows: $4\text{CuCl}_2 + 6\text{H}_2\text{O} + \text{O}_2 \rightarrow 4\text{Cu}_2\text{Cl}(\text{OH})_3 + 2\text{CuCl}_2$ [4]. Eventually yielding Cu₂Cl(OH)₃ as the predominant phase.

Magnetic analysis. Magnetization measurements under Zero-Field Cooling (ZFC) and Field Cooling (FC) conditions revealed magnetic transitions at approximately 16 and 6.4 K. Significant negative magnetiza-

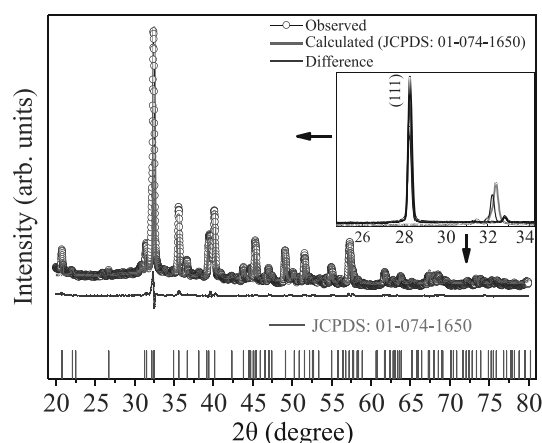


Fig. 1. (Color online) Rietveld diffractogram for CuCl after 6 weeks of exposure to the environment, showing the total transformation of CuCl into Cu₂Cl(OH)₃, as noted on the card: JCPDS: 01-074-1650. The appearance of the peak at $2\theta = 32.22^\circ$, corresponding to the (11-2) plane reflection of Cu₂Cl(OH)₃, and the decrease in intensity at $2\theta = 28.49^\circ$ corresponding to the (111) plane reflection of CuCl, insertion of the figure

tion under ZFC conditions is attributed to intense spin interactions between copper ions and intercalated water molecules. A notable increase in magnetization with prolonged environmental exposure is observed. Magnetic hysteresis curves confirm the coexistence of ferromagnetism and antiferromagnetism in oxidized CuCl. The presence of horizontal and vertical shifts in the hysteresis curves suggests an exchange bias phenomenon [5–7], indicating interactions between ferromagnetic and antiferromagnetic phases. Exposure of CuCl to the environment for eight weeks revealed signatures of antiferromagnetic transitions at 6.4 and 16 K, with divergent behavior between ZFC and FC curves. Oscillatory patterns in magnetization indicate possible spin reorientations, potentially due to the exchange bias effect [8–10].

¹⁾e-mail: dyvisonpedreira@gmail.com

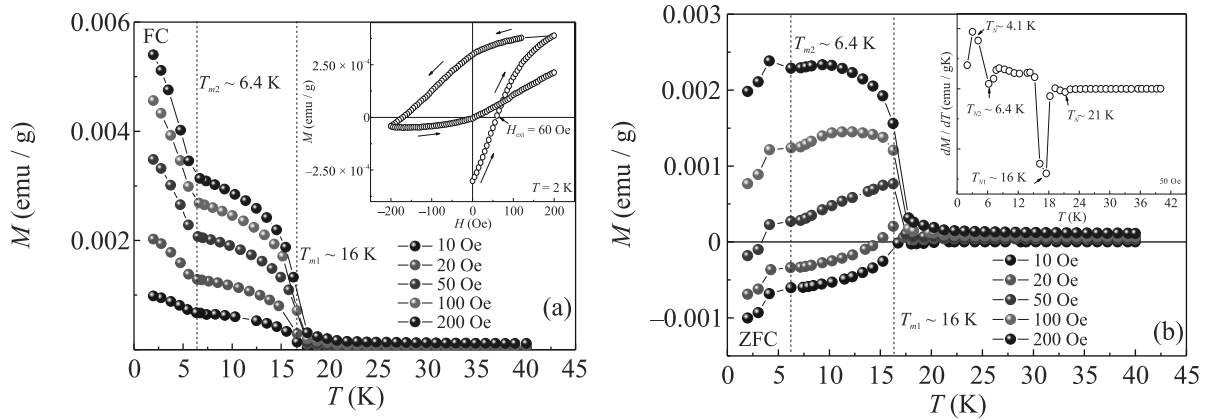


Fig. 2. (Color online) ZFC-FC magnetization of CuCl after 2 weeks of oxidation, measured under various magnetic fields. The inset of (a) displays the hysteresis loop at 2 K. (b) – The inset shows the derivative of magnetization as a function of temperature for the ZFC curve measured at 50 Oe

Conclusion. The study demonstrates that prolonged exposure of CuCl to the environment leads to its complete transformation into $\text{Cu}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ due to water absorption, resulting in complex and intriguing magnetic behaviors, including ferromagnetism and antiferromagnetism. These findings offer new perspectives for exploring the magnetic properties of $\text{Cu}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ and their potential applications in advanced materials.

Funding. This work was made possible through the generous support of the Coordination for the Improvement of Higher Education Personnel – Brazil (CAPES) – Financing Code 001 for a period of 1 year and the “Ministry of Science, Technology, and Innovations” and the “National Council of Scientific and Technological Development – CNPq” for their invaluable financial support, which sustained this research endeavor over a span of 3 years.

Conflict of interest. The author declares no conflict of interest.

This is an excerpt of the article “Structural and Magnetic Transformations from CuCl to $\text{Cu}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ Induced by H_2O and CuCl_2 ”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364024601763.

1. T.H. Geballe, R.H. Hammond, and P.M. Wu, *Physica C: Superconductivity and its Applications* **514**, 9 (2015).
2. N.B. Brandt, S.V. Kuvshinnikov, A. PRusakov, and V.M. Semenov, *Pis'ma ZhETF* **27**, 37 (1978) [*JETP Lett.* **27**, 33 (1978)].
3. M. Schmitt, O. Janson, M. Schmidt, S. Hoffmann, W. Schnelle, S.L. Drechsler, and H. Rosner, *Phys. Rev. B* **79**(24), 245119 (2009).
4. M.G. Banks, R.K. Kremer, C. Hoch, A. Simon, B. Ouladdiaf, J.M. Broto, and M.H. Whangbo, *Phys. Rev. B* **80**(2), 024404 (2009).
5. R. Rana, P. Pandey, R.P. Singh, and D.S. Rana, *Sci. Rep.* **4**(1), 4138 (2014).
6. M. Gruyters and D. Schmitz, *Phys. Rev. Lett.* **100**(7), 077205 (2008).
7. H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A.T. Young, M. Carey, and J. Stöhr, *Phys. Rev. Lett.* **91**(1), 017203 (2003).
8. V.K. Lakhani, B. Zhao, L. Wang, U.N. Trivedi, and K.B. Modi, *J. Alloys Compd.* **509**(14), 4861 (2011).
9. S. Seki, T. Kurumaji, S. Ishiwata, H. Matsui, H. Murakawa, Y. Tokunaga, Y. Kaneko, T. Hasegawa, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **82**(6), 064424 (2010).
10. A. Moskvina, E. Vasinovich, and A. Shadrin, *Magnetochemistry* **8**(4), 45 (2022).

Особенности отклика майорановских квазичастиц в сверхпроводящих проволоках (Миниобзор)

С. В. Аксенов¹⁾

Институт физики им. Л. В. Киренского, Федеральный исследовательский центр
“Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 12 апреля 2024 г.

После переработки 6 июня 2024 г.

Принята к публикации 8 июня 2024 г.

В прошедшее десятилетие наблюдался рост интереса к гибридным квазиодномерным системам, в которых полупроводниковая внутренняя часть покрыта сверхпроводником (так называемая core/shell структура). В качестве полупроводников выбираются материалы с большой величиной спин-орбитальной связи и g -фактором (InAs, InSb). Эффект близости позволяет рассматривать такие объекты как сверхпроводящие проволоки, в которых было предсказано существование майорановских состояний. В обзоре кратко приводится современное состояние экспериментальных исследований, нацеленных на детектирование майорановских квазичастичных возбуждений в сверхпроводящих проволоках. Кроме того, обсуждаются перспективы использования интерференционной геометрии устройств, содержащих такие проволоки. В частности, представлены результаты теоретического анализа когерентного транспорта в пространственно неоднородной 1D системе нормальный металл/сверхпроводник/нормальный металл, где нормальные проволоки играют роль рукавов интерференционного устройства, взаимодействующих с нормальным контактом. Обнаружена возможность отличить отклик разных видов низкоэнергетических возбуждений устройства, а именно: майорановских от андреевских.

DOI: 10.31857/S123456782413010X, EDN: GUITKG

1. Введение. В работе [1] были изучены свойства основного состояния и низкоэнергетических возбуждений цепочки бесспиновых фермионов из N узлов, которая характеризуется параметрами перескока и сверхпроводящего спаривания p -типа между ближайшими соседями, $t > 0$ и Δ , соответственно, а также химическим потенциалом μ . Оказывается, что при $|\mu| < 2t$ в открытой системе реализуется боголюбовское возбуждение, энергия которого экспоненциально спадает с ростом длины цепочки, т.е. $\varepsilon_1 \sim e^{-L/\xi}$, где $\xi \sim \Delta^{-1}$ – длина когерентности, $L = Na$ – длина цепочки (далее $a = 1$). Другими словами, при $L \gg \xi$ возникает краевое состояние с нулевой энергией. При этом объемный спектр этой системы, которую в литературе часто называют проволокой или цепочкой Китаева, с периодическими граничными условиями является щелевым,

$$\varepsilon_k = \sqrt{(2t \cos k + \mu)^2 + 4\Delta^2 \sin^2 k}. \quad (1)$$

Из вида спектра (1) следует, что при $\mu = \pm 2t$ щель закрывается, если волновой вектор равен $k = \pi, 0$. Таким образом, при непрерывном изменении

параметров появление краевого состояния в цепочке с открытыми граничными условиями сопровождается квантовым фазовым переходом в системе с периодическими граничными условиями.

Особенность полученного краевого состояния становится очевидной, если перейти от описания в терминах фермиевских операторов вторичного квантования на j -м узле, $c_j, c_j^\dagger$, к операторам майорановского типа, $\gamma_{Aj} = c_j + c_j^\dagger, \gamma_{Bj} = i(c_j^\dagger - c_j), \gamma_{A,Bj} = \gamma_{A,Bj}^\dagger$. Аналогично, в пространстве собственных состояний гамильтониана Боголюбова–де Жена, оператор любого боголюбовского возбуждения α_n ($n = 1, \dots, N$) можно представить в виде суперпозиции операторов майорановских мод, $\alpha_n = (b_{1n} + ib_{2n})/2, b_{1,2n} = b_{1,2n}^\dagger$. В результате, нетрудно показать, что для любого возбуждения справедлива следующая связь:

$$b_{1n} = \sum_j w_{jn} \gamma_{Aj}, \quad b_{2n} = \sum_j z_{jn} \gamma_{Bj}, \quad (2)$$

где коэффициенты $w_{jn} = u_{jn} + v_{jn}, z_{jn} = u_{jn} - v_{jn}$ можно интерпретировать как значения волновых функций майорановских мод n -го возбуждения на

¹⁾e-mail: asv86@iph.krasn.ru

j -м узле. Они выражаются через uv -коэффициенты Боголюбова, т.е. $c_j = \sum_n (u_{jn}\alpha_n + v_{jn}\alpha_n^\dagger)$.

Тогда, если одноузловая энергия, отсчитываемая от μ , равна нулю и $|\Delta| = t$, то наименьшее по энергии возбуждение имеет в точности нулевую энергию $\varepsilon_1 = 0$, и $b_{1,1} \equiv b_1 = 2u_{1,1}\gamma_{A1}$, $b_{2,1} \equiv b_2 = 2u_{N,1}\gamma_{BN}$, $u_{1,1} = u_{N,1}$. При отклонении от особой точки, $|\Delta| = t$, $\mu = 0$, волновые функции майорановских мод гибридизуются, что, в общем случае, приводит к ненулевой энергии возбуждения ε_1 , которая, как уже указывалось, экспоненциально спадает с ростом N и осциллирует как функция энергетических параметров системы. В литературе состояние, энергия которого близка к нулю, а образующие его майорановские моды локализованы на противоположных концах, называют майорановским. При этом стоит подчеркнуть, что майорановское состояние (МС) есть частный случай андреевского состояния (АС) – суперпозиции электронной и дырочной волн с энергией внутри щели – возникающего в системах с пространственно неоднородным потенциалом сверхпроводящего спаривания [2].

Про цепочку с МС говорят как о системе в фазе топологической сверхпроводимости, имея в виду нетривиальную топологию пространства блоховских волновых функций, $\psi_n(k)$. Действительно, если вычислить фазу Бэрри, которая набегаёт при движении по зоне Бриллюэна, то [3, 4]

$$\gamma = \int_{-\pi}^{\pi} dk \sum_n \left(\psi_n^*(k), \frac{\psi_n(k)}{dk} \right) = \begin{cases} \pi \cdot 0, & |\mu| > 2t; \\ \pi \cdot 1, & |\mu| < 2t. \end{cases} \quad (3)$$

Фаза γ связана с числом Майорана, M – топологическим инвариантом, предложенным в работе [1] – как $M = \exp(i\gamma)$.

Внимание к квазичастицам майорановского типа объясняется не только фундаментальным интересом к их экзотическим свойствам. Существует ряд причин, позволяющих надеяться на использование майорановских мод в квантовых вычислениях. Наличие возбуждения с нулевой энергией говорит о двукратном вырождении основного состояния, обладающего неопределённой четностью. Как следствие, можно рассмотреть эволюцию волновой функции кубита в базисе двух таких состояний, $|0\rangle$ и $\alpha_0^\dagger|0\rangle$ [5, 6]. В работе [7] было показано, что меняя местами майорановские моды $b_{1,2}$ в Т-образной проволоке без закрытия щели объёмного спектра (т.е. выполняя операцию брейдинга), можно добиться изменения волновой функции кубита, которая не сводится к умножению на глобальный фазовый множитель. Последнее – следствие того, что майорановские фермионы

являются неабелевыми анионами [8]. Другой важной с прикладной точки зрения особенностью МС является его нелокальный характер. В результате, имеет место так называемая топологическая защищённость МС по отношению к локальным возмущениям [9, 10], в том числе и к процессам декогеренции, которые выступают очевидным камнем преткновения для создания нетопологических кубитов.

В работах [11, 12] была предложена более реалистичная 1D модель, описывающая полупроводниковую проволоку со спин-орбитальным взаимодействием Рашбы на поверхности s -волнового сверхпроводника в магнитном поле. Поскольку за счёт эффекта близости сверхпроводящее спаривание, характеризующееся величиной щели Δ , наводится в самой проволоке, в дальнейшем будем называть ее сверхпроводящей проволокой. Нетривиальная фаза в такой системе реализуется, если зеемановская энергия, h , выше порогового значения, h_c , а именно, в континуальном приближении имеем: $h > \sqrt{\mu^2 + \Delta^2}$.

При $\Delta = 0$ спин-орбитальное взаимодействие интенсивности α и зеемановское расщепление приводят к образованию двух зон геликоидальных состояний, разделённых щелью h при $k = 0$ [13]. Тогда, проецируя гамильтониан исходной модели на подпространство состояний нижней зоны при $\Delta \neq 0$ в режиме h , $|\mu| \gg t, \alpha, \Delta$ (здесь t – параметр перескока в приближении сильной связи), получим гамильтониан модели Китаева, где интенсивность спаривания фермионов $\sim \alpha\Delta/h$ [11, 14]. Таким образом, если при $h < h_c \approx |\mu|$ в сверхпроводящей проволоке доминирует s -тип спаривания, то при $h \gtrsim |\mu|$ реализуется эффективный p -волновой сверхпроводник [15].

Через несколько лет после отмеченных теоретических предложений появились первые экспериментальные работы, где методом локальной туннельной спектроскопии изучались транспортные свойства гибридной проволоки полупроводник/сверхпроводник [16–18]. В качестве полупроводниковой проволоки зачастую выбирают InAs или InSb, которые обладают большими значениями параметра Рашба, g -фактора и малой эффективной массой, $\alpha_R = 0.2 - 0.8 \text{ эВ} \cdot \text{\AA}$, $g = 8 - 15$, $m^* = 0.023m_e$ или $\alpha_R = 0.2 - 1 \text{ эВ} \cdot \text{\AA}$, $g = 40 - 50$, $m^* = 0.014m_e$, соответственно [19]. В первых работах полупроводниковая проволока располагалась на поверхности массивного сверхпроводника Al или NbTiN. Впоследствии была освоена технология эпитаксиального наращивания слоя сверхпроводящего материала на поверхности полупроводникового стержня (т.н. core/shell структура). Получаемые величины наведённой за счёт эффекта близости щели в сердцевине равны $\Delta = 0.2 - 1 \text{ мэВ}$.

Соответственно, структуры исследуются при температурах $T \sim 10 - 100$ мК. Характерные магнитные поля, при которых выполняются эксперименты, $B \sim 1$ Тл. Принимая во внимание негативное влияние магнитного поля на сверхпроводящее спаривание, в последние годы ряд экспериментов был осуществлен с гибридными проволоками, в которых, помимо сверхпроводника, напыляется слой магнитного изолятора (EuS) [20–22].

Стоит отметить, что за прошедшие примерно десять лет после старта экспериментов был достигнут существенный технологический прогресс в областях выращивания гибридных проволок, улучшения параметров интерфейса полупроводник/сверхпроводник и т.д. Все это привело к наблюдению теоретически предсказанных эффектов, связанных с транспортом в МС, а именно: возникновение квантованного пика дифференциальной проводимости (кондактанса) при нулевом напряжении [23, 24] и его устойчивость при изменении высоты туннельного барьера на границе контакта нормальный металл/сверхпроводящая проволока, зеэмановской энергии, химического потенциала и в присутствии беспорядка [25].

Известно, что электроны с энергией внутри щели сверхпроводника, налетая на него из области нормального металла, испытывают локальное андреевское отражение на интерфейсе [26]. Тогда, если при этом уровень Ферми находится в центре щели, а на границе сверхпроводника локализована майорановская мода, то процессы андреевского отражения приобретают резонансный характер независимо от величины интеграла туннелирования. В результате кондактанс при нулевом напряжении смещения имеет максимум, высота которого равна $2G_0$, где $G_0 = e^2/h$ – квант проводимости (в данном конкретном случае h – постоянная Планка). Заметим, что множитель 2 здесь указывает на присутствие электронных и дырочных степеней свободы, а не на вырождение по спине [23, 27].

Переход в топологически нетривиальную фазу сопровождается закрытием и переоткрытием щели объемного спектра сверхпроводящей проволоки. В работе [28] было показано, что этот эффект можно также наблюдать в транспорте, измеряя нелокальный сигнал в трехконтактной схеме нормальный металл/сверхпроводящая проволока/нормальный металл. При этом предполагается, что контакт по середине создается прямым (не через конденсатор) заземлением массивного сверхпроводника, с которым взаимодействует проволока длиной L . Если $L \gg \xi$, то транспорт между нормальными контактами квазичастиц с энергиями $E < \Delta_{\text{eff}}$, где Δ_{eff} – щель

объемного спектра, будет подавлен в виду затухающего характера их волновых функций. Подчеркнем, что в данном случае учитывается, что щель Δ_{eff} носит некоторый эффективный характер, т.е. определяется не только величиной Δ , но и h , а также α [29]. В свою очередь, при $\Delta_{\text{eff}} < E < \Delta_0$, где Δ_0 – щель родительского сверхпроводника, изменение тока в правом контакте I_2 , обусловленное изменением напряжения в левом V_1 , т.е. нелокальный кондактанс $G_{21} = dI_2/dV_1$, будет отлично от нуля за счет обычного переноса электронов или транспорта дырок (последний вызван процессами перекрестного андреевского отражения). Учитывая это, единственный сценарий, позволяющий рассчитывать на появление ненулевого сигнала при $V = 0$ – это закрытие щели объемного спектра при $h = h_c$ [11, 12, 30]. Обнаружено, что в этом случае $G_{21}(V) = -G_{21}(-V)$, т.е. вблизи топологического фазового перехода наблюдается выпрямление тока $I \sim V^2$. О величине Δ_{eff} при $h > h_c$, которую можно оценить, все также измеряя нелокальный кондактанс, говорят как о топологической щели.

Основываясь на описанных локальных и нелокальных измерениях, в недавней масштабной работе [31] была предпринята попытка построения диаграммы топологических фаз сверхпроводящей проволоки. Исследуемый образец представлял собой квазиодномерный канал электронного газа, созданный действием затворных электродов на 2DEG в квантовой яме InAs. Над каналом была эпитаксиально выращена полоска Al. Магнитное поле приложено вдоль канала. Измерения показали, что в пространстве параметров напряжение на затворе, управляющее концентрацией электронов в канале, V_g – напряженность магнитного поля B , имеются области, на границе которых наблюдается бесщелевой объемный спектр, а внутри них и снаружи – в объемном спектре присутствует щель. В свою очередь, пики кондактанса левого и правого контактов при нулевом напряжении одновременно реализуются только внутри островков. Причем, данные резонансы демонстрируют устойчивость при варьировании высоты туннельных барьеров, концентрации электронов и магнитного поля. Однако, размеры этих областей весьма малы ($V_g \sim 1$ мВ, $B \sim 100$ мТл, т.е. $eV_g \sim 1$ мэВ, $h \sim 10$ мкэВ), так же, как и величины топологической щели $\Delta_{\text{eff}} = 20 - 60$ мкэВ, которая на порядок меньше рассчитанных теоретических значений.

Важный фактор, существенно затрудняющий интерпретацию результатов [31] и других работ в этой области [32, 33], – беспорядок, уровень которого в исследуемых гибридных образцах до сих пор весь-

ма велик [34–36]. Здесь следует разделять несколько сценариев [37]. Первый – неоднородность электростатического потенциала, которая связана с наличием набора затворных электродов, необходимых для регулирования как концентрации носителей в сверхпроводящей проволоке, так и высоты туннельных барьеров; заряженных примесей в окружающей среде; а также барьеров Шоттки [38]. В результате химический потенциал можно рассматривать в виде гладкоменяющейся функции координаты как на границе сверхпроводящей проволоки с нормальным контактом (здесь может образовываться область квантовой точки) [16, 32, 39, 40], так и в объеме проволоки [41]. В этом случае, в тривиальной фазе могут возникать АС, которые при определенных параметрах имеют нулевую энергию [2, 42, 43]. Как следствие, кондактанс контакта нормальный металл/сверхпроводящая проволока при нулевом напряжении также равен $2G_0$. В зависимости от характеристик гладкой неоднородности майорановские волновые функции, образующие такие АС, могут также быть частично разнесены в пространстве (о таких состояниях говорят еще как о квази-МС). Таким образом, их локальный линейный отклик, т.е. $G_{11} = \frac{dI}{dV_1}|_{V_1 \rightarrow 0}$, и его свойства будут во многом повторять, наблюдаемые для МС [44–46].

Второй сценарий – беспорядок и множественные примеси в полупроводниковом стержне и на границе полупроводник/сверхпроводящая оболочка, которые суммарно можно интерпретировать как флуктуации электростатического потенциала в сверхпроводящей проволоке. Поскольку в системе нарушена симметрия относительно обращения времени ($\hbar \neq 0$) и, как уже было сказано, в топологически нетривиальной фазе доминирует p -тип спаривания, то, в отличие от БКШ сверхпроводимости [47], беспорядок может иметь существенное значение. В системах достаточно большого размера в силу своей пространственной нелокальности и наличия щели в спектре возбуждений МС обладают иммунитетом к влиянию слабого беспорядка (так называемая топологическая защищенность) [48, 49]. Сильный беспорядок подавляет эту щель и приводит к переходу в топологически тривиальную фазу [50–52]. По мере его роста уменьшение топологической щели будет приводить к значительной гибридизации майорановских мод и снова к появлению АС, энергия которых может случайным образом обращаться к нулю. Как и в случае первого сценария, сильный беспорядок способен индуцировать подобные АС, а также АС с частично разнесенными майорановскими модами, и в тривиальной фазе [34, 53]. Показано, что отклик данных

возбуждений в значительной степени имитирует под отклик истинного МС [54–56]. Интересно, что АС с нулевой энергией могут возникать и при $\hbar = 0$, что можно использовать в экспериментах для оценки степени беспорядка в системе [37, 57].

Важно отметить, что для сглаживания негативного влияния беспорядка и достижения баллистического режима транспорта в современных экспериментах исследуются достаточно короткие образцы, длина которых ~ 1 мкм [31, 36]. В результате, АС, возникающие в рамках обоих сценариев, могут иметь ненулевую плотность вероятности вблизи противоположных границ гибридной структуры [57]. Как следствие, скоррелированное поведение локальных кондактансов G_{11} и G_{22} , которое свойственно резонансному транспорту через МС, может наблюдаться и в случае тривиальных квазичастиц [37, 46].

Кроме ставшей уже очевидной необходимости уменьшения степени беспорядка в гибридных структурах InAs/Al, InSb/Al, другим возможным решением этой проблемы является поиск альтернативных материалов. В последнее время значительно возрос интерес к теллуриду свинца (PbTe) [58]. Обладая как и InAs, InSb большими спин-орбитальной связью и g -фактором [59, 60], проволоки PbTe выделяются чрезвычайно высокой диэлектрической постоянной: $\sim 10^3$ [61] против $\sim 10^1$ у InAs, InSb [62]. Следовательно, в этом полупроводниковом материале стоит ожидать эффективной экранировки заряженных примесей и меньшего беспорядка. Чтобы уберечь проволоки PbTe от образования оксидных слоев на их поверхности (что является другим источником беспорядка), их дополнительно покрывают пленкой CdTe, имеющим согласованную с PbTe решетку (lattice matched). По этой же причине проволоки PbTe выращивают именно на подложках CdTe [63, 64]. Дальнейшее развитие метода селективного выращивания проволок (selective-area growth) с использованием молекулярно-лучевой эпитаксии позволило улучшить качество интерфейсов [65]. В итоге стало возможным наблюдать баллистический транспорт в отсутствии магнитного поля и, как следствие, квантованные ступеньки кондактанса [66, 67]. При этом длина транспортного канала может достигать 1.5 мкм, что от 1.5 до 10 раз больше, чем у InAs и InSb [68, 69].

Расчеты показали, что гибридные сверхпроводящие структуры PbTe/Pb перспективны и обладают рядом преимуществ [59]. Свинец имеет большую, чем алюминий, сверхпроводящую щель и, соответственно, в экспериментах можно использовать более высокие магнитные поля. Сверхпроводящая щель

в PbTe/Pb, сравнимая по величине с таковыми в InAs/Al и InSb/Al, может быть индуцирована даже при слабой связи между Pb и PbTe, что одновременно уменьшает неблагоприятные эффекты перенормировки и наведенного сверхпроводником в полупроводнике беспорядка. Как отмечалось выше, проволоку PbTe можно для начала покрыть буферным слоем CdTe и только потом наращивать пленку Pb или использовать в качестве слоя, покрывающего PbTe/Pb. Это позволяет решать проблемы несоответствия решеток PbTe и Pb и образования оксидных слоев как значимые источники беспорядка. Полученные недавно экспериментальные данные зафиксировали реализацию твердой (т.е. без паразитных квазичастичных состояний внутри) наведенной щели $\Delta \sim 1$ мэВ [70], что примерно в 5 раз превышает известные результаты для Al [19, 71].

Интерес к изучению интерференционных структур, содержащих сверхпроводящие проволоки, во многом объясняется двумя причинами. Во-первых, описанная выше проблема различия отклика МС от АС (обусловленных разными механизмами) заставляет обращаться к более сложным транспортным схемам [72–74]. Во-вторых, в ряде теоретических работ было показано, что брейдинг майорановских мод, который в случае топологических кубитов необходим для реализации квантово-вентильных операций, именно в системах с несколькими путями возможен на основе измерений и эффекта квантовой телепортации (т.е. без какого-либо физического перемещения мод) [75–77].

Эффект Ааронова–Бома, который заключается в осцилляциях кондактанса как функции магнитного поля, направленного перпендикулярно плоскости интерференционной структуры, является одним из критериев реализации режима когерентного транспорта [78, 79]. Такое поведение дифференциальной проводимости уже было продемонстрировано на практике для устройств на основе InSb [80] и PbTe [64]. В эксперименте [81] была предпринята попытка реализовать МС в одном из рукавов интерферометра. Однако, наблюдавшиеся осцилляции Ааронова–Бома не удалось связать именно с транспортом через разнесенные майорановские моды и отбросить возможный вклад объемных АС (т.е. боголюбовские возбуждения с сильно перекрывающимися майорановскими модами).

Ниже мы покажем, как можно решить проблему различия отклика истинного МС от АС нескольких видов: неоднородного и объемного, – анализируя особенности низкоэнергетического транспорта в П-образном интерференционном устройстве [74, 82].

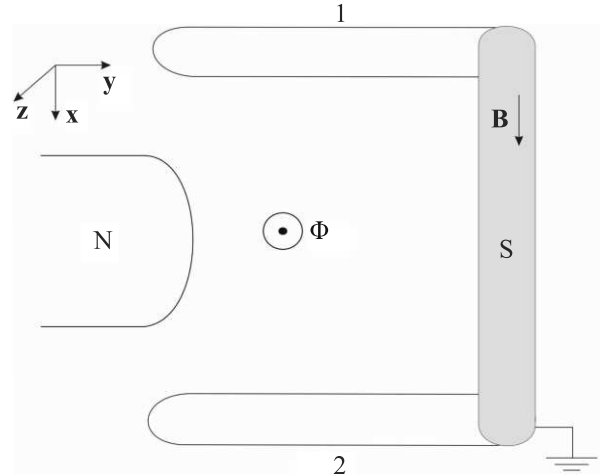


Рис. 1. (Цветной онлайн) П-образная структура (интерференционное устройство), взаимодействующая с нормальным контактом N. Устройство представляет собой проволоку со спин-орбитальным взаимодействием, в центральном сегменте (отмеченном цветом) которой за счет эффектов близости наведено сверхпроводящее спаривание и зеемановское расщепление. При туннелировании носителей из рукавов 1 и 2 в контакт возникает фаза Ааронова–Бома за счет магнитного потока Φ

2. Транспортные свойства неоднородного интерферометра с топологическим сверхпроводником.

Рассмотрим стационарный ток в системе, изображенной на рис. 1, гамильтониан которой имеем вид:

$$\hat{H} = \hat{H}_C + \hat{H}_D + \hat{H}_T. \quad (4)$$

Здесь первый член $\hat{H}_C$ описывает однозонный парамагнитный контакт,

$$\hat{H}_C = \sum_{k\sigma} \left(\xi_k - \frac{eV}{2} - \mu \right) c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma}, \quad (5)$$

где $c_{k\sigma}$ – оператор уничтожения электрона с волновым вектором k , спином σ и энергией ξ_k ; μ – химический потенциал; V – напряжение смещения.

При описании следующих слагаемых гамильтониана будем пользоваться узелковым представлением. Заметим, однако, что поскольку характерные расстояния, на которых изменяются волновые функции майорановских мод в сверхпроводящих проволоках, много больше межатомных расстояний, то для анализа спектральных и транспортных свойств подобных систем может успешно применяться и континуальный подход [30, 83, 84]. Второе слагаемое представляет собой гамильтониан П-образного неоднородного интерференционного устройства, включающего сверхпроводящий сегмент S между двумя нормальными рукавами 1 и 2. В приближении сильной

связи и представлении операторов Намбу на узле j , $\Psi_j = \left(a_{j\uparrow} a_{j\downarrow}^+ a_{j\downarrow} a_{j\uparrow}^+ \right)^T$ гамильтониан структуры есть

$$\hat{H}_D = \sum_j \Psi_j^+ [(V_j - \mu)\hat{\tau}_z - h_j\hat{\sigma}_x + \Delta_j\hat{\tau}_x] \Psi_j \quad (6)$$

$$- \frac{1}{2} [\Psi_j^+ (t - i\alpha_j (\hat{\sigma}_x \cos \varphi_j + \hat{\sigma}_y \sin \varphi_j)) \hat{\tau}_z \Psi_{j+1} + \text{H.c.}] .$$

В гамильтониан (6) входят зависящие от координаты электростатический потенциал, V_j ; зеемановское расщепление, h_j ; потенциал s -волнового сверхпроводящего спаривания, Δ_j ; параметр спин-орбитальной связи, α_j ; а также угол θ_j , на который поворачивается поле Рашбы при перемещении из одного сегмента в другой; t – параметр перескока между узлами устройства; $\hat{\sigma}_i$, $\hat{\tau}_i$ – матрицы Паули, действующие в спиновом и электрон-дырочном пространствах, соответственно ($i = x, y, z$). Конкретная форма пространственных зависимостей имеет следующий вид:

$$V_j = \frac{e_1 + e_2}{2} + \frac{e_S - e_1}{2} \tanh \left(\frac{j - N_1}{\sigma_1} \right) \quad (7)$$

$$- \frac{e_S - e_2}{2} \tanh \left(\frac{j - N_1 - N_S}{\sigma_2} \right),$$

$$\Delta_j = \frac{\Delta}{2} \left[\tanh \left(\frac{j - N_1}{\sigma_1} \right) - \tanh \left(\frac{j - N_1 - N_S}{\sigma_2} \right) \right], \quad (8)$$

$$h_j = h\Delta\theta_{S,j}, \quad \varphi_j = \frac{\pi}{2}\Delta\theta_{S,j}, \quad \alpha_j = \sum_{n=1,2,S} \alpha_n \Delta\theta_{n,j}, \quad (9)$$

где $e_{1,2,S}$ – одноузельные энергии электрона в трех подсистемах (индексы 1, 2 и S указаны на рис. 1); N_1 , N_S – число узлов в нормальных рукавах и сверхпроводящем сегменте, соответственно; $\sigma_{1,2}$ – параметры, определяющие степень плавности изменения гладких профилей на N1/S и S/N2 интерфейсах, соответственно; h – энергия Зеемана; Δ – величина сверхпроводящей щели; $\alpha_{1,2,S}$ – константы спин-орбитальной связи в рукавах и сверхпроводящей проволоке. В формуле (9) использованы разности функций Хевисайда:

$$\Delta\theta_{1,j} = \theta(j-1) - \theta(j-N_1-1),$$

$$\Delta\theta_{2,j} = \theta(j-N_1-N_S-1) - \theta(j-2N_1-N_S-1),$$

$$\Delta\theta_{S,j} = \theta(j-N_1-1) - \theta(j-N_1-N_S-1).$$

Заметим, что локальный характер обменного поля, действующего только в области сверхпроводящей проволоки, на практике может быть достигнут

за счет эффекта близости напылением пленки магнитного изолятора, дополнительно к слою сверхпроводника, на полупроводниковый кор [20–22]. Диапазон энергий Зеемана, при которых сверхпроводящая проволока находится в нетривиальной фазе, определяется неравенством $h_{c1} < h < h_{c2}$, где $h_{c1,2} = \sqrt{\Delta^2 + (e_S - \mu \mp t)^2}$. При этом волновые функции майорановских мод, составляющие МС, способны проникать в нормальные рукава, становясь доступными для интерференционных измерений [30, 85, 86].

Последнее слагаемое в гамильтониане описывает процессы туннелирования между нормальным контактом и рукавами устройства,

$$\hat{H}_T = -\Psi_k^+ \hat{\tau}_z \left(\hat{t}_1 \hat{\Phi} \Psi_1 + \hat{t}_2 \hat{\Phi}^+ \Psi_L \right) + \text{H.c.}, \quad (10)$$

где элементами матрицы

$$\hat{t}_{1(2)} = \text{diag} \left(t_{1(2)\uparrow}, t_{1(2)\downarrow}^*, t_{1(2)\downarrow}, t_{1(2)\uparrow}^* \right)$$

являются параметры туннелирования в рукава $t_{1,2\sigma}$; а матрица

$$\hat{\Phi} = \text{diag} \left(e^{i\frac{\phi}{2}}, e^{-i\frac{\phi}{2}}, e^{i\frac{\phi}{2}}, e^{-i\frac{\phi}{2}} \right)$$

определяется фазой Ааронова–Бома $\phi = 2\pi\Phi/\Phi_0$, возникающий при туннелировании за счет магнитного потока Φ сквозь плоскость устройства; $\Phi_0 = h/e$ – нормальный квант потока.

В дальнейшем, при численных расчетах предполагается, что $t = 1$, $\mu = 0$, $e_1 = -0.1$, $e_2 = -0.5$, $e_S = 1.4$, $\alpha_1 = -\alpha_2 = 0.3$, $\alpha_S = 0.2$, $\Delta = 0.3$, $\sigma_1 = 3$, $\sigma_2 = 4$, $N_1 = 50$, $N_S = 60$.

Наличие гладкоменяющихся в областях интерфейсов электростатического потенциала и потенциала сверхпроводящего спаривания делает возможным реализацию различных низкоэнергетических состояний, которые отличаются поведением волновых функций майорановских мод в пространстве. Пространственные распределения соответствующих плотностей вероятности, $|w_{j,1}|^2$, $|z_{j,1}|^2$, показаны на рис. 2. Область $51 < j \leq 110$ отвечает сверхпроводящей проволоке, а левый и правый сегменты (где $1 \leq j \leq 50$ и $110 < j \leq 160$) относятся к рукавам 1 и 2, соответственно.

Как известно, у боголюбовского возбуждения майорановского типа волновые функции майорановских мод, которым отвечают операторы $b_{1,1}$ и $b_{2,1}$ (см. формулу (2)), локализованы на противоположных концах сверхпроводящей проволоки. В нашем случае, как показано на рис. 2b, эти моды (плотности вероятности изображены сплошной и штриховой кривыми) вытекают в смежные рукава, т.е.

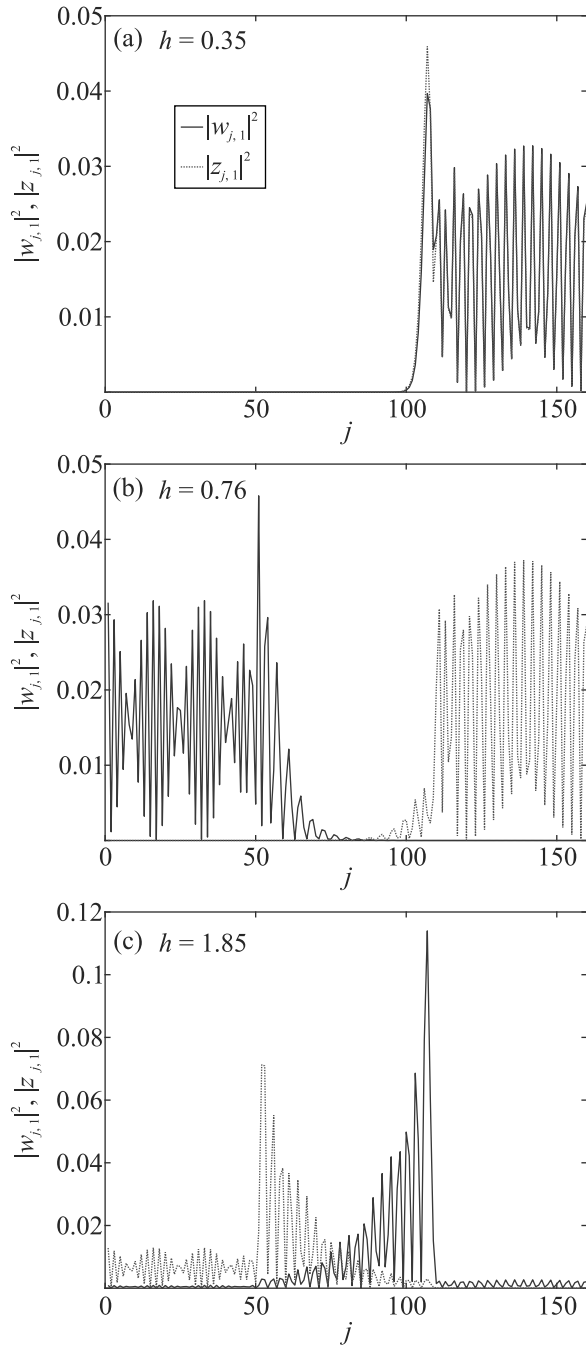


Рис. 2. (Цветной онлайн) Пространственное распределение плотностей вероятности майорановских волновых функций $|w_{j,1}|^2$, $|z_{j,1}|^2$ для трех видов низкоэнергетических возбуждений интерференционного устройства. (a) – неоднородное АС; (b) – МС; (c) – объемное АС. Область $51 < j \leq 110$ отвечает сверхпроводящей проволоке

$|w_{j<51,1}|^2 \neq 0$ и $|z_{j>110,1}|^2 \neq 0$. Существенно, что в рассматриваемой неоднородной системе естественным образом могут возникать возбуждения с око-

лонулевой энергией, которые, однако, не являются майорановскими (в более простом случае такая возможность демонстрируется, например, в работе [38]). Волновые функции майорановских мод, которые образуют подобные состояния, могут значительно перекрываться и быть локализованными в ограниченной области пространства. Пример такого неоднородного АС изображен на рис. 2а. Видно, что в данном случае обе майорановские моды находятся в рукаве 2 ($j > 110$) и смежной области сверхпроводника. В работе мы также выделяем случай возбуждения с близкой к нулю энергией, волновые функции майорановских мод которого сильно перекрываются и имеют ненулевую плотность вероятности во всем объеме устройства. Такая ситуация возникает, например, при больших величинах зеемановского расщепления для сверхпроводящей проволоки, формально находящейся в топологически нетривиальной фазе ($h \lesssim h_{c2}$) [87]. Пример объемного АС приведен на рис. 2с. Заметим, что несмотря на визуальный эффект, величины $|z_{j,1}|^2$ (штриховая кривая) и $|w_{j,1}|^2$ (сплошная кривая) все же отличны от нуля в рукавах 2 ($j > 110$) и 1 ($j < 51$), соответственно. Последнее имеет принципиальное значение для интерференционного транспорта.

Транспортные свойства неоднородного сверхпроводящего устройства, моделируемого микроскопическим гамильтонианом (6), могут быть проанализированы на основе метода неравновесных функций Грина [88, 89] в приближении сильной связи (см. детали подхода для сверхпроводящей системы, например, в [90, 91]). На рисунке 3 приведены зависи-

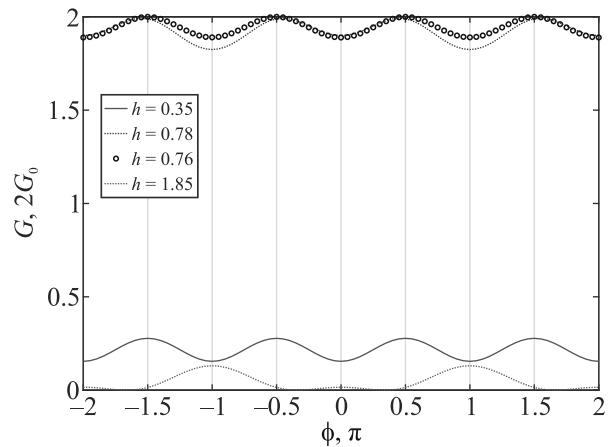


Рис. 3. (Цветной онлайн) Эффект Ааронова–Бома $G(\phi)$ при различных величинах зеемановского расщепления h

мости кондактанса $G = dI/dV$ от фазы Ааронова–Бома ϕ в режиме линейного отклика и низких тем-

ператур. При $h < h_{c1} = 0.5$ осцилляции дифференциальной проводимости показаны сплошной кривой. Их реализация объясняется присутствием по одному низкоэнергетическому неоднородному АС в противоположных рукавах (пример одного из таких АС показан на рис. 2а). Для наблюдения эффекта Ааронова–Бома в данном случае энергии обоих неоднородных АС, $\varepsilon_{1,2}$, должны быть меньше или порядка спин-зависящих параметров уширения, определяющих время жизни каждой из четырех майорановских мод (по две для каждого неоднородного АС), $\Gamma_{i\sigma}$ ($i = 1, \dots, 4$). Более того, исходя из аналитических результатов работы [74], полученных для эффективного гамильтониана двухуровневой системы (модель двойной андреевской квантовой точки), зависимость $G(\phi)$ имеет место, только если все четыре майорановские моды взаимодействуют с контактом. Из графика рис. 3 видно, что период осцилляций равен π , а экстремумы находятся в точках $\phi = \pi n/2$, $n \in \mathbb{Z}$.

После реализации топологического фазового перехода ($h > h_{c1}$) и непосредственно вблизи него энергия МС $\varepsilon_1 = 0$. Далее, поскольку в нетривиальной фазе майорановская волновая функция демонстрирует осцилляции, затухающие в объеме сверхпроводящей проволоки осцилляции, а длина локализации обратно пропорциональна величине щели объемного спектра, то энергия ε_1 испытывает нарастающие осцилляции с увеличением h [87]. И хотя для наблюдения эффекта Ааронова–Бома уже достаточно только двух майорановских мод нижнего возбуждения (что хорошо видно на рис. 2б), с точки зрения свойств эффекта случаи с $\varepsilon_1 = 0$ и $\varepsilon_1 \neq 0$ отличаются. На рисунке 3 они изображены кривой с маркерами “o” и штриховой кривой, соответственно. В обоих случаях экстремумы находятся в точках $\phi = \pi n/2$. Однако, в более общей ситуации, когда $\varepsilon_1 \neq 0$, период осцилляций равен 2π .

При больших величинах зеемановского расщепления МС переходит в объемное АС [92]. При этом период осцилляций равен 2π , а экстремумы имеются как при $\phi = \pi n$, так и между полуцелыми значениями фазы Ааронова–Бома. Существенно, что положение последних зависит от параметров системы, тогда как максимумы и минимумы при целых ϕ являются устойчивыми. Отмеченные особенности поведения кондактанса в эффективной модели появляются при учете взаимодействия каждой из майорановских мод с контактом сразу через оба рукава устройства [74].

Важно подчеркнуть, что в мезоскопических сверхпроводящих структурах теорема Байерс–Янга [93] может нарушаться. В частности, в 1D-и квази-1D кольцах из s -волновых сверхпроводников, длина

когерентности которых меньше или порядка длины окружности, $\xi \sim L$, критическая температура и сверхток имеют период 2π как функции магнитного потока (т.е. h/e -периодичность, свойственная нормальным системам) [94–97]. В рассматриваемой системе удвоение периода осцилляций кондактанса для объемного АС наблюдаются как раз при $\xi \sim N_S$. В случае МС $h/2e$ -периодичность, характерная для протяженных сверхпроводящих систем, имеет место $\forall \varepsilon_1$, если, по крайней мере, одна из двух майорановских мод состояния с энергией ε_2 локализуется в области N1/S или S/N2 интерфейса и перестает быть связанной с контактом (чего можно добиться, увеличивая один из параметров $\sigma_{1,2}$ [44, 74]).

Таким образом, рассматривая период осцилляций и положения экстремумов кондактанса в эффекте Ааронова–Бома, которые демонстрируют устойчивость относительно изменения параметров системы, можно различить случаи интерференционного квантового транспорта в МС, неоднородные АС и объемное АС. Данный вывод остается справедливым при ненулевых температурах $T \sim 10$ мК, отвечающих экспериментальным, и с учетом слабого диагонального беспорядка [74].

Заметим, что максимумы кондактанса $4G_0$ (случай МС на рис. 3) есть индикатор транспорта с участием сразу двух майорановских мод [45]. Если связь второй моды с контактом пренебрежимо мала, пики достигают величины $2G_0$ [23, 24]. Двухканальная интерференция может принимать и деструктивный характер, приводя к $G = 0$. Обе особенности хорошо видны в частном случае, когда одна из майорановских мод состояния с наименьшей энергией в нетривиальной фазе не вытекает в смежный со сверхпроводящей проволокой рукав устройства. На рисунке 4а штриховой кривой приведена зависимость плотности вероятности второй майорановской моды от зеемановской энергии $|z_{N,1}(h)|^2$ на нижнем конце устройства ($N = 2N_1 + N_S$ – число узлов в интерференционной структуре). Очевидно, что связь данной майорановской моды с контактом через нижний рукав отсутствует в обоих фазах сверхпроводящей проволоки. Взаимодействие возможно только через верхний рукав, что видно из поведения зависимости $|z_{1,1}(h)|^2$, изображенной сплошной кривой. Плотность вероятности на верхнем конце максимальна в тривиальной фазе ($h < 0.4$). Однако, поскольку $\varepsilon_1 \gg \Gamma_{2\sigma}$, никаких резонансных особенностей кондактанса не наблюдается (см. сплошную кривую на рис. 4б). В нетривиальной фазе вблизи пороговой энергии h_{c1} происходит резкое падение $|z_{1,1}|^2$. В случае $N_S = 60$ этого не достаточно, чтобы полностью

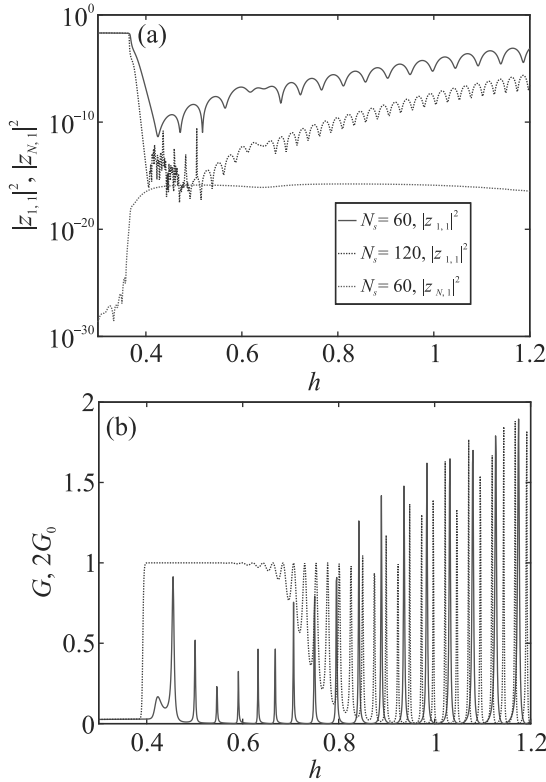


Рис. 4. (Цветной онлайн) Случай заблокированного транспорта в нижний рукав при $\mu \approx 0.6$. (a) – Зависимость плотности вероятности второй майорановской моды возбуждения с энергией ε_1 на верхнем краю устройства $|z_{1,1}|^2$ от величины зеемановского расщепления h при $N_S = 60$ (сплошная кривая) и $N_S = 120$ (пунктирная кривая). На нижнем конце фактически $|z_{N,1}|^2 = 0$ для любого h (штриховая кривая). (b) – Зависимость кондактанса от h

заблокировать транспорт во вторую майорановскую моду (хотя, конечно, $\Gamma_{1\sigma} \gg \Gamma_{2\sigma}$), о чем свидетельствует отсутствие квантованного плато кондактанса [3]. С ростом h резонансы G чередуются с антирезонансами, где $G = 0$ ($h > 0.5$). При этом, чем выше $|z_{1,1}|^2$, тем сильнее резонансные значения G превышают $2G_0$.

Если увеличить длину сверхпроводящей проволоки, то можно добиться исключения второй майорановской моды из транспортных процессов. В результате кондактанс демонстрирует плато высотой $2G_0$ в диапазоне энергий Зеемана $0.4 < h < 0.6$, что показано пунктирной кривой на рис. 4b. Дальнейшее возрастание h сначала приводит к росту гибридизации двух майорановских мод возбуждения с энергией ε_1 , вследствие чего кондактанс осциллирует, но его максимумы равны $2G_0$. Затем, когда непосредственное туннелирование во вторую майорановскую моду ста-

новится возможным, минимумы снова достигают нуля, а максимумы все существеннее превышают величину $2G_0$, стремясь к $4G_0$.

3. Заключение. Несмотря на существенный прогресс в синтезе гибридных проволок полупроводник/сверхпроводник, имеющиеся экспериментальные данные по спектроскопии не позволяют дать однозначный положительный ответ о существовании МС в этих системах. Одним из главных препятствий на пути детектирования майорановских квазичастиц является беспорядок, который приводит к возникновению низкоэнергетических АС, чей отклик в транспорте мимикрирует под отклик возбуждений майорановского типа. Решением этой проблемы может стать изготовление более чистых образцов InAs/Al, InSb/Al, исследуемых с момента первых экспериментов и до настоящего времени, с $L > \xi$; а также синтез новых гибридных проволок, например, PbTe/Pb, в которых полупроводниковый кор характеризуется большой диэлектрической постоянной.

Различия отклика майорановских от андреевских состояний могут быть выявлены при рассмотрении усложненных транспортных геометрий. В частности, эта задача решается при изучении свойств эффекта Ааронова–Бома в интерференционном устройстве со сверхпроводящим сегментами в центральной части. Обнаруженные отличия связаны с особенностями пространственного поведения майорановских мод, которые образуют низкоэнергетические боголюбовские состояния. Анализ периодичности осцилляций кондактанса как функции магнитного потока, а также положения экстремумов в этой зависимости, позволяют выделить отклик майорановских квазичастиц на фоне других АС.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”, а также частично в рамках научной тематики Госзадания Института физики им. Л. В. Киренского СО РАН.

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

1. A. Yu. Kitaev, Phys.-Uspekhi **44**, 131 (2001).
2. A. F. Andreev, Sov. Phys. JETP **22**, 455 (1966).
3. V. V. Valkov, M. Shustin, S. Aksenov, A. Zlotnikov, A. Fedoseev, V. Mitskan, and M. Kagan, Phys.-Uspekhi **65**, 2 (2022).
4. P. Marra, J. Appl. Phys. **34**, 124001 (2022).
5. A. Yu. Kitaev, Ann. Phys. **303**, 2 (2003).
6. C. Nayak, S. H. Simon, A. Stern, M. Freedman, S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **80**, 1083 (2008).

7. J. Alicea, Y. Oreg, G. Refael, F. von Oppen and M. P. A. Fisher, *Nat. Phys.* **7**, 412 (2011).
8. D. A. Ivanov, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 268 (2001).
9. E. Prada, R. Aguado, and P. San-Jose, *Phys. Rev. B* **96**, 085418 (2017).
10. M.-T. Deng, S. Vaitiekenas, E. Prada, P. San-Jose, J. Nygard, P. Krogstrup, R. Aguado, and C. M. Marcus, *Phys. Rev. B* **98**, 085125 (2018).
11. R. M. Lutchyn, J. D. Sau, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 077001 (2010).
12. Y. Oreg, G. Refael, and F. von Oppen, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 177002 (2010).
13. B. Braunecker, G. I. Japaridze, J. Klinovaja, and D. Loss, *Phys. Rev. B* **82**, 045127 (2010).
14. М. С. Шустин, С. В. Аксенов, *ЖЭТФ* **162**, 541 (2022).
15. J. Alicea, *Rep. Prog. Phys.* **75**, 0765017 (2012).
16. V. Mourik, K. Zuo, S. M. Frolov, S. R. Plissard, E. P. A. M. Bakkers, and L. P. Kouwenhoven, *Science* **336**, 1003 (2012).
17. M. T. Deng, C. L. Yu, G. Y. Huang, M. Larsson, P. Caroff, and H. Q. Xu, *Nano Lett.* **12**, 6414 (2012).
18. A. Das, Y. Ronen, Y. Most, Y. Oreg, M. Heiblum, and H. Shtrikman, *Nat. Phys.* **8**, 887 (2012).
19. R. M. Lutchyn, E. P. A. Bakkers, L. P. Kouwenhoven, P. Krogstrup, C. M. Marcus, and Y. Oreg, *Nat. Rev. Mater.* **3**, 52 (2018).
20. S. Vaitiekenas, Y. Liu, P. Krogstrup, and C. M. Marcus, *Nat. Phys.* **17**, 43 (2021).
21. A. Maiani, R. Seoane Souto, M. Leijnse, and K. Flensberg, *Phys. Rev. B* **103**, 104508 (2021).
22. S. Vaitiekenas, R. S. Souto, Y. Liu, P. Krogstrup, K. Flensberg, M. Leijnse, and C. M. Marcus, *Phys. Rev. B* **105**, L041304 (2022).
23. K. T. Law, P. A. Lee, and T. K. Ng, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 237001 (2009).
24. K. Flensberg, *Phys. Rev. B* **82**, 180516(R) (2010).
25. D. Rainis, L. Trifunovic, J. Klinovaja, and D. Loss, *Phys. Rev. B* **87**, 024515 (2013).
26. A. F. Andreev, *Sov. Phys. JETP* **19**, 1228 (1964).
27. J. J. He, T. K. Ng, P. A. Lee, and K. T. Law, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 037001 (2014).
28. T. O. Rosdahl, A. Vuik, M. Kjaergaard, and A. R. Akhmerov, *Phys. Rev. B* **97**, 045421 (2018).
29. J. D. Sau, S. Tewari, R. M. Lutchyn, T. D. Stanescu, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **82**, 214509 (2010).
30. J. Klinovaja and D. Loss, *Phys. Rev. B* **86**, 085408 (2012).
31. M. Aghaee, A. Akkala, Z. Alamet al. (Collaboration), *Phys. Rev. B* **107**, 245423 (2023).
32. P. Yu, J. Chen, M. Gomanko, G. Badawy, E. P. a. M. Bakkers, K. Zuo, V. Mourik, and S. M. Frolov, *Nat. Phys.* **17**, 482 (2021).
33. Z. Wang, H. Song, D. Pan, Z. Zhang, W. Miao, R. Li, Z. Cao, G. Zhang, L. Liu, L. Wen, R. Zhuo, D. E. Liu, K. He, R. Shang, J. Zhao, and H. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 167702 (2022).
34. B. D. Woods, S. Das Sarma, and T. D. Stanescu, *Phys. Rev. Appl.* **16**, 054053 (2021).
35. S. Das Sarma, *Nat. Phys.* **19**, 165 (2023).
36. S. M. Frolov, P. Zhang, B. Zhang, Y. Jiang, S. Byard, S. R. Mudi, J. Chen, A.-H. Chen, M. Hocevar, M. Gupta, C. Riggert, and V. S. Pribiag, *arXiv:2309.09368* (2023).
37. H. Pan and S. Das Sarma, *Phys. Rev. Res.* **2**, 013377 (2020).
38. G. Kells, D. Meidan, and P. W. Brouwer, *Phys. Rev. B* **86**, 100503(R) (2012).
39. C. Liu, J. D. Sau, T. D. Stanescu, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **96**, 075161 (2017).
40. C.-X. Liu, J. D. Sau, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **97**, 214502 (2018).
41. C. Moore, C. Zeng, T. D. Stanescu, and S. Tewari, *Phys. Rev. B.*, **98**, 155314 (2018).
42. E. Prada, P. San-Jose, M. W. A. de Moor, A. Geresdi, E. J. H. Lee, J. Klinovaja, D. Loss, J. Nygard, R. Aguado, and L. P. Kouwenhoven, *Nat. Rev. Phys.* **2**, 575 (2020).
43. P. Marra and A. Nigro, *J. Phys.: Condens. Matter.* **34**, 124001 (2022).
44. F. Penaranda, R. Aguado, P. San-Jose, and E. Prada, *Phys. Rev. B* **98**, 235406 (2018).
45. A. Vuik, B. Nijholt, A. R. Akhmerov, and M. Wimmer, *SciPost Phys.* **7**, 061 (2019).
46. R. Hess, H. F. Legg, D. Loss, and J. Klinovaja, *Phys. Rev. B* **104**, 075405 (2021).
47. P. W. Anderson, *J. Phys. Chem. Solids* **11**, 26 (1959).
48. J. D. Sau, S. Tewari, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **85**, 064512 (2012).
49. J. D. Sau and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **88**, 064506 (2013).
50. O. Motrunich, K. Damle, and D. A. Huse, *Phys. Rev. B* **63**, 224204 (2001).
51. P. W. Brouwer, M. Duckheim, A. Romito, and F. von Oppen, *Phys. Rev. B* **84**, 144526 (2011).
52. P. W. Brouwer, M. Duckheim, A. Romito, and F. von Oppen, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 196804 (2011).
53. S. Ahn, H. Pan, B. Woods, T. D. Stanescu, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. Materials* **5**, 124602 (2021).
54. D. Bagrets and A. Altland, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 227005 (2012).
55. H. Pan, W. S. Cole, J. D. Sau, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **101**, 024506 (2020).
56. H. Pan and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **105**, 115432 (2022).
57. P. Yu, B. D. Woods, J. Chen, G. Badawy, E. P. A. M. Bakkers, T. D. Stanescu, and S. M. Frolov, *SciPost Phys.* **15**, 005 (2023).

58. S. G. Schellingerhout, E. J. de Jong, M. Gomanko, X. Guan, Y. Jiang, M. S. M. Hoskam, S. Koelling, O. Moutanabbir, M. A. Verheijen, S. M. Frolov, and E. P. A. M. Bakkers, arXiv:2110.12789 (2021).
59. Z. Cao, D. E. Liu, W.-X. He, X. Liu, K. He, and H. Zhang, Phys. Rev. B **105**, 085424 (2022).
60. M. Gomanko, E. J. de Jong, Y. Jiang, S. G. Schellingerhout, E. P. A. M. Bakkers, and S. M. Frolov, SciPost Phys. **13**, 089 (2022).
61. S. Yuan, H. Krenn, G. Springholz, Y. Ueta, G. Bauer, and P. J. McCann, Phys. Rev. B **55**, (1997).
62. G. W. Winkler, A. E. Antipov, B. van Heck, A. A. Soluyanov, L. I. Glazman, M. Wimmer, and R. M. Lutchyn, Phys. Rev. B **99**, 245408 (2019).
63. Y. Jiang, S. Yang, L. Li et al. (Collaboration), Phys. Rev. Materials **6**, 034205 (2022).
64. Z. Geng, Z. Zhang, F. Chen et al. (Collaboration), Phys. Rev. B **105**, L241112 (2022).
65. W. Song, Z. Yu, Y. Wang et al. (Collaboration), arXiv:2402.02132 (2024).
66. W. Song, Y. Wang, W. Miao et al. (Collaboration), Phys. Rev. B **108**, 045426 (2023).
67. Y. Wang, F. Chen, W. Songet al. (Collaboration), Nano Letters **23**, 11137 (2023).
68. J. Gooth, M. Borg, H. Schmid, V. Schaller, S. Wirths, K. Moselund, M. Luisier, S. Karg, and H. Riel, Nano Letters **17**, 2596 (2017).
69. J. Kammhuber, M. Cassidy, H. Zhang, Ö. Gül, F. Pei, Michiel W. A. de Moor, B. Nijholt, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. Car, S. Plissard, E. Bakkers, and L. Kouwenhoven, Nano Lett. **16**, 3482 (2016).
70. Y. Gao, W. Song, S. Yang et al. (Collaboration), arXiv: 2309.01355 (2023).
71. W. Chang, S. Albrecht, T. Jespersen, F. Kuemmeth, P. Krogstrup, J. Nygard, and C. M. Marcus, Nat. Nanotechnol. **10**, 232 (2015).
72. K. M. Tripathi, S. Das, and S. Rao, Phys. Rev. Lett. **116**, 166401 (2016).
73. M. Hell, K. Flensberg, and M. Leijnse, Phys. Rev. B **97**, 161401(R) (2018).
74. S. V. Aksenov, Phys. Rev. B **107**, 085417 (2023).
75. P. Bonderson, M. Freedman, and C. Nayak, Phys. Rev. Lett. **101**, 010501 (2008).
76. L. Fu, Phys. Rev. Lett. **104**, 056402 (2010).
77. S. Vijay and L. Fu, Phys. Rev. B **94**, 235446 (2016).
78. Y. Aharonov and D. Bohm, Phys. Rev. **115**, 485 (1959).
79. S. Datta, *Electronic transport in mesoscopic systems*, Cambridge University Press, N.Y. (1995).
80. R. L. O. het Veld, D. Xu et al. (Collaboration), Commun. Phys. **3**, 1 (2020).
81. A. M. Whiticar, A. Fornieri, E. C. T. O'Farrell, A. C. C. Drachmann, T. Wang, C. Thomas, S. Gronin, R. Kallaher, G. C. Gardner, M. J. Manfra, C. M. Marcus, and F. Nichele, Nat. Commun. **11**, 3212 (2020).
82. S. V. Aksenov, J. Phys.: Condens. Matter **34**, 255301 (2022).
83. A. A. Kopasov and A. S. Mel'nikov, Phys. Rev. B **101**, 054515 (2020).
84. A. A. Kopasov, A. G. Kutlin, and A. S. Mel'nikov, Phys. Rev. B **103**, 144520 (2021).
85. D. Chevallier, D. Sticlet, P. Simon, and C. Bena, Phys. Rev. B **85**, 235307 (2012).
86. E. Vernek, P. H. Penteado, A. C. Seridonio, and J. C. Egues, Phys. Rev. B **89**, 165314 (2014).
87. S. Das Sarma, J. D. Sau, and T. D. Stanescu, Phys. Rev. B **86**, 220506(R) (2012).
88. Л. В. Келдыш, ЖЭТФ **47**, 1515 (1964).
89. П. И. Арсеев, УФН **185**, 1271 (2015).
90. V. V. Val'kov and S. V. Aksenov, J. Magn. Magn. Mat. **465**, 88 (2018).
91. V. V. Val'kov, M. Yu. Kagan, and S. V. Aksenov, J. Phys. Condens. Matter **31**, 225301 (2019).
92. A. Haim, E. Berg, F. von Oppen, and Y. Oreg, Phys. Rev. Lett. **114**, 166406 (2015).
93. N. Byers and C. N. Yang, Phys. Rev. Lett. **7**, 46 (1961).
94. K. Czajka, M. M. Maska, M. Mierzejewski, and Z. Sledz, Phys. Rev. B **72**, 035320 (2005).
95. T.-C. Wei and P. M. Goldbart, Phys. Rev. B **77**, 224512 (2008).
96. V. Vakaryuk, Phys. Rev. Lett. **101**, 167002 (2008).
97. F. Loder, A. P. Kampf, and T. Kopp, Phys. Rev. B **78**, 174526 (2008).

Модели β -WLZZ напрямую из интегралов β -ансамблей

А. Миронов^{* $\times\circ 1$} , А. Орешина⁺ $\times\circ 1$), А. Пополитов⁺ $\times\circ 1$)

⁺Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

^{*}Физический институт имени П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^{$\times$} Национальный исследовательский центр “Курчатовский Институт 123182 Москва, Россия

^{$\circ$} Институт проблем передачи информации, 127994 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 мая 2024 г.

После переработки 29 мая 2024 г.

Принята к публикации 30 мая 2024 г.

Недавно мы представили реализацию в виде двух β -ансамблей серии β -деформированных матричных моделей WLZZ, задействуя β -деформированные интегралы Хариш–Чандры–Ицксона–Зюбера. Эта реализация была получена и исследована при помощи тождеств Уорда, которые, однако, не позволяют однозначно фиксировать контуры интегрирования. В качестве контуров были выбраны действительная ось для одного β -ансамбля и мнимая ось для другого, что обосновывалось проведенными частными проверками. В данном письме мы вычисляем интегралы β -ансамблей напрямую, используя гипотезу И. Г. Макдональда, и объясняем, что другой выбор контуров интегрирования также возможен.

DOI: 10.31857/S1234567824130111, EDN: AWPNDJ

1. Матричные модели имеют исключительно много приложений, от квантовой теории столкновений [1] до теории двумерной гравитации с материей [2–5] и вильсоновских средних в теории Черна–Саймонса [6–8]. Одно из основных применений связано с деформированной версией матричных моделей – так называемыми β -ансамблями [9–13]. β -ансамбли ассоциированы с деформацией инвариантного матричного интеграла после интегрирования по угловым переменным. Якобиан преобразования от матриц к их собственным значениям плюс угловые переменные равен квадрату определителя Вандермонда, а переход к β -ансамблю подразумевает замену второй степени этого определителя на произвольную. Этот определитель можно интерпретировать как логарифмический потенциал в двумерной кулоновской системе [14]. В качестве недавнего применения удалось также связать β -ансамбли с гипотезой АГТ [15–19].

В то время как теория β -ансамблей развита относительно далеко, модели нескольких взаимодействующих β -ансамблей до сих пор не привлекали слишком много внимания – они обсуждались только в [20] и недавней работе авторов [21] (некоторое предварительное обсуждение может быть также найдено в [22]). В то же самое время, они отвечают весьма

интенсивно изучавшейся β -деформированной версии двухматричных моделей [22–28]. Причина в том, что модели, в которых присутствует несколько β -ансамблей, требует знания β -деформации [29–31] интеграла Хариш–Чандры–Ицксона–Зюбера (Harish–Chandra–Itzykson–Zuber, HCIZ) [32, 33], что является нетривиальной проблемой, которая до сих пор не имеет полного решения: известны только некоторые рекуррентные формулы, применимые при натуральных значениях β [29, 30], определение в терминах формальных рядов [31] и набор тождеств на интегралы [21]. Наконец, имеются тождества, которые известны под именем гипотезы Макдональда [34, 35], и которые мы собираемся обсуждать в настоящем письме.

Центральным элементом является W -представление матричных моделей и β -ансамблей [36–38], которое приводит к статистической сумме вида

$$Z^{(\beta)}(N; p, g) = \sum_R \xi_R^\beta(N) \frac{J_R\{p_k\} J_R\{g_k\}}{\|J_R\|}, \quad (1)$$

где J_R – полиномы Джека [39], суммирование идет по разбиениям R и

$$\begin{aligned} \xi_R^\beta(N) &:= \prod_{i,j \in R} (N + \beta^{-1}(j-1) - i + 1) = \\ &= \beta^{-|R|} \prod_{j=1}^N \frac{\Gamma(\beta(N-j+1) + R_j)}{\Gamma(\beta(N-j+1))}. \end{aligned} \quad (2)$$

¹) e-mail: mironov@lpi.ru, mironov@itep.ru;
oreshina.aa@phystech.edu; popolit@gmail.com

Такие модели часто называют модели β -WLZZ в соответствии с их недеформированной версией – модели WLZZ, впервые построенными в [36, 37].

В предыдущей работе [21] мы построили интегральное представление для класса моделей β -WLZZ:

$$Z^{(\beta)}(N; p, g) = \int [dx dy] \Delta^{2\beta}(x) \Delta^{2\beta}(y) I^\beta(x, -y) \times \\ \times \exp \left[\beta \sum_{k \geq 1} \frac{g_k}{k} \sum_{j=1}^N x_j^k + \beta \sum_{k \geq 1} \frac{\bar{p}_k}{k} \sum_{j=1}^N y_j^k \right], \quad (3)$$

где интегралы по x_j идут вдоль действительной оси, а интегралы по y_j – по мнимой. Здесь $I^\beta(x, y)$ β -деформированный интеграл HCIZ (β -HCIZ) [29, 30], а мера нормирована так, что $Z_\beta(N; 0, 0, 0) = 1$. Кроме того, здесь $\Delta(x) = \prod_{i < j} |x_i - x_j|$ – определитель Вандермонда, и подынтегральное выражение понимается как формальный ряд по p_k and g_k .

В [21] мы доказали, что статистические суммы (3) и (1) равны друг другу, используя тождества Уорда, которым они удовлетворяют. Однако доказательства такого типа не фиксируют контуры интегрирования, и мы сделали проверки при специальных натуральных значениях β . Целью данного письма является вывод этого равенства статистических сумм напрямую.

2. Определим норму полиномов Джека как

$$\|J_R\| := \frac{\bar{G}_{R \vee R}^\beta(0)}{G_{R \vee R}^\beta(0)} \beta^{|R|} \quad (4)$$

$$G_{R' R''}^\beta(x) := \prod_{(i,j) \in R'} \left(x + R'_i - j + \beta(R''_j - i + 1) \right),$$

где черта над функциями означает замену $\beta \rightarrow \beta^{-1}$.

Теперь, используя тождество Коши [39],

$$\exp \left[\beta \sum_{k \geq 1} \frac{g_k}{k} \sum_{j=1}^N x_j^k \right] = \sum_R \frac{J_R(x) J_R(g_k)}{\|J_R\|} \quad (5)$$

можно получить для интеграла (3) (для любого контура интегрирования):

$$Z^{(\beta)}(N; p, g) = \sum_{R, Q} \frac{J_R(p_k) J_Q(g_k)}{\|J_R\| \|J_Q\|} \int [dy] \times \\ \times \int [dx] \Delta^{2\beta}(x) \Delta^{2\beta}(y) I^\beta(x, -y) J_R(Y) J_Q(X) = \\ = \sum_{R, Q} \frac{J_R(p_k) J_Q(g_k)}{\|J_R\| \|J_Q\|} \langle J_R(Y) J_Q(X) \rangle. \quad (6)$$

Таким образом, для того, чтобы доказать эквивалентность (3) и (1), достаточно вывести, что

$$\langle J_R(Y) J_Q(X) \rangle = \delta_{R, Q} \xi_R^\beta(N) \|J_R\|. \quad (7)$$

Ранее [21] для вычисления интеграла (6) при натуральных значениях β мы использовали формулу из теории Фурье

$$\int dx dy f(x) g(y) e^{-xy} = f \left(\frac{\partial}{\partial x} \right) g(x) \Big|_{x=0}, \quad (8)$$

а также интеграл β -HCIZ при натуральном значении β в виде [30]:

$$I_N^\beta(x, y) = \sum_\sigma \frac{e^{\sum_{j=1}^N x_j y_{\sigma(j)}}}{\Delta(x)^{2\beta} \Delta(y_\sigma)^{2\beta}} \tilde{I}_N^\beta(x, y_\sigma), \quad (9)$$

где сумма идет по перестановкам y_i , и $\tilde{I}_N^\beta$ – полином от x_i и y_i , определенный рекуррентными соотношениями по N .

Теперь мы рассмотрим скалярные произведения с двумя различными контурами интегрирования,

$$\langle f(X, Y) \rangle_1 := \int_{-i\infty}^{+i\infty} [dy] \times \\ \times \int_{-\infty}^{+\infty} [dx] \Delta^{2\beta}(x) \Delta^{2\beta}(y) I^\beta(x, -y) f(X, Y) \quad (10)$$

и

$$\langle f(X, Y) \rangle_2 := \oint_0 [dy] \times \\ \times \int_0^{+\infty} [dx] \Delta^{2\beta}(x) \Delta^{2\beta}(y) I^\beta(x, -y) f(X, Y) \quad (11)$$

выведем (7) для второго случая, а затем продемонстрируем эквивалентность двух скалярных произведений.

3. Определим интеграл β -HCIZ при произвольном β как степенной ряд [31]:

$$I_N^\beta(x, y) = \sum_R \frac{1}{\xi_R^{(\beta)}(N)} \frac{J_R(x) J_R(y)}{\|J_R\|}. \quad (12)$$

Теперь для доказательства (7) со вторым скалярным произведением (10) мы используем следующие факты:

- Гипотезу Макдональда, которая гласит, что [34, 35]

$$\int_0^\infty I_N^\beta(x, -y) J_R(x) \Delta(x)^{2\beta} \times \\ \times \prod_{j=1}^N x_j^{\mu - \beta(N-1)-1} dx_j = N_R \cdot J_R(y^{-1}) \prod_{j=1}^N y_j^{-\mu} \quad (13)$$

$$N_R = \prod_{j=1}^N \frac{\Gamma(1 + \beta j)}{\Gamma(1 + \beta)} \Gamma(R_j + \mu - \beta(j-1)). \quad (14)$$

- Ортогональность полиномов Джека [39, (10.38)] по отношению к скалярному произведению

$$\langle f, g \rangle := \oint_0 \prod_{j=1}^N \frac{dy_j}{y_j} f(y^{-1}) g(y) \prod_{j \neq k} \left(1 - \frac{y_j}{y_k} \right)^\beta \quad (15)$$

так что

$$\langle J_R, J_Q \rangle = \mathbf{N}_R \cdot \delta_{RQ} \quad (16)$$

$$N_R = N! \prod_{1 \leq i < j \leq N} \frac{\Gamma(R_i - R_j + \beta(j - i + 1))\Gamma(R_i - R_j + \beta(j - i - 1) + 1)}{\Gamma(R_i - R_j + \beta(j - i))\Gamma(R_i - R_j + \beta(j - i) + 1)}. \quad (17)$$

Интегрируя теперь обе стороны уравнения (13) с мерой $\Delta(y)^{2\beta}$ и выбирая $\mu = \beta(N - 1) + 1$, получаем из второго скалярного произведения

$$\langle J_R(Y)J_Q(X) \rangle_2 = \delta_{R,Q} \frac{N_R N_R}{N_\emptyset N_\emptyset} = \delta_{R,Q} \xi_R^\beta(N) \|J_R\|, \quad (18)$$

где мы использовали (4) и (2).

4. Остается теперь доказать, что два скалярных произведения совпадают. Рассмотрим простейший пример $\beta = 1$, $N = 1$. Тогда два интеграла (10) и (11) по двум разным контурам приводят к одному и тому же результату:

$$\int_{-i\infty}^{+i\infty} dy \int_{-\infty}^{+\infty} dx e^{-xy} x^a y^b = a! \delta_{a,b}, \quad (19)$$

$$\oint_0 dy \int_0^{+\infty} dx e^{-xy} x^a y^b = \oint_0 dy y^b \frac{a!}{y^{1+a}} = a! \delta_{a,b}. \quad (20)$$

Однако доказательство, которое обобщается на случай произвольного $\beta \neq 1$, не должно использовать явное интегрирование, поэтому мы обоснуем эквивалентность (19) и (20) без прямых вычислений. Действительно, заметим, что

$$\int_{-i\infty}^{+i\infty} dy \int_{-\infty}^{+\infty} dx e^{-xy} x^a y^b = \begin{cases} 2 \int_{-i\infty}^{+i\infty} dy \int_0^{+\infty} dx e^{-xy} x^a y^b & \text{для четных } a + b \\ 0 & \text{в противном случае.} \end{cases} \quad (21)$$

Теперь, согласно теореме Сохоцкого,

$$\oint_0 dy \int_0^{+\infty} dx e^{-xy} x^a y^b = \int_{-i\infty}^{+i\infty} dy \int_0^{+\infty} dx e^{-xy} x^a y^b. \quad (22)$$

Это позволяет деформировать контур для доказательства эквивалентности двух скалярных произведений, что просто проделать в общем случае произвольных β и N .

Действительно, заметим, что полином

$$\mu(x, y) = \Delta^{2\beta}(x) \Delta^{2\beta}(y) I^\beta(x, -y) \quad (23)$$

инвариантен относительно одновременного измене-

ния знака всех переменных: $x_i \rightarrow -x_i$, $y_i \rightarrow -y_i$. Таким образом,

$$\int_{-i\infty}^{+i\infty} [dy] \int_{-\infty}^{+\infty} [dx] \mu(x, y) \bar{x}^a \bar{y}^b = \begin{cases} 2 \int_{-i\infty}^{+i\infty} [dy] \int_0^{+\infty} [dx] \mu(x, y) \bar{x}^a \bar{y}^b & \text{для четных } a + b \\ 0 & \text{в противном случае.} \end{cases} \quad (24)$$

где $\bar{x}^a = \prod_{i=1}^N x_i^{a_i}$. Наконец, используя теорему Сохоцкого, мы получаем

$$\int_{-i\infty}^{+i\infty} [dy] \int_{-\infty}^{+\infty} [dx] \mu(x, y) \bar{x}^a \bar{y}^b = \oint_0 [dy] \int_0^{+\infty} [dx] \mu(x, y) \bar{x}^a \bar{y}^b \quad (25)$$

что доказывает эквивалентность двух скалярных произведений и приводит непосредственно к

$$\begin{aligned} & \int_{-i\infty}^{+i\infty} [dy] \int_{-\infty}^{+\infty} [dx] \Delta^{2\beta}(x) \Delta^{2\beta}(y) I^\beta(x, -y) \times \\ & \times \exp \left[\beta \sum_{k \geq 1} \frac{g_k}{k} \sum_{j=1}^N x_j^k + \beta \sum_{k \geq 1} \frac{p_k}{k} \sum_{j=1}^N y_j^k \right] = \\ & = \oint_0 [dy] \int_0^{+\infty} [dx] \Delta^{2\beta}(x) \Delta^{2\beta}(y) I^\beta(x, -y) \times \\ & \times \exp \left[\beta \sum_{k \geq 1} \frac{g_k}{k} \sum_{j=1}^N x_j^k + \beta \sum_{k \geq 1} \frac{p_k}{k} \sum_{j=1}^N y_j^k \right] \end{aligned} \quad (26)$$

доказывая, таким образом, эквивалентность (1) и (3).

Финансирование работы. Наша работа частично поддержана грантом Фонда Развития Теоретической Физики “БАЗИС” (А. Миронов и А. Орешина) и совместным грантом 21-51-46010-СТ-а.

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

1. E. P. Wigner, Ann. Math. **53**, 36 (1951).
2. E. Brezin and V. Kazakov, Phys. Lett. B **236**, 144 (1990).
3. D. J. Gross and A. A. Migdal, Phys. Rev. Lett. **64**, 127 (1990).

4. D. J. Gross and A. A. Migdal, Nucl. Phys. B **340**, 333 (1990).
5. M. R. Douglas and S. H. Shenker, Nucl. Phys. B **335**, 635 (1990).
6. M. Tierz, Mod. Phys. Lett. A **19**, 1365 (2004); hep-th/0212128.
7. A. Brini, B. Eynard, and M. Mariño, Ann. Henri Poincaré **13**(8), 1873 (2012); arXiv:1105.2012.
8. A. Alexandrov, A. Mironov, A. Morozov, and An. Morozov, Pis'ma v ZhETF **100**, 297 (2014) [JETP Lett. **100**, 271 (2014)]; arXiv:1407.3754.
9. M. L. Mehta, *Random matrices*, 2nd ed., Academic Press, N.Y. (1991).
10. T. Guhr and H. Kohler, J. Math. Phys. **43**, 2707 (2002).
11. P. J. Forrester, Nucl. Phys. B **388**, 671 (1992).
12. G. Mahoux, M. L. Mehta, and J.-M. Normand, MSRI Publications **40**, 301 (2001).
13. P. Desrosiers, Nucl. Phys. B **817**, 224 (2009); arXiv:0801.3438.
14. F. J. Dyson, J. Math. Phys. **3**, 140 (1962).
15. H. Itoyama, K. Maruyoshi, and T. Oota, Prog. Theor. Phys. **123**, 957 (2010); arXiv:0911.4244.
16. T. Eguchi and K. Maruyoshi, arXiv:0911.4797.
17. T. Eguchi and K. Maruyoshi, arXiv:1006.0828.
18. A. Mironov, A. Morozov, and Sh. Shakirov, JHEP **02**, 030 (2010); arXiv:0911.5721.
19. A. Mironov, A. Morozov, and Sh. Shakirov, Int. J. Mod. Phys. A **25**, 3173 (2010); arXiv:1001.0563.
20. M. Bergere, B. Eynard, O. Marchal, and A. Prats-Ferrer, JHEP **03**, 098 (2012); arXiv:1106.0332.
21. A. Mironov, A. Oreshina, and A. Papolitov, arXiv:2403.05965.
22. A. Mironov, V. Mishnyakov, A. Morozov, A. Papolitov, and W. Z. Zhao, Phys. Lett. B **839**, 137805 (2023); arXiv:2301.11877.
23. E. Gava and K. Narain, Phys. Lett. B **293**, 213 (1991).
24. A. Marshakov, A. Mironov, and A. Morozov, JETP Lett. **54**, 536 (1991).
25. A. Marshakov, A. Mironov, and A. Morozov, Mod. Phys. Lett. A **7**, 1345 (1992); hep-th/9201010.
26. A. Alexandrov, A. Mironov, A. Morozov, and S. Natanzon, JHEP **11**, 080 (2014); arXiv:1405.1395.
27. A. Alexandrov, Eur. Phys. J. C **83**, 147 (2023); arXiv:2212.10952.
28. A. Mironov, V. Mishnyakov, A. Morozov, A. Papolitov, R. Wang, and W. Z. Zhao, Eur. Phys. J. C **83**, 377 (2023); arXiv:2301.04107.
29. E. Brezin and S. Hikami, Commun. Math. Phys. **235**, 125 (2003); math-ph/0208002.
30. M. Bergère and B. Eynard, J. Phys. A **42**, 265201 (2009); arXiv:0805.4482.
31. A. Mironov, A. Morozov, and Sh. Shakirov, JHEP **03**, 102 (2011); arXiv:1011.3481.
32. Harish-Chandra, Am. J. Math. **241**, 80 (1958).
33. C. Itzykson and J.-B. Zuber, J. Math. Phys. **21**, 411 (1980).
34. I. G. Macdonald, arXiv:1309.4568.
35. D. Brennecken and M. Rösler, arXiv:2202.12164.
36. R. Wang, C. H. Zhang, F. H. Zhang, and W. Z. Zhao, Nucl. Phys. B **985**, 115989 (2022); arXiv:2203.14578.
37. R. Wang, F. Liu, C. H. Zhang, and W. Z. Zhao, Eur. Phys. J. C **82**, 902 (2022); arXiv:2206.13038.
38. V. Mishnyakov and N. Oreshina, Eur. Phys. J. C **82**, 548 (2022); arXiv:2203.15675.
39. I. G. Macdonald, *Symmetric functions and Hall polynomials*, Oxford University Press, Oxford (1995).

Фотоэлектрическая природа антибактериальной активности нанокомпозита ZnO/CuO¹⁾

И. Н. Сараева⁺²⁾, Д. А. Заярный⁺, А. Н. Настулявичус⁺, Э. Р. Толордава⁺, Е. В. Ултургашева⁺,
П. В. Крикунова*, С. И. Кудряшов⁺

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

*Национальный исследовательский центр Курчатовский институт, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 мая 2024 г.

После переработки 6 июня 2024 г.

Принята к публикации 6 июня 2024 г.

В работе проведено исследование антибактериальных свойств пленок ZnO/CuO, активируемых при освещении светодиодной лампой со спектром излучения, близким к естественному солнечному свету, на примере антибиотико-резистентной бактериальной культуры *S. aureus*. Антибактериальные свойства пленок связаны с фотоиндуцированной электропорацией клеток вследствие возникновения разности потенциалов между полупроводниковыми наночастицами *n*-типа ZnO и *p*-типа CuO с локальным увеличением напряженности поля до величины $\sim 1 \cdot 10^4$ В/см, достаточной для протекания необратимой электропорации. Экспонирование приводит к снижению бактериальной обсемененности со значения 8×10^8 КОЕ/мл до 0. Спектры комбинационного рассеяния света до и после экспонирования были проанализированы с помощью расчета параметров спектральных пиков, соответствующих молекулярным колебаниям в нуклеиновых кислотах, клеточной мембране и белках. Было обнаружено исчезновение или деградация пиков, иллюстрирующих колебания A, G в нуклеиновых кислотах, нарушение вторичной структуры белков и появление разупорядоченных форм амида I, а также возникновение разупорядоченности цепочек липидов в мембране и разрушение N-ацетилмурамовой кислоты и N-ацетилглюкозамина, входящих в состав клеточной стенки грамположительных микроорганизмов, что свидетельствует о разрушении клеточной стенки и необратимых разрушениях внутренней структуры клеток.

DOI: 10.31857/S1234567824130123, EDN: EENENE

1. В настоящее время фотокатализ с использованием наноматериалов считается одной из наилучших технологий эффективной очистки воды из-за своей экологичности [1, 2]. В большинстве случаев в качестве материалов используются полупроводники, которые являются нетоксичными, химически стабильными и обладают малой себестоимостью. Так, оксиды цинка и меди, имеющие вышеописанные свойства, часто используются в различных комбинациях, как двухкомпонентных CuO/ZnO [3–9], так и с добавлением оксидов молибдена или железа и т.д., для промышленной очистки воды [10, 11]. Облучение ZnO светом приводит к возникновению фотоиндуцированных носителей заряда и реактивных форм кислорода (РФК), однако ширина запрещенной зоны ZnO составляет около 3.37 эВ [12], в связи с чем для образования электронов и дырок необходим ультрафиолетовый (УФ) свет, что усложняет процесс (на-

пример, делая его опаснее для человека). Оксид цинка является полупроводником *n*-типа, тогда как оксид меди CuO – полупроводник *p*-типа с шириной запрещенной зоны 2.6 эВ [13]. Оба оксида по отдельности обладают низкой каталитической эффективностью в связи с быстрой рекомбинацией электронов и дырок, однако при их совмещении появляется возможность перетекания фотовозбужденных электронов из высокой зоны проводимости в низкую [14]. В ряде работ описано эффективное применение гибридных структур CuO/ZnO в приложениях фотокатализа [15–17].

Помимо применений ZnO/CuO в промышленных средах, существует ряд исследований, направленных на возможность их использования в качестве антибактериальных агентов. Так, в одной из статей [18] приводятся результаты по созданию гибридных наноструктур методом золь-гель и демонстрации их антибактериальных свойств на примере *S. aureus* и *E. coli*. Однако в данной работе облучение структуры производилось УФ светом в течение 15 минут, гибель бактерий наблюдалась и в чистом ZnO, и объясня-

¹⁾См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru

²⁾e-mail: saraevain@lebedev.ru

лась возникновением РФК. В другой статье рассмотрен антибактериальный эффект оксидов меди и цинка на примере штаммов *P.aeruginosa*, *E.coli*, *S.aureus*. Авторы также применяли золь-гель метод (длительность процесса около 2–4 ч). В одной из работ для создания структур ZnO/CuO был применен метода лазерной абляции, однако перед абляцией гибридной мишени авторы наносили цинк на нагретую поверхность меди путем распыления раствора ZnCl_2 [19], который является токсичным, в связи с чем повышается опасность использования метода для человека.

В данной работе представлен новый метод быстрого, эффективного и безопасного создания структур данного типа, включающий в себя магнетронное напыление (около 10 мин на процедуру) и лазерный перенос (около 15 мин на процедуру), исследованы их физико-химические свойства методами сканирующей электронной микроскопии, энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии, рентгеноструктурного анализа, спектроскопии комбинационного рассеяния света, а также проведено тестирование антибактериального эффекта на примере метициллин-резистентного штамма грамположительных бактерий *S.aureus*. Антибактериальный эффект подтвержден стандартными микробиологическими посевами, а также анализом спектров комбинационного рассеяния.

2. На поверхности стеклянной пластины методом магнетронного напыления в атмосфере аргона с использованием медной мишени формировалась 200 нм пленка оксида меди. Далее с использованием наносекундного лазерного маркера со сканирующей головкой предварительно полученные на стеклянной подложке методом лазерного переноса наночастицы оксида цинка вторично переносились на покрытую пленкой оксида меди пластину, образуя плотно прикрепленные к оксидной пленке микроскопические кластеры наночастиц ZnO в виде двухмерного растра с шагом ~ 10 мкм. Таким образом формировался двухмерный массив фоточувствительных к солнечному свету полупроводниковых диодов, образованных из *n*-проводящего ZnO и *p*-проводящего CuO. Исходя из работы [20], при солнечной энергии AM1.5 такой фотоэлемент может создавать разность электрических потенциалов на *p–n* переходе до 1.44 В.

Полученные пленки были охарактеризованы методами сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) (Tescan, Брно, Чехия) и энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДС). СЭМ изображения затем обрабатывались в графическом пакете ImageJ с целью определения средних размеров поверхностного рельефа. Для этого производилась

корректировка контраста и резкости изображений, задавался цветовой порог и производилось выявление контрастных областей, соответствующих рельефу, после чего рассчитывалось распределение площадей по размерам, которое затем пересчитывалось в средние радиусы.

Бактериальная культура *S.aureus* была получена из коллекции штаммов института им. Гамалеи. Исходное количество составляло 8×10^5 КОЕ/мл (колониеобразующих единиц в миллилитре). Культура наносилась на подготовленные подложки, после чего 5 образцов подвергались воздействию светодиодной лампы в течение 1 ч, и 5 образцов оставались в темноте также в течение 1 ч. После этого осуществлялся посев микроорганизмов с целью установления антибактериального эффекта образцов, спровоцированного воздействием света.

Спектры PCA были получены с помощью дифрактометра Rigaku MiniFlex 600 (Токио, Япония), с использованием $\text{Cu K}\alpha$ линии с длиной волны $\lambda = 0.154$ нм. Данные записывались в диапазоне углов 2θ от 10 до 60° с шагом 0.05. Значения ширины пиков на 0.5 высоты определялись методом лоренцевой аппроксимации каждого пика в OriginPro 2019b 9.6.5.169.

Численное моделирование электрических полей, окружающих бактериальную оболочку бактерий *S.aureus*, осуществлялось на основе прикладного пакета COMSOL Multiphysics 6.1 с использованием электротехнического модуля AC/DC, позволяющего рассчитывать электрические поля в присутствии электрических токов на основании решения уравнений Лапласа для внутренней задачи Дирихле. Выбирался пространственный объем $100 \times 100 \times 50$ мкм над подложкой из силикатного стекла (толщина 50 мкм), содержащий на ее поверхности участок (площадь 200 нм) пленки CuO с диаметром $d = 40$ мкм и цилиндрические кластеры ZnO на пленке с высотой от 1 до 2 мкм и с диаметром от 4 до 6 мкм с расстоянием между ними порядка 10 мкм. Объем над подложкой считался заполненным дистиллированной водой, в которой размещалась модель бактерии *S.aureus* в виде сферы размерами 1.2 мкм и электрическими параметрами, приведенными в работе [14]. Электрические параметры всех остальных компонентов модели выбирались из стандартных значений, содержащихся в пакете COMSOL.

Спектры КР были получены с помощью спектрометра Confotec MR520 (SOL Instruments, Минск, Беларусь) при длине волны лазера 532 нм, мощности лазера 15 мВт, времени накопления 2 с, с использованием 40-кратного объектива (MPlanFL, Nikon, То-

кио, Япония) с числовой апертурой 0.75 и рабочим расстоянием 0.66 мм. Фоновый сигнал флуоресценции удаляли из зарегистрированных спектров с помощью метода наименьших квадратов с фактором асимметричности 0.001, фактором сглаживания 7, порогом чувствительности 0.01, числом итераций 10. Полученные спектры были сглажены с помощью метода Савицкого–Голея и нормированы на пик фенилаланина 1011 см⁻¹.

Усредненные обработанные спектры для каждого образца аппроксимировались с помощью Лоренцева приближения с использованием программного обеспечения OriginPro (OriginPro 2019b 9.6.5.169). Процедура аппроксимации заключается в приближении формы пиков в обработанных спектрах КР к форме лоренцева контура:

$$y = y_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{w}{4(x - x_c)^2 + w^2}, \tag{1}$$

где $H = 2 \cdot A / (\pi \cdot w)$ – высота пика; A – площадь под кривой; w – ширина полосы (FWHM); x_c – положение максимума (центральная частота в см⁻¹); y_c и y_0 – максимальный и фоновый сигнал соответственно (рис. 1).

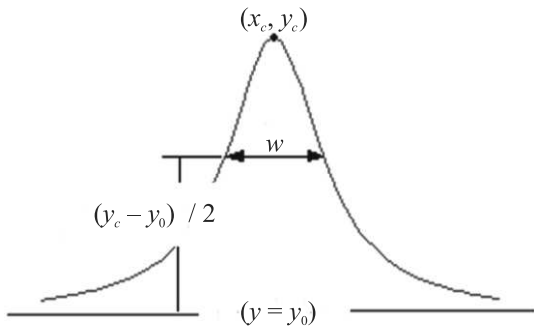


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематичное изображение лоренцева контура, согласно которому осуществляется аппроксимация спектров КР

Обнаружение полос КР (скрытых пиков) осуществлялось путем определения локальных максимумов второй производной со сглаживанием Савицкого–Голея. Найденные значения (положения максимумов второй производной x_c) фиксировались, после чего все пики аппроксимировались лоренцевым приближением (1), в результате чего были получены значения ширины полосы w и площади под кривой A . Разброс данных значений (стандартное отклонение) оценивался программой в соответствии с оценкой уровня шума и величиной остаточной ошибки.

3. Для пленок CuO, ZnO и CuO/ZnO была проведена СЭМ и ЭДС характеристизация. Поверхность CuO

пленок имеет наношероховатость с размерами зерен порядка 90 нм (рис. 2).

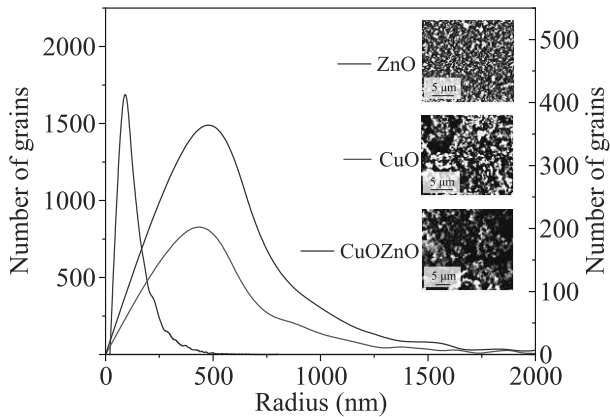


Рис. 2. (Цветной онлайн) Распределение зерен субмикрорельефа на поверхности напыленных пленок. Зеленая линия – CuO; красная линия – ZnO; синяя линия – CuO/ZnO. Вставки: соответствующие СЭМ изображения пленок

Согласно данным ЭДС, оксид меди равномерно распределен по поверхности подложки (рис. 1). Большое количество кислорода обусловлено его высоким содержанием в силикатном стекле, на которое производилось напыление (табл. 1).

Таблица 1. Элементы, содержащиеся в выбранной области для пленки CuO

Элемент	Атомный %
O	55.47
Si	17.76
Cu	13.37
C	13.40
Всего	100.00

Пленка ZnO имеет субмикромасштабный рельеф, с размерами зерен до 450 нм. Данные ЭДС иллюстрируют высокую производительность метода лазерного переноса для создания пленок (рис. 4, табл. 2). Однородность покрытия подтверждается равномерным распределением цинка на картах ЭДС.

Таблица 2. Элементы, содержащиеся в выбранной области для пленки ZnO

Элемент	Атомный %
O	40.02
Zn	48.28
C	11.47
Si	0.22
Всего	100.00

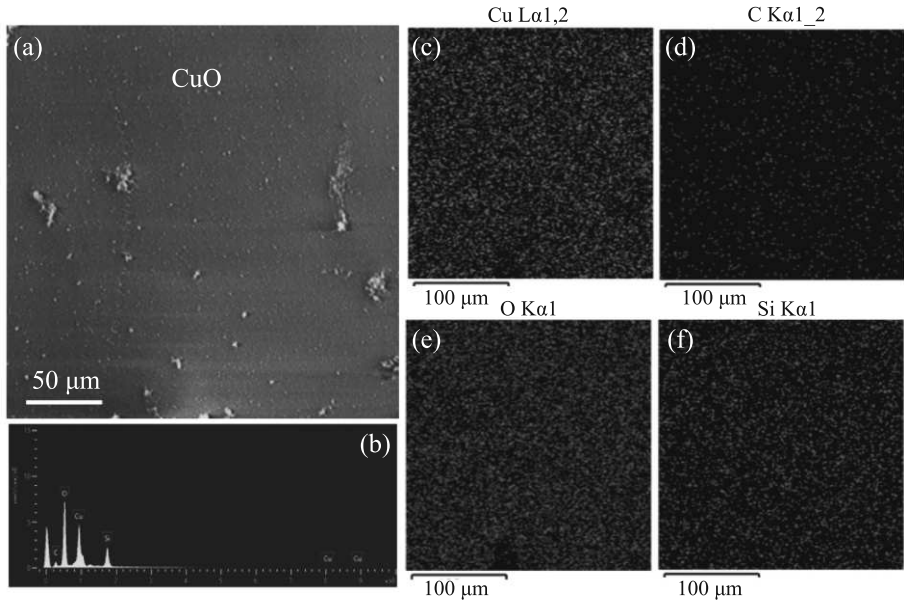


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – СЭМ-изображение поверхности пленки CuO; (b) – соответствующий энергодисперсионный спектр; (с)–(f) – карты распределения элементов в выбранной области

Комбинированные пленки CuO/ZnO с субмикронной шероховатостью (около 500 нм) также демонстрируют однородное распределение цинка и меди (рис. 5, табл. 3).

Таблица 3. Элементы, содержащиеся в выбранной области для комбинированной пленки CuO/ZnO

Элемент	Атомный %
O	45.17
Zn	34.80
C	11.83
Si	4.12
Cu	4.08
Всего	100.00

В результате проведения бактериологического посева было выявлено, что при экспонировании светом в течение 1 часа наблюдается снижение КОЕ/мл до нуля, тогда как в темноте эффекта нет (табл. 4).

Таблица 4. Данные микробиологического посева с пленок CuO, ZnO, CuO/ZnO

Образец	Обсемененность без экспонирования, КОЕ/мл	Обсемененность с экспонированием, КОЕ/мл
Контроль	8×10^8	8×10^8
CuO	0	0
ZnO	6×10^8	6×10^8
CuO/ZnO	6×10^8	0

Согласно данным посева, НЧ меди обладают антибактериальными свойствами как с экспонировани-

ем, так и без него, однако после лазерного переноса ZnO на пленку CuO антибактериальный эффект исчезает. Данный факт может быть связан с покрытием пленки CuO частицами ZnO, которые не обладают антибактериальным эффектом *per se* и нивелируют бактерицидную активность оксида меди. Тем не менее, после экспонирования образца под светом светодиодной лампы в течение 1 ч наблюдается сильный антибактериальный эффект, что свидетельствует об ином механизме противомикробного действия, а именно – электропорации.

Данные PCA подтверждают содержание в пленках ZnO (100), (002), (101), (110), (103) и CuO (100), (002), (111), (101), (202) (рис. 6) [15, s16].

Размер кристаллитов можно определить из полученных спектров PCA с помощью формулы Шерера (1):

$$D_{h,k,l} = 0.9\lambda / (\beta_{h,k,l} \cos \theta), \quad (1)$$

где $\lambda = 0.154$ нм (Cu K α -линия) – длина волны рентгеновского излучения, β – полная ширина на 0.5 высоты (*full linewidth at half maximum*, FWHM) в радианах, θ – угол дифракции на соответствующих плоскостях. В табл. 5 представлены размеры кристаллитов, рассчитанные из данных спектров PCA.

Таким образом, средний размер кристаллитов ZnO составляет порядка 26 нм, тогда как средний размер кристаллитов CuO составляет около 35 нм.

Разность потенциалов между полупроводником *n*-типа ZnO и полупроводником *p*-типа CuO составляет 1.4666 В при дневной солнечной освещенности с

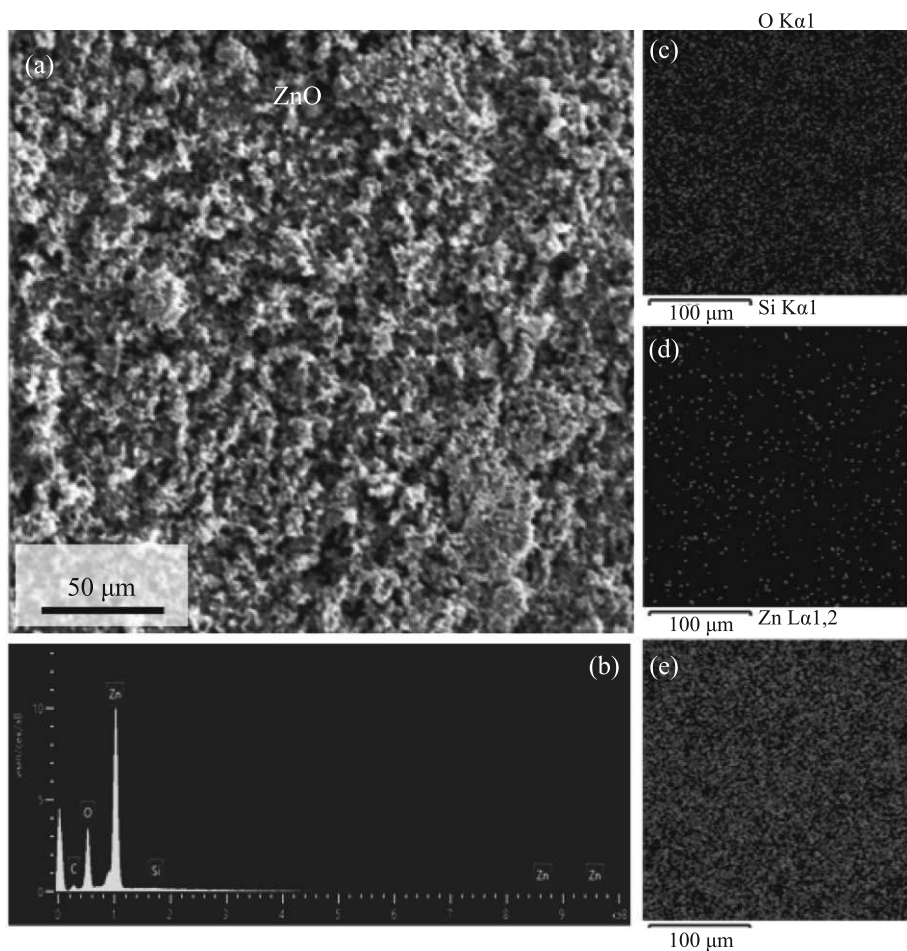


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) — СЭМ-изображение поверхности пленки ZnO; (б) — соответствующий энергодисперсионный спектр; (с)–(е) — карты распределения элементов в выбранной области.

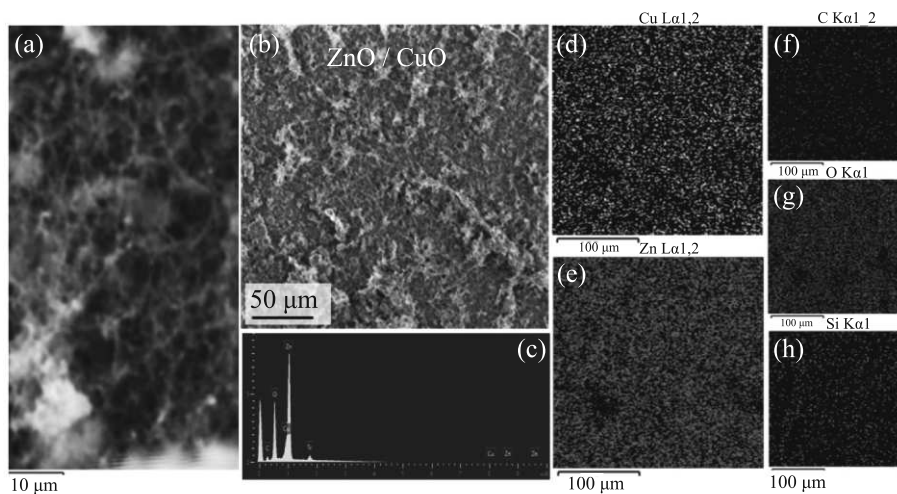


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а), (б) — СЭМ-изображение поверхности пленки ZnO/CuO при различных увеличениях; (с) — соответствующий энергодисперсионный спектр; (д)–(h) — карты распределения элементов в выбранной области.

AM1.5 (air mass) по стандарту ISO 9845-1:2022. Значение разности потенциалов взято из работы [20].

Согласно расчетам, напряженность электрического поля на внешней границе бактериальной обо-

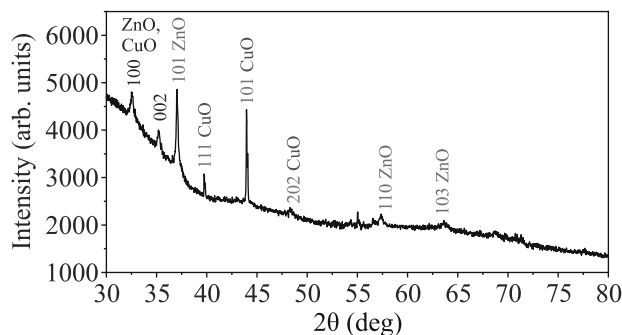


Рис. 6. (Цветной онлайн) Данные рентгеноструктурного анализа нанесенной пленки ZnO/CuO

Таблица 5. Размеры кристаллитов ZnO и CuO, рассчитанные из данных PCA

2θ , градусы	Плоскость, hkl	Размер кристаллитов ZnO, нм	Размер кристаллитов CuO, нм
32.5	1 0 0	28.3	28.3
35.2	0 0 2	27.5	27.5
37	1 0 1	45.1	
40	1 1 1		51.1
44	1 0 1		48.9
48.3	2 0 2		20.8
57.3	1 1 0	22.0	
63.6	1 0 3	10.3	

лочки *S.aureus* составляет более $1 \cdot 10^4$ В/см (рис. 7), что, согласно литературным данным, соответствует режиму необратимой электропорации [24].

Усредненные спектры КР и их вторые производные представлены на рис. 8.

Параметры спектральных полос были получены методом лоренцева приближения (см. раздел 2) с поиском скрытых пиков с помощью вторых производных спектров (рис. 9). Данные значения отображены в табл. S1, где каждая ячейка включает до трех строк, соответствующих положению максимума, ширине полосы на 0.5 высоты (FWHM) и площади под кривыми со стандартными ошибками (табл. S1, дополнительные материалы).

В общем случае антибактериальный эффект может проявляться в виде повреждения ДНК/РНК (в том числе их азотистых оснований аденина А, гуанина Г, цитозина С, урацила У), белков (их вторичной структуры) и мембраны *S.aureus* является грамположительной бактерией с плотной клеточной мембраной, и предполагаемый процесс электропорации должен отражаться в изменениях спектров КР.

Пики, соответствующие $-\text{PO}_2$, C-C колебаниям в нуклеиновых кислотах, расположены в области 1070,

1091, 1106, 1121 cm^{-1} [25]. Все пики сдвигаются в сторону больших волновых чисел, а также демонстрируют уширение и увеличение площади под кривой, что может быть связано с разупорядочиванием молекулярных связей. Пик 1232 cm^{-1} [26], соответствующий асимметричным валентным колебаниям $-\text{PO}_2$, однако, демонстрирует сужение и уменьшение площади под кривой. Полоса 1121 cm^{-1} исчезает после экспонирования. Колебания в С, G характеризуются пиком 1181 cm^{-1} , который демонстрирует сдвиг до 1178 cm^{-1} , значительное уширение и увеличение площади под кривой. Пики 1121, 1333 cm^{-1} (А [27]) исчезают после экспонирования. А, G иллюстрируются пиком 1346 cm^{-1} , который сдвигается до 1341 cm^{-1} , демонстрирует значительное уменьшение ширины и площади. Дополнительный пик А, G на 1364 cm^{-1} также исчезает после экспонирования. Пик 1786 cm^{-1} отображает C=O колебания в ДНК [28], он демонстрирует сдвиг в сторону меньших длин волн. Таким образом, наблюдаемые спектральные изменения можно связать с нарушением структуры ДНК бактерий в процессе электропорации.

Пик 1135 cm^{-1} отражает молекулярные колебания в липидах и фосфолипидах; его ширина и площадь демонстрируют увеличение. Пик 1454 cm^{-1} относится к CH_2 колебаниям в липидах и белках; он сдвигается до 1452 cm^{-1} , сужается, площадь уменьшается. Колебания основных мембранных липидов расположены в области 2800–3000 cm^{-1} . Из них три пика (2874, 2982, 3015 cm^{-1}) демонстрируют уширение и увеличение площади, два (2900, 2937 cm^{-1}) – сужение и уменьшение площади. Пик 2998 cm^{-1} полностью исчезает в спектрах бактерий, подвергнутых экспонированию. Пик 1308 cm^{-1} соответствует CH_2 колебаниям в насыщенных жирах и демонстрирует значительное сужение.

Отношение интенсивностей КР пиков I_{2937}/I_{2874} , I_{2848}/I_{2884} , I_{1093}/I_{1129} , I_{1095}/I_{1064} иллюстрирует степень разупорядоченности цепочек липидов [29, 30]. Согласно литературным данным, учитываются значения не площадей под кривыми соответствующих пиков, а непосредственно интенсивности на спектрах КР, в связи с чем в табл. 7 указаны именно эти значения.

Пики 2848 cm^{-1} и 2884 cm^{-1} относятся к симметричным и асимметричным валентным колебаниям C-H в метиленовых группах, а пик 2935 cm^{-1} – симметричным валентным колебаниям метила в цепях алкилов [31]. Отношения интенсивностей пиков 2935 cm^{-1} и 2880 cm^{-1} считаются хорошим показателем степени разупорядоченности в бислое алкилов. Область 1000–1200 cm^{-1} отображает

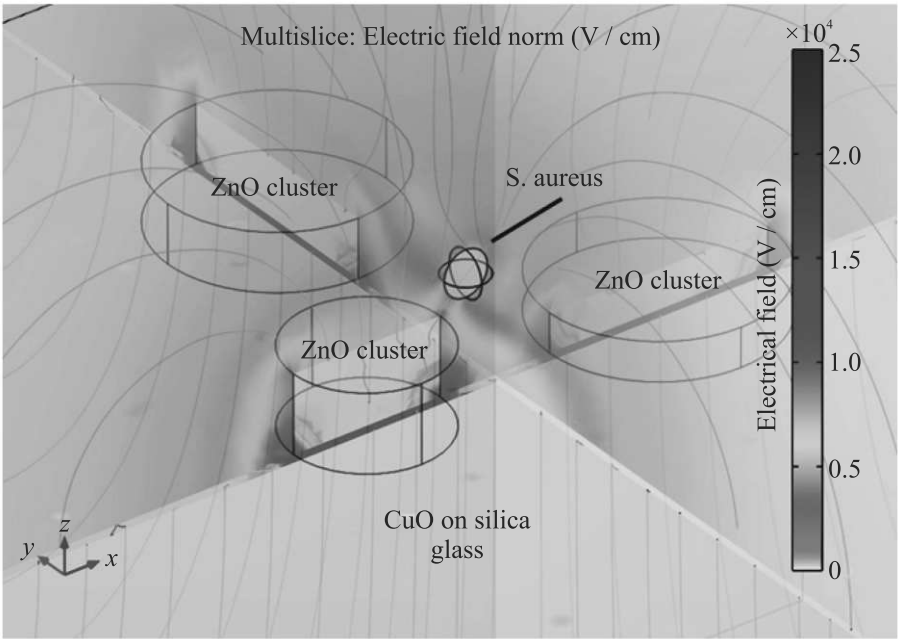


Рис. 7. Численное моделирование электрического поля в трехмерной модели, включающей в себя пленку CuO на подложке из силикатного стекла, кластеры ZnO и бактерию S.aureus

Таблица 6. Электрические параметры компонентов для моделирования в программной среде COMSOL Multiphysics 6.1

Характеристика	ZnO	CuO	S.aureus		Дистиллированная вода	Силикатное стекло
			Цитоплазма	Мембрана		
Электрическая проводимость, см/м	10^3	0.01	0.8	0.01	5.5×10^{-6}	10^{-14}
Относительная диэлектрическая проницаемость, ϵ/ϵ_0	8.3	18.1	70	60	80	3.75

Таблица 7. Отношение интенсивностей КР пиков I_{2937}/I_{2874} , I_{2848}/I_{2884} , I_{1093}/I_{1129} , I_{1095}/I_{1064} культуры S.aureus до и после экспонирования светом

	Без экспонирования	После экспонирования
I_{2937}/I_{2874}	1.93	1.85
I_{2848}/I_{2884}	0.58	0.55
I_{1093}/I_{1129}	0.84	0.85
I_{1095}/I_{1064}	1.84	2.16

валентные C-C колебания и связанные с ними межмолекулярными trans/gauche изменениями в алкильных цепях в фосфолипидах. Пик 1130 см^{-1} относится к валентным колебаниям C-C trans-конформации алкильных цепей, тогда как пик 1090 см^{-1} иллюстрирует валентные колебания C-C gauche-конформации. Таким образом, отношение интенсивностей данных пиков отображает соотношение порядка/разупорядочивания в алкильных цепях [29, 32].

Важными компонентами клеточной стенки бактерий являются пептидогликаны, N-ацетилмурамовая кислота (НАМ) и N-ацетилглюкозамин (НАГ). Согласно литературным данным, соответствующие данным молекулярным колебаниям КР пики расположены в области 1388 и 1415 см^{-1} [33]. Интенсивность пиков уменьшается, а также наблюдается сдвиг пика 1415 см^{-1} в сторону больших волновых чисел, что свидетельствует о разрушении клеточной стенки.

Phe (фенилаланин) характеризуется пиками 1011 , 1036 , 1580 см^{-1} . Пик 1011 см^{-1} сдвигается до 1008 см^{-1} , пик 1580 см^{-1} – до 1586 см^{-1} . Ширина и площадь пиков уменьшается, в связи с чем можно сделать вывод о снижении концентрации Phe, вызванном его разрушением. Пик 1166 см^{-1} соответствует колебаниям в ароматических аминокислотах. Аналогично данным ранее опубликованной статьи, пик сдвигается в сторону

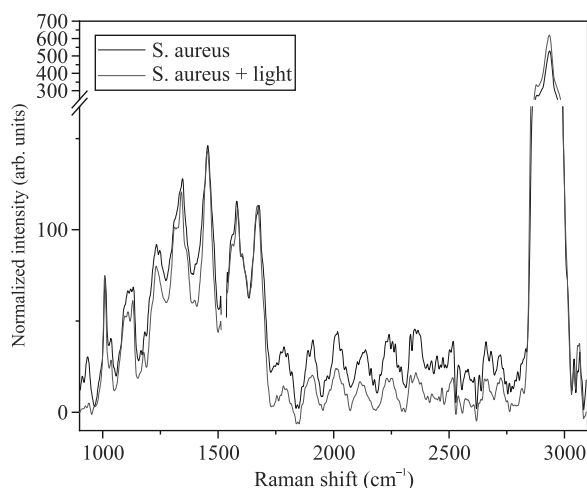


Рис. 8. (Цветной онлайн) Усредненные спектры КР бактерий *S.aureus* на пленке ZnO/CuO без освещения (черная линия, “*S.aureus*”) и после экспонирования светом в течение 1 ч (красная линия, “*S.aureus* + light”) в диапазоне 900–3100 cm^{-1}

меньших волновых чисел, и его площадь уменьшается [34].

Амид III в спектрах КР представлен в виде пиков 1249, 1293 cm^{-1} . Все пики сдвигаются в сторону меньших волновых чисел, сужаются, их площадь уменьшается. Аналогичная динамика наблюдалась в работе [35] Амид II характеризуется пиками 1435, 1552 cm^{-1} . Полоса 1435 cm^{-1} исчезает после экспонирования, 1552 cm^{-1} сдвигается в сторону больших волновых чисел до 1559 cm^{-1} , уширяется, площадь под кривой увеличивается. Пик 1552 cm^{-1} также иллюстрирует вклад триптофана. Еще один пик, отнесенный к триптофану, расположен в области 1308 cm^{-1} , и его ширина уменьшается после экспонирования. Колебания амида I отображены в спектрах КР в виде полос 1621, 1646 cm^{-1} (β -листы), 1663 (α -спирали), 1678 (β -листы), 1696 cm^{-1} (β -витки). Пик 1646 cm^{-1} исчезает после экспонирования, все остальные пики демонстрируют сужение и уменьшение площади. Кроме того, в спектрах второй производной появляется слабый пик в области 1687 cm^{-1} , который отображает разупорядоченное состояние амида I (random coil) [25]. Пик 1621 cm^{-1} демонстрирует сдвиг до 1623 cm^{-1} и увеличение площади почти в 2 раза; возможно, данный пик также характеризует разупорядоченное состояние амида I. 1801 cm^{-1} также сужается и его площадь уменьшается. Пик 1361 cm^{-1} , отнесенный к C-H колебаниям в белках, исчезает.

4. В данной работе было проведено исследование антибактериальных свойств пленок ZnO/CuO, активируемых при освещении светодиодной лампой со

спектром излучения, близким к естественному солнечному свету, на примере бактериальной культуры *S.aureus*. Характеризация пленок была произведена методами СЭМ, ЭДС, РСА. Согласно полученным данным, был обеспечен однородный перенос оксида цинка на пленку CuO, в результате чего формировался субмикронный рельеф (средний масштаб рельефа ≈ 500 нм) с размерами кристаллитов ZnO и CuO порядка 30–40 нм.

Антибактериальные свойства пленок были связаны с возникновением пор в клеточной мембране вследствие фотоиндуцированного локального увеличения электрической напряженности до значения $\sim 1 \cdot 10^4$ В/см, соответствующего таковому для протекания необратимой электропорации. Данный эффект был объяснен возникновением разности потенциалов между полупроводником n -типа ZnO и полупроводником p -типа CuO. Согласно проведенным микробиологическим посевам, пленки ZnO/CuO не обладают антибактериальными свойствами без освещенности. Напротив, экспонирование привело к снижению бактериальной обсемененности на девять порядков – от значения 8×10^8 КОЕ/мл до 0.

КР спектры до и после экспонирования были проанализированы с помощью расчета параметров спектральных пиков, соответствующих молекулярным колебаниям в нуклеиновых кислотах, клеточной мембране и белках. Было детектировано исчезновение или деградация пиков, иллюстрирующих колебания A, G в нуклеиновых кислотах, что обусловлено разрушением ДНК в процессе электропорации. Также было выявлено нарушение вторичной структуры белков, а именно, снижение концентрации α -спиралей и β -листов и появление разупорядоченных форм амида I (random coil). Поскольку электропорация в значительной степени повреждает мембрану бактериальной клетки, было проведено детальное исследование спектральных полос, иллюстрирующих молекулярные колебания составляющих клеточной мембраны. Так, рост величины отношения интенсивностей КР пиков I_{1093}/I_{1129} , I_{1095}/I_{1064} иллюстрирует рост разупорядоченности цепочек липидов в мембране. Кроме того, интенсивность пиков НАМ и НАГ, входящих в состав клеточной стенки грамположительных микроорганизмов, уменьшается, а также наблюдается сдвиг одного из пиков в сторону больших волновых чисел, что свидетельствует о разрушении клеточной стенки.

Финансирование работы. Данная работа поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (соглашение # 075-15-2023-603).

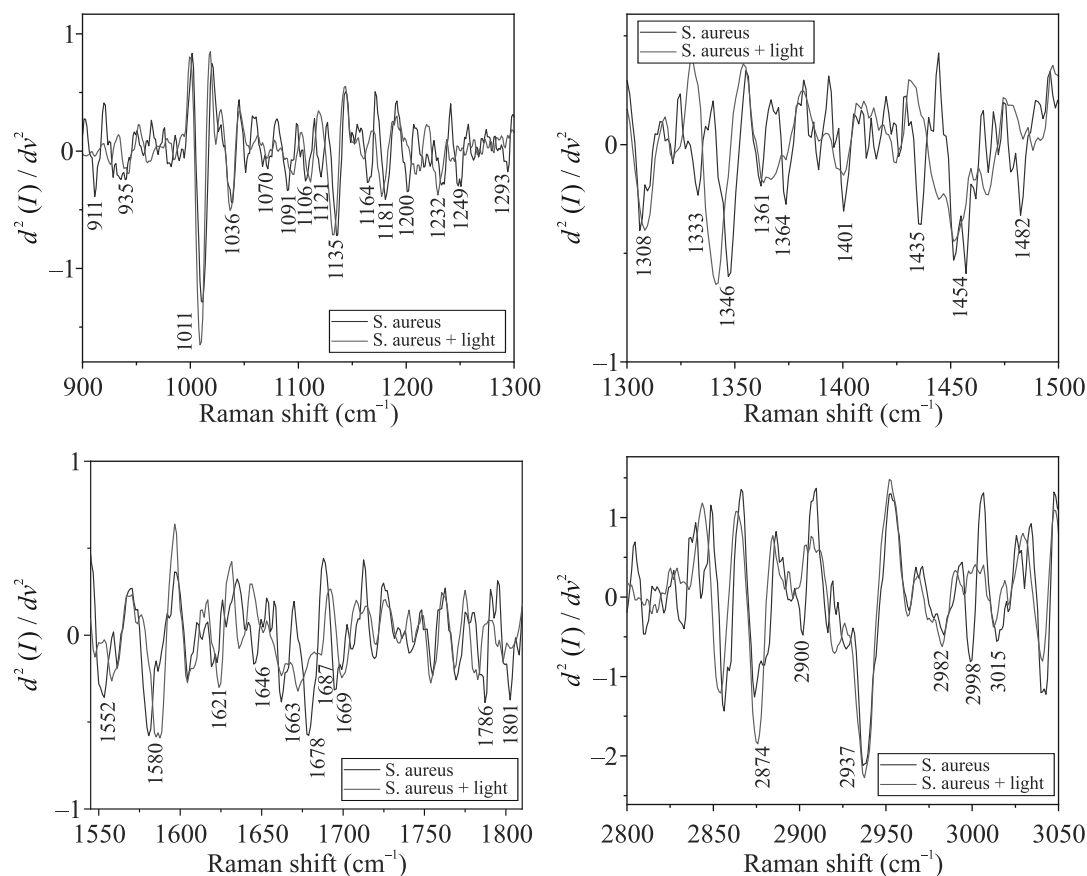


Рис. 9. (Цветной онлайн) Графики второй производной спектров КР культуры *S.aureus* до (черная линия, “*S.aureus*”) и после (красная линия, “*S.aureus* + light”) экспонирования, представленные в диапазонах 900–1300 см⁻¹ (a), 1300–1500 см⁻¹ (b), 1540–1810 см⁻¹ (c), 2800–3050 см⁻¹ (d)

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

1. R. D. C. Soltani, S. Jorfi, M. Safari, and M. S. Rajaei, *J. Environ. Manag.* **179**, 47 (2016).
2. F. Cao, T. Wang, and X. Ji, *Applied Surface Science* **471**, 417 (2019).
3. В. В. Томаев, В. А. Полищук, Н. Б. Леонов, Т. А. Вартамян, *Известия РАН. Серия физическая* **87**(10), 1446 (2023).
4. К. В. Ларионов, П. Б. Сорокин, *Успехи физических наук* **191**(1), 30 (2021).
5. В. П. Вейко, Ю. Ю. Карлагина, В. В. Романов, Р. М. Яцук, Е. Е. Егорова, Е. А. Зерницкая, А. И. Яременко, Г. Н. Черненко, С. Г. Одинцова, Г. В. Горный, *Фотоника* **14**(6), 510 (2020).
6. Н. А. Босак, А. Н. Чумаков, А. А. Шевченко, Л. В. Баран, А. Г. Кароза, В. В. Малютина-Бронская, А. А. Иванов, *Журнал прикладной спектроскопии* **88**(2), 221 (2021).
7. О. А. Реутова, В. А. Светличный, *Известия РАН. Серия физическая* **86**(7), 949 (2022).
8. А. Э. Муслимов, И. Д. Веневцев, Л. А. Задорожная, П. А. Родный, В. М. Каневский, *Письма в ЖЭТФ* **112**(8), 240 (2020).
9. С. Н. Багаев, С. М. Аракелян, А. О. Кучерик, Д. Н. Бухаров, О. Я. Бутковский, *Известия РАН. Серия физическая* **84**(12), 1682 (2020).
10. K. P. Sapkota, I. Lee, S. Shrestha, A. Islam, A. Hanif, J. Akter, and J. R. Hahn, *Journal of Environmental Chemical Engineering* **9**(6), 106497 (2021).
11. M. K. Hussain, N. R. Khalid, M. B. Tahir, M. Tanveer, T. Iqbal, and M. Liaqat, *Materials Science in Semiconductor Processing* **155**, 107261 (2023).
12. V. D. Thinh, V. D. Lam, T. N. Bach, N. D. Van, D. H. Manh, D. H. Tung, and N. T. H. Le, *J. Electron. Mater.* **49**, 2625 (2020).
13. J. Singh and R. K. Soni, *Applied Surface Science* **521**, 146420 (2020).
14. J. Trakulmututa, C. Chuaicham, S. Shenoy, A. Srihaow, K. Sasaki, and S. M. Smith, *Opt. Mater.* **133**, 112941 (2022).

15. N. D.Dien, P.T.T. Ha, X.H. Vu, T.T. Trang, T.D.T. Giang, and N.T. Dung, RSC Advances **13**(35), 24505 (2023).
16. Y. Lv, J. Liu, J. Liu, Z. Zhang, W. Zhang, A. Wang, F. Tian, W. Zhao, J. Yan, Mater. Chem. Phys. **267**, 124703 (2021).
17. L. Xu, Y. Zhou, Z. Wu, G. Zheng, J. He, and Y. Zhou, J. Phys. Chem. Solids **106**, 29 (2017).
18. N. Widiarti, J.K. Sae, and S. Wahyuni, Conference Series: Materials Science and Engineering **172**(1), 012036 (2017).
19. A. Al Baroot, M. Alheshibri, Q. A. Drmash, S. Akhtar, E. Kotb, and K.A. Elsayed, Arabian Journal of Chemistry **15**(2), 103606 (2022).
20. K.E. Kone, A. Bouich, D. Soro, and B.M. Soucase, Opt. Quantum Electron. **55**, 616 (2023); <https://doi.org/10.1007/s11082-023-04892-9>.
21. A. Sanchis, A.P. Brown, M. Sancho, G. Martinez, J.L. Sebastian, S. Munoz, and J.M. Miranda, The European Bioelectromagnetics Association **28**(5), 393 (2007).
22. D.M. Fernandes, R. Silva, A.W. Hechenleitner, E. Radovanovic, M.C. Melo, and E.G. Pineda, Mater. Chem. Phys. **115**(1), 110 (2009).
23. A. Alsulmi, N.N. Mohammed, A. Soltan, M.A. Messih, and M.A. Ahmed, RSC Advances **13**(19), 13269 (2023).
24. T. Kotnik, W. Frey, M. Sack, S.H. Meglič, M. Peterka, and D. Miklavčič, Trends Biotechnol **33**, 480 (2015).
25. G. Pezzotti, J. Raman Spectrosc. **52**(12), 2348 (2021).
26. G. Azemtsop Matanfack, A. Pistiki, P. Rosch, and J. Popp, Life **11**(10), 1003 (2021).
27. F.U. Ciloglu, A.M. Saridag, I.H. Kilic, M. Tokmakci, M. Kahraman, and O. Aydin, Analyst **145**(23), 7559 (2020).
28. S. Pramanik, S. Chatterjee, A. Saha, P.S. Devi, and G. Suresh Kumar, J. Phys. Chem. B **120**(24), 5313 (2016).
29. K. Gardikis, S. Hatziantoniou, K. Viras, M. Wagner, and C. Demetzos, Int. J. Pharm. **318**(1–2), 118 (2006).
30. M. He, T. Wu, S. Pan, and X. Xu, Applied Surface Science **305**, 515 (2014).
31. I.R. Hill and I.W. Levin, J. Chem. Phys. **70**(2), 842 (1979).
32. M. He, T. Wu, S. Pan, and X. Xu, Appl. Surf. Sci. **305**, 515 (2014).
33. A.C. Williams and H.G.M. Edwards, J. Raman Spectrosc. **25**(7–8), 673 (1994).
34. I. Saraeva, D. Zayarny, E. Tolordava, A. Nastulyavichus, R. Khmel'nitsky, D. Khmelenin, S. Shelygina, and S. Kudryashov, Chemosensors **11**(7), 361 (2023).
35. L. Cui, P. Chen, S. Chen, Z. Yuan, C. Yu, B. Ren, and K. Zhang, Anal. Chem. **85**(11), 5436 (2013).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 120

Выпуск 2

25 июля 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>

Рождение позитронов космическими лучами

И. М. Дремин, Д. О. Чернышов¹⁾

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

Поступила в редакцию 30 мая 2024 г.

После переработки 14 июня 2024 г.

Принята к публикации 20 июня 2024 г.

Показано, что электромагнитные взаимодействия протонов космических лучей дают заметный вклад в рождение позитронов. Это обусловлено малостью порога появления электрон-позитронной пары по сравнению с порогами рождения пионов в сильных взаимодействиях в сочетании с быстрым падением энергетического спектра космических лучей. При этом рожденные позитроны оказываются мягкими, а их аннигиляция с электронами среды приводит к появлению наблюдаемой линии 511 кэВ в спектре гамма-квантов.

DOI: 10.31857/S1234567824140015, EDN: AYCLBQ

1. Введение. Наблюдения галактических гамма-квантов выявили заметную структурность их спектра с резким пиком при энергии 511 кэВ и плавным спадом при более высоких энергиях (см. недавний обзор [1]). Появление пика естественным образом связывается с рождением мягких позитронов и их последующей аннигиляцией с атомными электронами окружающей среды. Общее число аннигиляций позитронов в Галактике, в соответствии с измеренной интенсивностью электрон-позитронной линии 511 кэВ, составляет около 5×10^{43} анн/с. При этом примерно 2×10^{43} аннигиляций приходится на галактический балдж, и 3×10^{43} соответствуют диску Галактики. Происхождение таких позитронов на данный момент точно не известно.

Одним из источников могут служить распады радиоактивных изотопов ^{26}Al и ^{44}Ti при взрывах сверхновых. Темпы производства позитронов в Галактике путем распада этих ядер составляют, соответственно, 3×10^{42} и $2 \times 10^{42} e^+/с$, что на порядок ниже темпа, требуемого для обеспечения наблюдаемой интенсивности линии 511 кэВ. В отношении же других источников, включающих распад ^{56}Ni , а также рождение электрон-позитронных пар в магнитосферах пульсаров и компактных двойных систем, существуют лишь теоретические оценки [1].

Другим источником могут быть взаимодействия космических лучей со средой, в составе которых наиболее широко представлены протоны. Поэтому здесь мы ограничимся анализом протон-протонных взаимодействий. При этом новым элементом будет утверждение о том, что помимо сильных взаимодействий с рождением пионов важную роль могут

играть и ультрапериферические процессы с образованием электрон-позитронных пар в электромагнитных полях сталкивающихся протонов. Такая гипотеза высказывалась нами и ранее [2, 3]. Основные оценки приведены ниже.

Производство позитронов космическими лучами за счет сильных взаимодействий поддается ограничению по генерации сопутствующего гамма-излучения из-за распада нейтральных пионов. В работе [4] дана его оценка, равная $1-2 \times 10^{42} e^+/с$. Поскольку данная оценка привязана к экспериментально наблюдаемой интенсивности гамма-излучения, ее можно считать достаточно надежной. При этом, как видно, такой вклад космических лучей в производство позитронов даже в диске составляет не более 10 % от требуемых значений.

Характерным отличием ультрапериферических и сильных процессов является разница в энергиях, при которых они начинают проявлять себя. За счет малости электронных масс по сравнению с массами пионов позитроны начинают рождаться электромагнитно при заметно меньших энергиях протонов, нежели те, которые возникают из распадов π^+ -мезонов. Конкуренция степенного спада спектра энергий протонов в космических лучах с ростом сечений соответствующих процессов становится решающей в определении их относительной роли.

Помимо этого, важно отметить, что “ультрапериферические” позитроны оказываются намного мягче “сильных”. Поэтому они будут аннигилировать с образованием наблюдаемой линии 511 кэВ, тогда как для позитронов, рожденных в сильных взаимодействиях, для образования линии требуется охлаждение до нерелятивистских энергий. В результате формируется континуум при более высоких энергиях

¹⁾e-mail: chernyshov@lpi.ru

ях (см., например, [5]). Таким образом, в отличие от “ультрапериферических” позитронов, лишь малая доля произведенных “сильных” позитронов вносит вклад в излучение в линии 511 кэВ.

2. Пороги рождения позитронов в ультрапериферических и сильных взаимодействиях. Необходимым условием рождения новых частиц при столкновении протонов является наличие достаточной энергии. Это условие формулируется естественным образом в их системе центра масс (с.ц.м.) в виде равенства на пороге полной энергии соударения $\sqrt{s_{th}}$ сумме масс всех частиц в конечном состоянии

$$\sqrt{s_{th}} = \sum_i m_i. \quad (1)$$

В астрофизических приложениях удобнее использовать лабораторную систему (л.с.) покоя мишени. Лоренц-инвариантность s приводит к пороговой энергии налетающего протона в этой системе, равной

$$E_{lab} = \frac{s_{th}}{2m_p} - m_p = m_p \gamma = E_k + m_p = \sqrt{p_{lab}^2 + m_p^2}, \quad (2)$$

где m_p – масса протона, $\gamma = 1/\sqrt{1-\beta^2}$ и β обозначают Лоренц-фактор и скорость протона в л.с., а E_k и p_{lab} – его кинетическую энергию и импульс.

Используя эти формулы и значения масс частиц, легко вычислить пороги процессов рождения позитронов в ультрапериферических и сильных взаимодействиях протонов.

• $pp \rightarrow ppe^+e^-$

Процесс возможен уже при очень низких нерелятивистских значениях кинетической энергии и импульса налетающего протона $E_k = 2.05$ МэВ и $p_{lab} = 60$ МэВ. Соответственно, $\beta = 0.066$, $\gamma = 1.0022$.

• $pp \rightarrow pn\pi^+$

Пороговые значения кинетической энергии и импульса заметно выше из-за более высокой массы пиона – $E_k = 290$ МэВ и $p_{lab} = 780$ МэВ. Соответственно, $\beta = 0.64$, $\gamma = 1.30$, т.е. процесс начинается при субрелятивистских энергиях.

3. Позитроны в ультрапериферических и сильных взаимодействиях космических лучей. Для расчета долей позитронов в космических лучах надо вычислить произведение инклюзивных сечений соответствующих процессов на энергетический спектр космических лучей.

В данной работе мы воспользуемся консервативной оценкой “сверху” на спектр галактических космических лучей, взяв его в степенном виде:

$$dn/dp_{lab} \propto p_{lab}^{-2.7}. \quad (3)$$

Очевидно, что данная аппроксимация спектра космических лучей корректна лишь в ограниченной об-

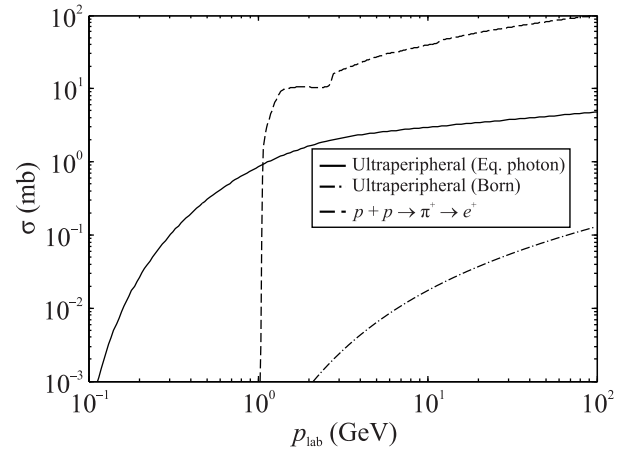


Рис. 1. Сплошная кривая воспроизводит сечение рождения электрон-позитронной пары, вычисленное нами [3] с помощью метода эквивалентных фотонов. Пунктирная кривая отвечает инклюзивному сечению неупругого рождения π^+ -мезонов в сильных взаимодействиях, широко используемому при расчетах в космических лучах [6, 7]. Наглядно видно большое отличие пороговых импульсов. Штрих-пунктирная кривая соответствует сечению рождения электрон-позитронной пары, полученному в борновском приближении [8]

ласти энергий. Однако, как мы покажем ниже, из-за сильной зависимости сечения производства позитронов от энергии протонов важными являются импульсы протонов выше 100 МэВ, где формула (3) верна по порядку величины.

Инклюзивные сечения рождения π^+ доступны из экспериментов (см. рис. 1). К сожалению, экспериментальных данных о сечении ультрапериферических процессов в этой области энергий нет. Поэтому приходится использовать теоретические оценки, но и они существуют только при асимптотически высоких энергиях. Экстраполяции известных аналитических выражений в область низких энергий неоднозначны и отличаются для результатов, полученных в борновском приближении (оценки снизу) и приближении эквивалентных фотонов (оценки сверху) (см. [3]). В результате свертки сечений со спектром космических лучей получаются кривые, приведенные на рис. 2. Наглядно видно, что позитроны рождаются в ультрапериферических процессах, протекающих при значительно меньших энергиях протонов, нежели процессы сильных взаимодействий.

Максимумы кривых сдвинуты по импульсам почти на 1 ГэВ, т.е. и рожденные позитроны обладают заметно меньшей энергией в ультрапериферии. Максимум рождения позитронов на правой кривой рас-

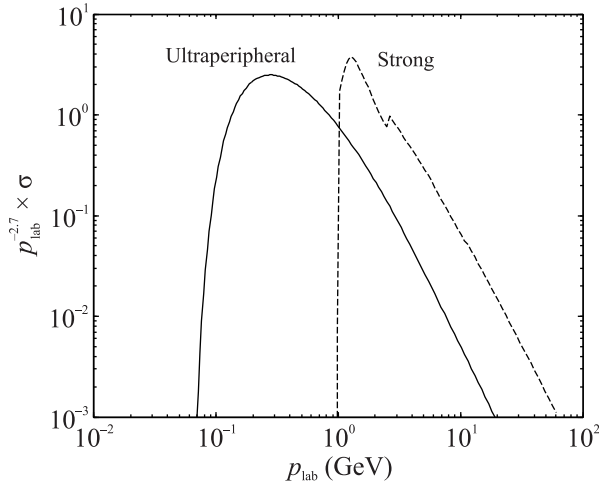


Рис. 2. Доли рождения позитронов в ультрапериферических (слева) и сильных (справа) взаимодействиях протонов космических лучей с импульсом p_{lab} с протонами среды

положен при импульсах протонов вблизи 1.1 ГэВ. Его положение определяется резонансом $\Delta(1232)$. Порог рождения пионов в сильных взаимодействиях оказывается даже выше приведенной ранее оценки импульса в 780 МэВ. Рост неупругого сечения начинается фактически слева от максимума при $p_{\text{lab}} = 1.07$ ГэВ, если в приводимых выше оценках учесть ширину резонанса 60 МэВ. Это ясно видно и на рис. 1.

Относительные доли ультрапериферических и сильных взаимодействий протонов получаются в виде отношения площадей под соответствующими кривыми, которое равно

$$R \approx 0.38. \quad (4)$$

Таким образом, если оценка методом эквивалентных фотонов верна, ультрапериферические процессы рождения электрон-позитронных пар способны внести заметный вклад в долю позитронов в космических лучах. Роль ультрапериферического процесса усиливается при учете взаимодействий тяжелых ионов (за счет пропорциональности сечений квадратам их зарядов) примерно на 20 %, если оценить ее как $\sum_i \rho_i (Z_i^2 - 1)$, где ρ_i – доли ионов с зарядом Z_i в космических лучах.

Следует особо отметить важную разницу в спектрах позитронов из двух обсуждаемых источников. Соответственно этому проявится и различие в спектрах гамма-квантов при аннигиляции позитронов с электронами среды. В частности, мягкие позитроны будут давать заметный вклад в наблюдаемый (но пока необъясненный) пик гамма-квантов с энергией 511 кэВ. Как видно на рис. 2, максимум рождения

ультрапериферических пар приходится на протоны с импульсом около 300 МэВ, т.е. со скоростью $\beta \approx 0.3$. Компоненты пары движутся примерно с той же скоростью. Если позитрон рожденной пары аннигилирует с покоящимся атомным электроном среды, то их полная энергия переходит к гамма-квантам. Массы аннигилирующих частиц и начальный импульс позитрона p_p обеспечивают продольные p_l и поперечные p_t компоненты импульсов гамма-квантов, которые согласно законам сохранения равны $p_l = p_p/2$ и $p_t = \sqrt{s_{ep}}/2$, где $s_{ep} = p_p^2 + 4m_e^2$. Соответственно, энергии рожденных фотонов ω_γ будут равны

$$\omega_\gamma = 0.5 \sqrt{s_{ep} + p_p^2} = m_e \sqrt{1 + \frac{\beta^2}{2}} \approx 1.02 m_e. \quad (5)$$

Значит, такие гамма-кванты дают существенный вклад в наблюдаемый пик. Возможные потери импульса позитроном на пути до встречи с электроном среды приводят к уменьшению величины скорости β и приближению энергий гамма-квантов к 511 кэВ.

В работе [3] мы подробно сопоставили результаты вычислений ультрапериферических сечений в борновском приближении и методом эквивалентных фотонов. Их экстраполяции в область субрелятивистских энергий протонов неоднозначны и позволяют говорить лишь о верхнем и нижнем пределах в этой области. Это наглядно видно на рис. 1. В случае борновского приближения (т.е. при оценке по нижнему пределу) отношение R становится пренебрежимо малым и заметного влияния ультрапериферический процесс оказывать не будет.

4. Заключение. Мы сравнили два процесса, приводящих к рождению позитронов при взаимодействии космических лучей с фоновой плазмой: производство позитронов при сильных взаимодействиях через распад заряженных пионов и производство электрон-позитронных пар в электромагнитных взаимодействиях. Приведенные в рамках метода эквивалентных фотонов оценки показывают, что рождение e^+e^- -пар при взаимодействии космических лучей с веществом способно приводить к потокам позитронов, сопоставимым с рожденными при сильных взаимодействиях. Важным отличием является то, что электромагнитные взаимодействия рожают пары с низкой энергией, не превышающей нескольких МэВ, тогда как при сильных взаимодействиях позитроны получают энергию 100 МэВ и выше. Таким образом, электромагнитные взаимодействия космических лучей с плазмой могут оказывать вклад в электрон-позитронную аннигиляционную линию, сопоставимый или даже превосходящий вклад от их сильных взаимодействий.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект #23-22-00068, <https://rscf.ru/project/23-22-00068/>).

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

1. T. Siegert, *Astrophys. Space Sci.* **368**, 27 (2023).
2. I. M. Dremin, *Universe* **7**, 42 (2021).
3. D. Chernyshov, V. Dogiel, and I. Dremin, *Physics* **6**, 251 (2024).
4. T. A. Porter, I. V. Moskalenko, A. W. Strong, E. Orlando, and L. Bouchet, *Astrophys. J.* **682**, 400 (2008).
5. N. Guessoum, P. Jean, and W. Gillard, *Astron. Astrophys.* **436**, 171 (2005).
6. T. Kamae, N. Karlsson, T. Mizuno, T. Abe, and T. Koi, *Astrophys. J.* **647**, 692 (2006).
7. S. R. Kelner, F. A. Aharonian, and V. V. Bugayov, *Phys. Rev. D* **74**, 034018 (2006).
8. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Теоретическая физика. Квантовая электродинамика*, Наука, М. (1989).

Свойства центральных областей гало темной материи в модели с бампом в спектре мощности возмущений плотности

Ю. Н. Ерошенко⁺¹⁾, В. Н. Лукаш^{*1)}, Е. В. Михеева^{*1)}, С. В. Пилипенко^{*1)}, М. В. Ткачев^{*1)}

⁺Институт ядерных исследований РАН, 117312 Москва, Россия

^{*}Астрокосмический центр ФИАН, 117997 Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 мая 2024 г.

После переработки 20 мая 2024 г.

Принята к публикации 17 июня 2024 г.

Телескопом им. Дж. Уэбба было обнаружено неожиданно большое число галактик с массами $\sim 10^9 - 10^{10} M_\odot$ на красных смещениях $z \geq 9$. Возможным объяснением повышения функции масс может служить наличие локального максимума (бампа) в спектре мощности возмущений плотности на соответствующем масштабе. В данной работе мы отмечаем, что одновременно с ростом функции масс, галактики из области бампа должны иметь большую плотность (компактность) по сравнению с космологическими моделями без бампа. Эти более компактные галактики частично вошли в состав больших галактик и подверглись приливному гравитационному разрушению. Они в меньшей степени, чем “обычные” галактики той же массы, поддавались разрушению, и часть из них могли дожить до $z = 0$ и сохраниться на периферии некоторых галактик. Мы провели численное моделирование образования и эволюции компактных гало в кубе $(47 \text{ Мпк})^3$ с $(1024)^3$ частиц темной материи в диапазоне красных смещений от 120 до 0 и обсудили наблюдательные следствия наличия таких галактик в современной Вселенной.

DOI: 10.31857/S1234567824140027, EDN: CEGGVE

1. Введение. Телескоп им. Дж. Уэбба открыл новые возможности в исследовании эволюции Вселенной, позволив наблюдать первые галактики и квазары в конце так называемой эпохи “темных веков”, длящейся от рекомбинации до реионизации водорода. На красных смещениях $z > 9$ телескопом им. Дж. Уэбба было обнаружено неожиданно большое количество галактик с массами $\sim 10^9 - 10^{10} M_\odot$ (см. [1–5]) – заметно больше, чем предсказывает стандартная космологическая Λ CDM-модель [6]. Среди положений стандартной модели – степенной спектр первичных возмущений плотности, наклон и амплитуда которого определяются по наблюдениям анизотропии реликтового излучения и по обилию галактик (нормировка на σ_8). При этом на малых масштабах, с сопутствующим волновым числом $k > 1 \text{ Мпк}^{-1}$, спектр возмущений плотности определен в меньшей степени [7]. Одной из возможностей объяснить наблюдаемый избыток галактик является гипотеза о нестепенной форме начального спектра возмущений, например, с дополнительным максимумом или бампом [8, 9]. Такой бамп может быть следствием наличия в потенциале инфлатона упло-

щенного участка [10, 11] или быть результатом других физических процессов в ранней Вселенной (см. обзор [12]).

Наличие бампа означает, что галактики с массами, соответствующими положению бампа, образовались раньше, чем это происходило бы в модели без бампа. В свою очередь, более раннее образование галактик приводит к тому, что они имеют большую плотность²⁾ и более компактны. Таким образом, при наличии бампа в спектре возмущений плотности во Вселенной должен существовать отдельный класс галактик, которые мы будем называть компактными галактиками (КГ), чтобы отличать их от “обычных” галактик с такими же массами. Целью данной работы является исследование наблюдательных следствий наличия во Вселенной КГ. В отличие от предыдущих работ [9, 14], ориентированных на большие z , в данной работе внимание акцентируется на свойствах КГ при $z = 0$. Для решения поставленной задачи нами был выполнен ряд аналитических расчетов и проведено численное моделирование образования

¹⁾e-mail: eroshenko@inr.ac.ru; lukash@asc.rssi.ru; helen@asc.rssi.ru; spilipenko@asc.rssi.ru; mtkachev@asc.rssi.ru

²⁾В модели сферического коллапса средняя плотность формирующихся объектов превышает среднюю плотность Вселенной на момент их образования в $\kappa = 18\pi^2$ раз (см., например, [13]).

и эволюции КГ в кубе $(47 \text{ Мпк})^3$ (что эквивалентно $(32 h^{-1} \text{ Мпк})^3$) с числом частиц $(1024)^3$ в диапазоне красных смещений от 120 до 0.

Теория не предсказывает конкретных параметров бампа, они могут варьироваться в широких пределах. В [9, 14] был рассмотрен ряд таких моделей и показано, что модели, в которых бамп имеет характерное волновое число $k_0 = 4\text{--}20 \text{ Мпк}^{-1}$, демонстрируют заметные отличия от ΛCDM на больших красных смещениях в функции масс и пространственном распределении галактик. В работе [9] предпочтение было отдано модели под названием *gauss_1* с положением бампа на $k_0 = 4.69 \text{ Мпк}^{-1}$, так как она лучше других позволяет объяснить наблюдения массивных галактик на $z > 10$ телескопом им. Дж. Уэбба.

При наличии бампа иерархическое сгущивание темной материи (ТМ) протекает иначе, чем это происходит в модели без бампа. На каждом красном смещении более массивных галактик в модели с бампом больше. Поэтому есть хорошие шансы выделить в наблюдательных данных класс КГ, генетически связанных с бампом. По этой причине, а также потому, что бамп с таким сравнительно небольшим k_0 требует умеренного численного разрешения, мы выбрали эту модель как основную для выполнения численных расчетов. Аналитическая оценка функции масс Пресса–Шехтера [15], подтверждаемая с хорошей точностью прямым численным моделированием, показывает, что среднее расстояние между КГ для модели *gauss_1* из [9] составляет $\sim 1 \text{ Мпк}$. Такой же порядок величины имеет расстояние от нас до ближайшей КГ. В данной работе также рассмотрена судьба КГ, вошедших в состав других галактик.

Одним из перспективных направлений в поиске КГ является регистрация сигналов от аннигиляции частиц ТМ в КГ. Поиск аннигиляционного излучения из центра Галактики и других галактик является активной областью современных исследований. Гамма-излучение от галактики М31 в наблюдениях Fermi-LAT в диапазоне 0.3–100 ГэВ было выделено в работе [16] с достоверностью 4.7σ (см. также [17, 18]). Это излучение может создаваться космическими лучами, но аннигиляционная природа сигнала также возможна. В работе [19] было показано, что для детектирования гамма-излучения от галактики М87 и близких карликовых сфероидов не хватает примерно порядка величины в отношении сигнал–шум. КГ имеют плотности, в среднем, в 3.4 раза больше, чем обычные галактики, поэтому аннигиляционный сигнал от них, пропорциональный квадрату плотности, в ~ 11 раз больше. В связи с этим, в данной работе мы рассмотрели вопрос о перспективе наблюдения

КГ в гамма-диапазоне при благоприятных свойствах частиц ТМ.

Все аналитические и численные расчеты были выполнены для космологической модели с параметрами $\Omega_m = 0.31$, $\Omega_\Lambda = 0.69$, $\Omega_b = 0.048$, $h = 0.67$, $n_s = 0.96$ (см. [20]).

2. Формирование гало в модели с бампом. Следуя [9], рассмотрим спектр возмущений плотности, являющийся произведением стандартного спектра ΛCDM -модели и дополнительного фактора в виде гауссова бампа

$$1 + A \cdot \exp\left(-\frac{(\log(k) - \log(k_0))^2}{\sigma_k^2}\right), \quad (1)$$

где $A = 20$, $k_0 = 4.69 \text{ Мпк}^{-1}$, $\sigma_k = 0.1$ (модель *gauss_1*). Среднеквадратичная амплитуда $\sigma_0(R)$ относительного возмущения поля плотности $\delta \equiv \delta\rho/\rho$ при $z = 0$ ($t = t_0$), сглаженного на масштабе R , выражается через спектр мощности $P(k)$ следующим образом:

$$\sigma_0^2(R) = \frac{1}{2\pi^2} \int_0^\infty k^2 P(k) W^2(kR) dk, \quad (2)$$

где $W(x)$ – “окно” сглаживания. Если относительное возмущение плотности, экстраполированное к t_0 по линейной теории роста возмущений, равно δ_0 , то высота пика определяется как $\nu = \delta_0/\sigma_0$. Рисунок 1 иллюстрирует отношение дисперсий для спектров с бампом и для стандартной ΛCDM -модели. Для *gauss_1* (сплошная черная линия) это отношение достигает 1.5.

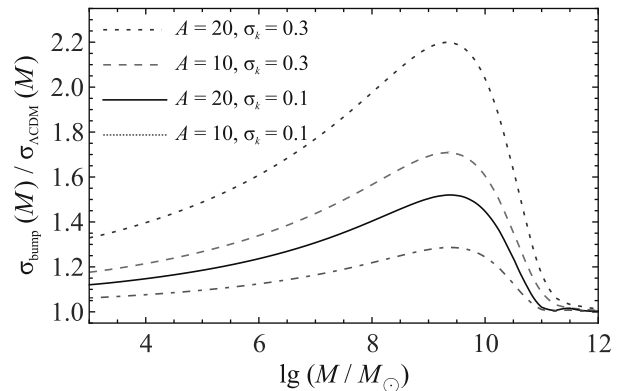


Рис. 1. (Цветной онлайн) Отношение дисперсий возмущений плотности моделей с бампом на $k_0 = 4.69 \text{ Мпк}^{-1}$ и разных A и σ_k , см. (1) и (2), и стандартной ΛCDM -модели

В модели сферического коллапса условие формирования гало (галактики) из пика высотой ν имеет вид

$$\nu \sigma_0 D(z) = \delta_c, \quad (3)$$

где $\delta_c = 3(12\pi)^{2/3}/20 \simeq 1.686$, а фактор роста возмущений плотности нормирован так, что $D(0) = 1$. Для заданных M и ν можно найти красное смещение z , при котором происходит формирование гало. Эти z показаны на рис. 2. Наиболее многочисленны объекты с $\nu \sim 1$, однако галактики, по-видимому, связаны с возмущениями с $\nu \sim 2$ [21]. Видно, что среднее значение $1 + z$, при котором происходит формирование галактик в области бампа, по сравнению с космологической моделью без бампа увеличивается примерно в 1.5 раза, а его средняя плотность

$$\bar{\rho}_s = \kappa \rho_m \Omega_m (1 + z)^3 \quad (4)$$

возрастет в $1.5^3 = 3.4$ раз, где $\kappa = 18\pi^2$. Тем самым, в области бампа сформируется новый класс компактных галактик. Вириальный радиус КГ

$$R = \left(\frac{3M}{4\pi\bar{\rho}_s} \right)^{1/3} \quad (5)$$

в 1.5 раз меньше, чем у галактик с той же массой из области вне бампа, т.е. КГ в среднем компактнее.

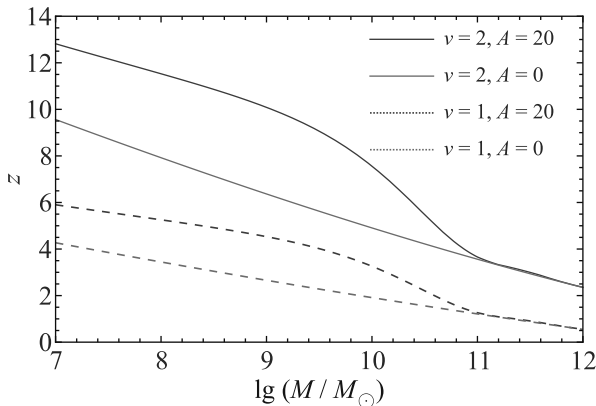


Рис. 2. (Цветной онлайн) Красное смещение, при котором происходит формирование гравитационно-связанных гало с массой M , для степенного спектра, т.е. при $A = 0$, (зеленые кривые), и для спектра с бампом $A = 20$ (красные кривые) в случае пиков плотности с высотами $\nu = 1$ (штрихованные кривые) и $\nu = 2$ (сплошные кривые). Другие параметры бампа $k_0 = 4.69 \text{ Мпк}^{-1}$ и $\sigma_k = 0.1$.

3. Компактные галактики, не вошедшие в состав других галактик. Для исследования эволюции ТМ были выполнены два численных моделирования методом N-тел в кубе с объемом $(47 \text{ Мпк})^3$, по 1024^3 частиц в каждом. Одна симуляция соответствовала модели *gauss_1*, вторая — стандартной ΛCDM модели. Размер куба и число частиц является результатом компромисса между высоким разреше-

нием (частота Найквиста должна существенно превышать масштаб бампа k_0 , и КГ должны содержать минимум несколько сотен частиц) и большим размером куба, с тем, чтобы основная мода возмущений (с длиной волны, равной стороне куба) не выходила на нелинейный режим при $z = 0$.

Начальные условия для симуляций были созданы на $z = 120$ при помощи общедоступного кода *ginnungagap*³⁾, спектр мощности материи определялся для каждой симуляции отдельно. Для стандартной ΛCDM -модели он генерировался с помощью общедоступного кода CLASS [22], а для модели с бампом — с применением функции (1). Для моделирования эволюции поля плотности был использован код *GADGET-2*⁴⁾ [23], который широко применяется для моделирования эволюции структуры Вселенной. Всего было сохранено 62 “мгновенных снимка” для каждой симуляции на интервалах красных смещений от $z = 25$ до $z = 0$. Анализ гало проводился с помощью кода *Rockstar*⁵⁾ [24]. Полученная карта проекции плотности ТМ показана на рис. 3.

Найденная в моделировании функция масс гало, не вошедших в состав более массивных гало к красным смещениям $z = 0$ и $z = 10$, в моделях с бампом и без бампа показана на рис. 4. Как уже было отмечено в работе [9], наличие бампа в спектре возмущений приводит к повышению плотности числа галактик на $z = 10$.

С теоретической точки зрения плотность числа независимых гало (не входящих в состав более массивных объектов) в момент t определяется формулой Пресса–Шехтера [13]

$$\frac{dn}{dM} = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{\bar{\rho}(z)}{M} \frac{\delta_c}{D(z)\sigma_0^2} \left| \frac{d\sigma_0}{dM} \right| \exp \left[-\frac{\delta_c^2}{2D(z)^2\sigma_0^2} \right], \quad (6)$$

где $\bar{\rho}(z)$ — средняя плотность ТМ. Сравнение (6) с результатами численного моделирования, показанное на рис. 4, демонстрирует отличное согласие на $z = 0$ и 10. Это дает основание полагать, что и современная функция масс гало на $z = 0$ хорошо воспроизводится формализмом Пресса–Шехтера.

Полагая, что выражение (6) адекватно описывает современные КГ в модели с бампом, получаем, что для гало с массами $M \sim 10^9 M_\odot$ плотность числа КГ в одном логарифмическом интервале масс $\Delta \ln M \sim 1$ составляет $\sim 0.46 \text{ Мпк}^{-3}$. Тогда среднее

³⁾ <https://github.com/ginnungagapgroup/ginnungagap>.

⁴⁾ <http://wwwmpa.mpa-garching.mpg.de/~volker/gadget/>.

⁵⁾ <https://bitbucket.org/gfstanford/rockstar>.

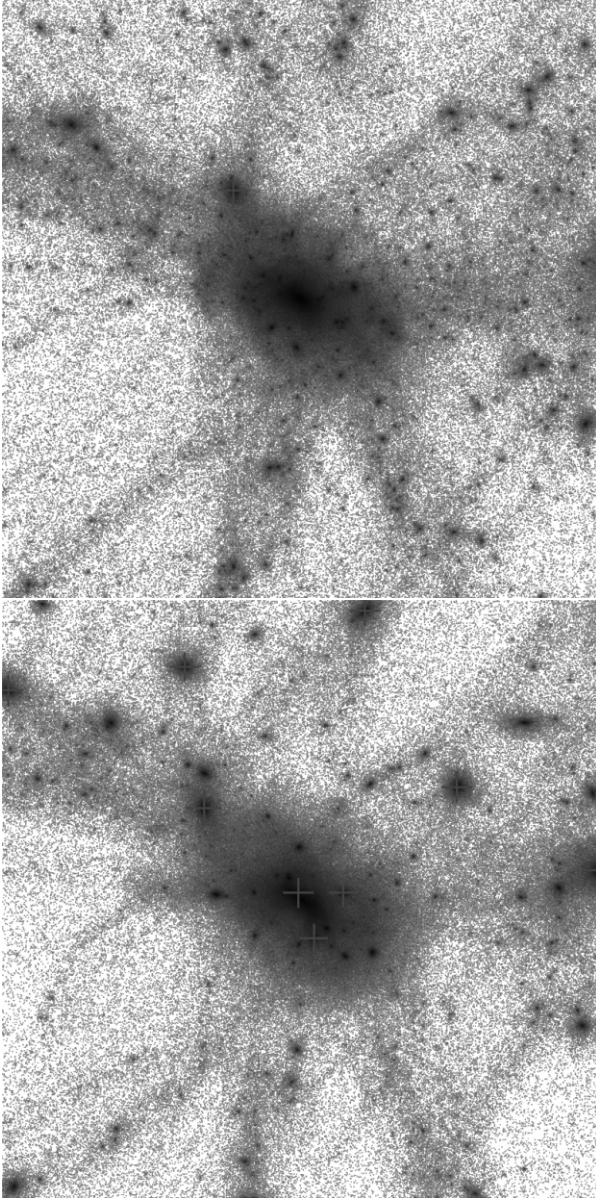


Рис. 3. (Цветной онлайн) Карта проекции плотности ТМ в численной модели в кубе со стороной 2 Мпк с центром на гало массой $10^{12} M_{\odot}$. Сверху: модель Λ CDM; снизу: модель с бампом. Крестиками показаны КГ, найденные по критерию вириальной массы $2 \times 10^{10} < M < 10^{11} M_{\odot}$

расстояние между соседними КГ можно оценить следующим образом

$$\bar{l} = (\bar{n})^{-1/3} \simeq 1.3 \text{ Мпк.} \quad (7)$$

Это расстояние по порядку равно расстоянию от нас до ближайшей КГ. Таким образом, на масштабе Местной Группы галактик можно ожидать ~ 1 КГ, не вошедшую в состав более массивных вириализован-

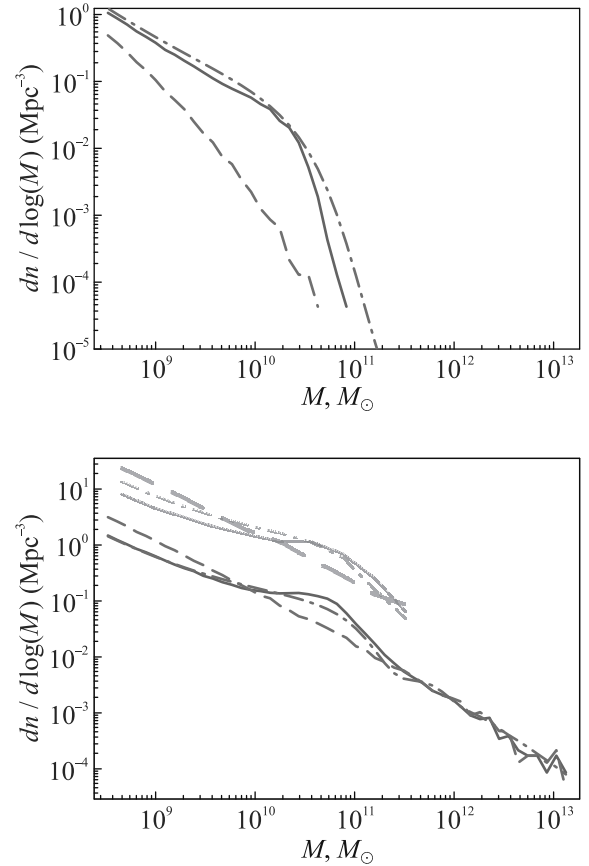


Рис. 4. (Цветной онлайн) Дифференциальные функции масс для моделей с разными спектрами мощности “в среднем” и в окрестности массивных гало (сверху: при $z = 10$, снизу: при $z = 0$). Тонкая сплошная линия – из численной модели для модели с бампом ($A = 20$), тонкая штриховая линия – для модели Λ CDM. Штрих-пунктирная линия – приближение Пресса-Шехтера для модели с бампом. Жирные линии – для моделей с бампом и без бампа в сферах радиусом 1 Мпк вокруг всех гало массами вблизи $10^{12} M_{\odot}$. В приближении Пресса-Шехтера для окрестностей гало (жирная штрих-пунктирная линия) функция масс умножена на 12

ных гало, хотя Местная Группа сама по себе является гравитационно связанной.

Массивные галактики, подобные нашей, как правило, образуются в элементах крупномасштабной структуры со сравнительно высокой плотностью, т.е. в “стенках” и “филаментах”. В этих местах плотность числа маломассивных гало может существенно отличаться от средней по Вселенной (см., например, [25, 26]). Для проверки эффекта “подложки” мы выделили все гало в симуляции в интервале масс $(0.9 - 1.1) \times 10^{12} M_{\odot}$ – их оказалось 19 – и все менее массивные гало в сферах радиусом 1 Мпк вокруг

центров этих массивных гало. Их функции масс также показаны на рис. 4. Проведенное численное моделирование дает на порядок большее число КГ в пределах 1 Мпк от центра нашей Галактики. Часть этих КГ, вероятно, вошли в состав гало больших галактик и были разрушены приливными гравитационными силами. Отметим, что проблема перепроизводства гало в численном моделировании известна давно и в стандартной Λ CDM модели.

4. Аннигиляция ТМ в компактных гало ТМ. Физическая природа ТМ во Вселенной пока остается неизвестной. В рамках одной из существующих моделей частицы ТМ это “вимпы”, например, нейтралино – легчайшие суперсимметричные частицы. Полагая, что частицы ТМ способны аннигилировать, и их масса m соответствует гамма-диапазону аннигиляционных фотонов, рассмотрим вопрос о том, насколько наличие бампа в спектре возмущений плотности способствует наблюдению аннигиляционного гамма-излучения от ближайших КГ.

Перспективным инструментом для регистрации аннигиляционного излучения от отдельных объектов являются атмосферные черенковские детекторы [27]. Они имеют хорошее пространственное разрешение, а наблюдение относительно высоких энергий позволяет с уверенностью исключать гамма-фон, быстро спадающий с ростом энергии. Далее мы следуем методу расчета, предложенному в работе [19] (см. Приложение).

Рассмотрим четыре значения масс $m = 0.1, 1, 10$ и 100 ТэВ, и для каждой массы рассчитываем число фотонов N_γ над порогом регистрации в трех случаях, когда $E^{\text{th}} = 50, 100$ и 250 ГэВ. В качестве сечения аннигиляции во всех случаях используем тепловое сечение $\langle\sigma v\rangle = 3 \times 10^{-26} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$. Три максимальных отношения S/N из указанных 10 наборов параметров показаны на рис. 5 для $A_{\text{eff}}T = 0.01 \text{ км}^2 \text{ год}^{-1}$.

Отметим, что в [19] для профиля плотности гало ТМ в галактике М87 используются данные по параметрам газа, находящегося в гидростатическом равновесии, а для профиля плотности карликовых сфероидов применяется профиль Кинга с ядром. В результате, в зависимости S/N от θ имеется максимум при $\theta > 0$. В наших расчетах для профиля плотности КГ был использован профиль Наварро–Френка–Уайта, для которого максимальный аннигиляционный поток идет от центра гало. В связи с этим, зависимость S/N от θ у нас получается монотонно спадающей с ростом θ .

Для достаточно надежной регистрации требуется $S/N \geq 3$, однако, как видно из рис. 5, в рассмотренных типичных случаях это отношение на порядок

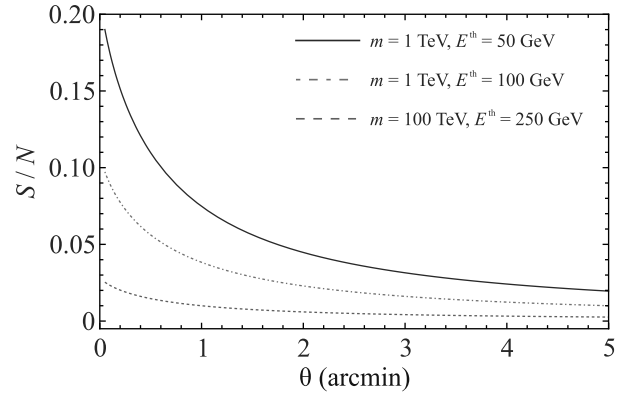


Рис. 5. (Цветной онлайн) Отношение сигнал/шум при наблюдении с расстояния 1 Мпк КГ, родившейся из возмущения с $\nu = 2$, в зависимости от углового расстояния от центра КГ для различным масс частиц ТМ m и различных порогов регистрации черенковского детектора E^{th} . Для КГ предполагается профиль плотности Наварро–Френка–Уайта, и масштаб r_c в профиле плотности соответствует угловому радиусу $2.2'$

меньше даже для центральной части КГ, которую можно было бы различить с помощью современных гамма-телескопов. Тем самым, мы приходим к выводу, что несмотря на увеличенный в 11.4 раза поток гамма-излучения, КГ не будут выделяться на небе как яркие гамма-источники из-за их большой удаленности.

Следует заметить, что наличие бампа в спектре мощности при $k_0 = 4.69 \text{ Мпк}^{-1}$ приводит к росту $\sigma_0(M)$ в широком интервале малых масс, см. рис. 1. Хотя увеличение $\sigma_0(M)$ при $M \leq 10^9 M_\odot$ имеет меньшую величину, все же это увеличение способствует формированию более компактных карликовых галактик, чем в модели без бампа. Это означает возможность наличия популяции темных карликовых галактик с повышенной плотностью, которые также могут быть объектом для поиска аннигиляционного сигнала в гамма-диапазоне.

5. Судьба компактных гало ТМ, вошедших в состав других галактик. Интересна судьба КГ, вошедших в состав других структур, например в состав Галактики, в сравнении с судьбой обычных галактик (субструктур) с теми же массами. Внутри больших объектов КГ испытывают динамическое трение и постепенно приближаются к центру большего объекта. Поскольку КГ в среднем плотнее обычных галактик, они менее подвержены приливному разрушению. Разрушение объектов в иерархической структуре на стадии ее формирования было рассмотрено в [28]. Используя полученные в [28] оценки, можно показать, что $\simeq 98\%$ КГ с $\nu \sim 1$ разрушаются

в иерархических структурах, но 60 % КГ с $\nu \sim 2$ выживают. Следовательно, такие КГ из области бампа войдут в состав больших объектов и будут оставаться там как индивидуальные сгущения ТМ до тех пор, пока под влиянием динамического трения не сблизятся с центром.

Рассмотрим вопрос о приливном радиусе и динамическом трении для КГ внутри Галактики. Будем считать, что профиль плотности гало Галактики $\rho_H(r)$ соответствует профилю Наварро–Френка–Уайта [29]

$$\rho_{\text{NFW}}(r) = \frac{\rho_c}{\frac{r}{r_c} \left(1 + \frac{r}{r_c}\right)^2}, \quad (8)$$

с параметрами $\rho_c = 1.44 \cdot 10^{-23} \text{ г/см}^3$ и $r_c = 5.95 \text{ кпк}$, полученными из условий, что в гало в пределах радиуса 100 кпк содержится масса $10^{12} M_\odot$, а дисперсия скорости на расстоянии 8.5 кпк от центра Галактики составляет 200 км с^{-1} . Обозначим массу гало Галактики внутри сферы радиуса r как $M_G(r)$. Вириальный радиус КГ, R , определяется формулой (5), а ее средняя плотность $\bar{\rho}_s$ равна (4).

Приливный радиус (расстояние от центра КГ, до которого разрушается ее гало) на заданном расстоянии r от центра Галактики с учетом действия центробежных сил дается выражением (см., например, [30])

$$r_t = r \left(\frac{M(r_t)/M_G(r)}{3 - \frac{d \ln M_G(r)}{d \ln r}} \right)^{1/3}. \quad (9)$$

Выясним, на каких радиусах r_d начинается разрушение КГ. Для этого положим $r_t = R$ и из (9) найдем

$$\bar{\rho}_s = 3\rho_c f(r_d/r_c), \quad (10)$$

где

$$f(x) = \frac{3 \ln(1+x)}{x^3} - \frac{4x+3}{x^2(1+x)^2}. \quad (11)$$

Расстояние r_d , определяемое уравнением (10), при котором начинается разрушение внешних слоев КГ, в зависимости от плотности КГ показано на рис. 6. Это расстояние мы будем называть “приливным расстоянием” – в отличие от приливного радиуса, который определяет радиус разрушающегося объекта на заданном r . Сравнение со случаем обычных галактик (когда $A = 0$) показывает, что КГ существенно устойчивее относительно приливных разрушений в большом гало.

Расчет сжатия круговой орбиты КГ в гало Галактики под влиянием динамического трения показывает, что граница по массе, при которой КГ с периферии Галактики за хаббловское время успевает

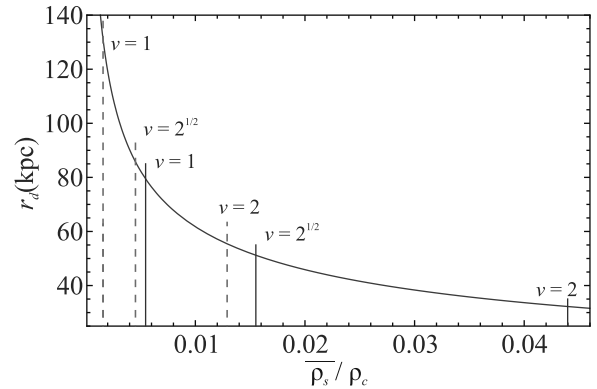


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость приливного расстояния (от центра хозяйского гало), с которого начинается разрушение внешних слоев КГ, от средней плотности КГ $\bar{\rho}_s$. Сплошные вертикальные линии соответствуют КГ, связанным с пиками плотности высотой $\nu = 1, \sqrt{2}$ и 2 при $M = 10^9 M_\odot$, $k_0 = 4.69 \text{ Мпк}^{-1}$, $\sigma_k = 0.1$ и $A = 20$. В случае обычных галактик стандартной ΛCDM -модели (с $A = 0$), соответствующие плотности показаны штрихованными линиями

опуститься к центру гало, лежит между $10^9 M_\odot$ и $10^{10} M_\odot$. Аналогичный результат для объектов с массой $> 0.01 M_G$ был получен в работе [31]. Таким образом, КГ, вошедшие в состав больших галактик и имеющие широкие орбиты, могут к настоящему времени оставаться на их периферии без существенного разрушения. В более точном подходе можно учесть потерю массы КГ по мере ее приближения к центру Галактики за счет приливного обдирания внешних слоев ТМ. Эта потерянная КГ ТМ будет давать вклад в итоговый профиль плотности Галактики, немного изменяя его.

6. Выводы. Для объяснения избытка массивных галактик на больших красных смещениях, наблюдаемого телескопом им. Дж. Уэбба, были предложены несколько моделей. Среди них астрофизическое объяснение через нестандартное звездообразование [32], космологический эффект изменения темпа расширения Вселенной [33] и первичные черные дыры [34, 35]. Также избыток галактик объяснялся наличием в спектре возмущений дополнительного максимума (бампа) на масштабе галактик [8, 9].

В данной работе рассмотрен ряд наблюдательных следствий наличия бампа в спектре космологических возмущений плотности. Прежде всего, наличие бампа приводит к повышенной плотности числа галактик на красном смещении $z \sim 10$, как уже было показано в работе [9]. В данной работе с помощью более детального расчета, это вывод подтвержден. Также было показано, что функция масс темных гало, воз-

никающая в модели с бампом, хорошо описывается формулой Пресса–Шехтера. Это позволило нам оценить среднее расстояние ~ 1 Мпк между соседними КГ в настоящее время.

Хотя наблюдения не показывают наличие КГ в пределах вириального радиуса нашей Галактики в настоящее время, такие КГ могли присутствовать в Галактике раньше и быть разрушены приливными силами. Возможно, КГ могут быть выявлены при детальном изучении субструктур в других крупных галактиках. Среди галактик Местной группы кандидатом на роль КГ может служить компактная эллиптическая галактика М32 – спутник Туманности Андромеды, имеющая массу $\sim 10^9 M_\odot$ и радиус $R = 2.5$ кпк, хотя М32 может являться и центральной частью более крупной и менее плотной (в среднем) галактики, ободранной приливными гравитационными силами хозяйской галактики М31.

Приложение

Расчет аннигиляционного сигнала. Опишем метод расчета аннигиляционного сигнала от КГ. Поток аннигиляционного излучения выражается через интеграл по лучу зрения (l.o.s.) [19]

$$\Phi_\gamma = \frac{1}{4\pi} \frac{\langle \sigma v \rangle N_\gamma}{m^2} \int_{\text{l.o.s.}} \rho^2 ds, \quad (\text{A1})$$

где N_γ – число фотонов при одном событии аннигиляции над энергетическим порогом регистрации детектора E^{th} . При наблюдении детектором с эффективной площадью A_{eff} в течение времени T из телесного угла с раствором θ (с центром на наблюдаемой КГ) будет зарегистрировано число фотонов

$$N_s = A_{\text{eff}} T \int_0^\theta \Phi_\gamma 2\pi \alpha d\alpha, \quad (\text{A2})$$

где α – угловое расстояние от центра КГ. Сравним число фотонов N_s с числом фотонов от фонового гамма-излучения N_{bg} , находим отношение “сигнал – шум” $S/N = N_s / \sqrt{N_{\text{bg}}}$. В качестве фона мы используем сумму сигналов, производимых в верхних слоях атмосферы электронной и адронной компонентами космических лучей [19].

Предположим, что профиль плотности КГ имеет вид (8) и рассчитаем сигнал от аннигиляции ТМ в гало КГ. Для примера будем полагать, что КГ находится на расстоянии 1 Мпк, параметр $r_c = 0.1R$, масса КГ в пределах вириального радиуса равна $M = 10^{10} M_\odot$, а её средняя плотность дается выражением (4), причем предполагается, что КГ произошла из пика плотности с $\nu = 2$.

В [19] выполнялось сканирование по пространству параметров суперсимметричных моделей. Мы рассмотрим один простой, но наиболее правдоподобный вариант (хотя других моделей исключать также нельзя), когда аннигиляция идет в адронном канале, т.е. через b -кварки. Тогда гамма-фотоны рождаются при распадах π^0 -мезонов, и спектры гамма-излучения при различных m имеют вид, приведенный, например, на рис. 3 работы [27]. Результат наших расчетов показан на рис. 5.

Финансирование работы. Работа была поддержана Российским научным фондом (грант номер 23-22-00259).

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

1. M. Castellano, A. Fontana, T. Treu et al. (Collaboration), *Astrophys. J.* **938**, L15 (2022).
2. R. P. Naidu, P. A. Oesch, P. van Dokkum et al. (Collaboration), *Astrophys. J.* **940**, L14 (2022).
3. S. L. Finkelstein, M. B. Bagley, P. Arrabal Haro et al. (Collaboration), *Astrophys. J.* **940**, L55 (2022).
4. C. T. Donnan, D. J. McLeod, J. S. Dunlop, R. J. McLure, A. C. Carnall, R. Begley, F. Cullen, M. L. Hamadouche, R. A. A. Bowler, D. Magee, H. J. McCracken, B. Milvang-Jensen, A. Moneti, and T. Targett, *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **518**, 6011 (2023).
5. I. Labbé, P. van Dokkum, E. Nelson, R. Bezanson, K. A. Suess, J. Leja, G. Brammer, K. Whitaker, E. Mathews, M. Stefanon, and B. Wang, *Nature* **616**, 266 (2023).
6. M. Boylan-Kolchin, *Nat. Astron.* **7**, 731 (2023).
7. S. Chabanier, M. Millea, and N. Palanque-Delabrouille, *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **489**, 2247 (2019).
8. H. Padmanabhan and A. Loeb, *Astrophys. J. Lett.* **953**, id.L4 (2023).
9. M. V. Tkachev, S. V. Pilipenko, E. V. Mikheeva, and V. N. Lukash, *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **527**, 1381 (2024).
10. A. A. Старобинский, Письма в ЖЭТФ **55**, 477 (1992) [A. A. Starobinskii, *JETP Lett.* **55**, 489 (1992)].
11. P. Ivanov, P. Naselsky, and I. Novikov, *Phys. Rev. D* **50**, 7173 (1994).
12. K. Inomata, M. Braglia, and X. Chen, *J. Cosmol. Astropart. Phys.* **4**, 007 (2023).
13. C. Lacey and S. Cole, *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **262**, 627 (1993).
14. S. V. Pilipenko, S. A. Drozdov, M. V. Tkachev, and A. G. Doroshkevich, arXiv: 2404.17803 [astro-ph.CO].
15. W. H. Press and P. Schechter, *Astrophys. J.* **187**, 425 (1974).

16. M. S. Pshirkov, V. V. Vasiliev, and K. A. Postnov, arXiv:1501.03460 [astro-ph.GA].
17. C. M. Karwin, S. Murgia, I. V. Moskalenko, S. P. Fillingham, A.-K. Burns, and M. Fieg, Phys. Rev. D **103**, 023027 (2021).
18. A. E. Egorov, Phys. Rev. D **108**, 043028 (2023).
19. E. A. Baltz, C. Briot, P. Salati, and J. Silk, Phys. Rev. D **61**, id.023514 (1999).
20. P. A. R. Ade, N. Aghanim, C. Armitage-Caplan et al. (Planck Collaboration), Astron. Astrophys. **571**, A16 (2014).
21. J. M. Bardeen, J. R. Bond, N. Kaiser, and A. S. Szalay, Astrophys. J. **304**, 15 (1986).
22. D. Blas, J. Lesgourgues, and T. Tram, J. Cosmol. Astropart. Phys. **07**, 034 (2011).
23. V. Springel, Mon. Not. Roy. Astron. Soc. **364**, 1105 (2005).
24. P. S. Behroozi, R. H. Wechsler, and H.-Y. Wu, Astrophys. J. **762**, 109 (2013).
25. R. K. Sheth and G. Tormen, Mon. Not. Roy. Astron. Soc. **308**, 119 (1999).
26. Н. А. Архипова, Б. В. Комберг, В. Н. Лукаш, Е. В. Михеева, Астрономический журнал **84**, 874 (2007) [N. A. Arkhipova, B. V. Komberg, V. N. Lukash, and E. V. Mikheeva, Astron. Rep. **51**, 787 (2007)].
27. M. Hütten and D. Kerszberg, Galaxies **10**, id.92 (2022).
28. V. Berezhinsky, V. Dokuchaev, and Y. Eroshenko, Phys. Rev. D **77**, 083519 (2008).
29. J. F. Navarro, C. S. Frenk, and S. D. M. White, Astrophys. J. **462**, 563 (1996).
30. F. C. van den Bosch, G. Ogiya, O. Hahn, and A. Burkert, Mon. Not. R. Astron. Soc. **474**, 3043 (2018).
31. G. Taffoni, L. Mayer, M. Colpi, and F. Governato, ASP Conf. Proc., ed. by R. Fusco-Femiano and F. Matteucci. San Francisco, Astron. Soc. Pac. (2002), v. 253, p. 273; ISBN: 1-58381-093-5.
32. J. Mirocha and S. R. Furlanetto, Mon. Not. Roy. Astron. Soc. **519**, 843 (2023).
33. N. Menci, M. Castellano, P. Santini, E. Merlin, A. Fontana, and F. Shankar, Astrophys. J. Lett. **938**, L5 (2022).
34. B. Liu and V. Bromm, Astrophys. J. Lett. **937**, id.L30 (2022).
35. S.-Y. Guo, M. Khlopov, X. Liu, L. Wu, Y. Wu, and B. Zhu, arXiv:2306.17022 [hep-ph].

Возможности спектроскопии пробного поля для определения структуры возбужденных состояний в кооперативной системе двух органических молекул

Е. А. Тарасевич^{+*1)}, М. Г. Гладуш⁺

⁺ Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, Троицкое обособленное подразделение, 108840 Троицк, Москва, Россия

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

Поступила в редакцию 21 июня 2024 г.

После переработки 29 июня 2024 г.

Принята к публикации 30 июня 2024 г.

Рассмотрен вопрос о применимости метода измерения спектров усиления и ослабления слабого лазерного пучка в системе квантовых излучателей, возбуждаемых резонансным управляющим полем, для изучения кооперативной фотолюминесценции. Приведены результаты расчета спектров усиления и ослабления пробного сигнала в системе двух квантовых излучателей с диполь-дипольным взаимодействием. Расчеты проведены для условий наблюдения кооперативной фотолюминесценции пары примесных молекул, как описанных в литературе, так и близких к ним. Полученные зависимости показывают структуру возбужденных коллективных состояний молекул, которая может быть использована для восстановления положений молекул в матрице и определения разницы их фотофизических свойств. Таким образом, усиление и ослабление пробного сигнала может использоваться для анализа фотолюминесценции квантово-спутанных частиц и для преобразования световых сигналов.

DOI: 10.31857/S1234567824140039, EDN: LDRFIQ

1. Введение. Фотолюминесценция (ФЛ) двух сильно скоррелированных квантовых излучателей (КИ) уже несколько десятилетий является предметом исследований в квантовой оптике и смежных областях. Известно, что взаимодействие между КИ на субволновых расстояниях при воздействии на них непрерывного лазерного пучка приводит к образованию коллективных возбужденных состояний. Времена жизни таких возбуждений могут быть меньше или больше времен жизни собственных состояний КИ. Их радиационный распад лежит в основе кооперативной фотолюминесценции (КФЛ), которая может наблюдаться как ансамблевое каскадное, сверх- или субизлучение [1–6]. Первое экспериментальное наблюдение КФЛ двух примесных органических молекул было описано в 2002 г. в работе [4]. В последние годы наметился заметный прогресс в возможностях создания, регистрации и манипулирования коллективными состояниями молекулярных пар внутри твердотельных сред при криогенной температуре [5, 6]. Эксперименты [4–6] подтвердили общие особенности КФЛ, предсказанные теоретически. Регистрация и анализ КФЛ проводился с использованием методов криогенной спектро-наноскопии одиночных

КИ (см. обзоры [7, 8]). В их основе лежит измерение спектров возбуждения ФЛ, то есть зависимости полной интенсивности флуоресцентного испускания КИ от частоты возбуждающего лазерного пучка. В [4–6] показано, что контур возбуждения КФЛ одиночной “точечной” пары молекул имеет три максимума, которые соответствуют каскадному, сверх- и субизлучательному типу свечения. Таким образом, реализация каждого варианта режима КФЛ обусловлена режимом генерации перестраиваемого возбуждающего лазера. Также была показана разница в статистике флуоресцентных фотонов (группировка и антигруппировка) для различных участков спектра возбуждения КФЛ. Измерения проводились со следующими системами: молекулы террилена (Tr) в кристалле пара-терфенила [4], молекулы дибензантатрена (DBATT) в слое поликристаллического нафталина [5] и молекулы дибензотеррилена (DBT) в кристалле антрацена [6].

Общим выводом, следующим из экспериментальных работ, можно считать, что КФЛ двух органических примесных молекул может быть описана как взаимодействие двухуровневых КИ (ДУИ). Применимость приближения ДУИ для одиночной молекулы была подтверждена в эксперименте по изучению резонансной ФЛ с молекулами DBATT в

¹⁾ e-mail: ekatri.smirnova@gmail.com

n-тетрадекане [9]. Авторы работы зарегистрировали в спектре испускания ФЛ хорошо разрешенный триплет Апанасевича–Моллоу [10, 11]. Определенность модели примесной молекулы дает возможность осуществить оценку перспектив изучения особенностей кооперативных систем методами эмиссионной и абсорбционной оптической спектроскопии. Одним из подходов может быть метод регистрации усиления и ослабления перестраиваемого по частоте пробного сигнала, проходящего через систему КИ с переходами, насыщенными излучением управляющего лазера [12–14]. В работе [15] было показано, что такая техника может применяться для исследования структуры возбужденных состояний одиночных квантовых точек. Теоретические основы и методы расчета спектров поглощения пробного сигнала описаны в [16–18]. Некоторые частные решения задачи о взаимодействии кооперативной системы двух ДУИ с пробным полем приведены в работах [3, 19].

В данной работе показано, что эксперименты с примесными молекулами [4–6] можно дополнить измерениями спектров поглощения и усиления пробного сигнала. Анализ этих зависимостей может позволить определить пространственную ориентацию залегания молекул в матрице относительно систем возбуждения и регистрации, контраст фотофизических свойств молекул и тонкую структуру коллективных возбужденных состояний. Для этого в статье излагается краткое резюме метода спектроскопии на основе полуклассического описания и описываются принципы квантово-кинетического подхода к решению задачи двух КИ. Показано, что квантово-кинетический подход в рамках формализма матрицы плотности многокомпонентной системы частиц и излучения может быть удобной альтернативой способу вычисления скорости затухания пробного сигнала через полевые и материальные корреляционные функции [16]. Показаны результаты моделирования спектров усиления и ослабления пробного лазерного пучка как для условий экспериментов [4–6], так и для гипотетических экспериментальных ситуаций. На примере смоделированных спектральных зависимостей сделаны выводы о перспективах изучения пространственных особенностей возбуждений кооперативных систем и возможности на их основе осуществлять преобразование слабых световых сигналов.

2. Спектроскопия пробного поля. Исследование возбужденных состояний, создаваемых управляющим лазерным пучком в среде или в отдельной квантовой системе, возможно проводить с помощью перестраиваемого пробного лазера. Основы та-

кого метода сканирующей спектроскопии хорошо иллюстрируются на примере полуклассической модели двухуровневой среды и двух действующих на нее полей: $\mathbf{E}(t) = \mathcal{E} \text{Re}\{\exp(i\omega t)\}$ и $\mathbf{E}(t)_p = \mathcal{E}_p \text{Im}\{\exp(i\omega_p t)\}$. Поле $\mathbf{E}(t)$ представляет управляющий пучок частоты ω , а $\mathbf{E}_p(t)$ описывает пробный монохроматический сигнал с перестраиваемой частотой ω_p . При этом предполагается, что поляризации полей ортогональны и $|\mathcal{E}_p| \ll |\mathcal{E}|$. В этом случае матрицу плотности ρ отдельного ДУИ в однородном ансамбле, образующем двухуровневую среду, можно искать в виде $\rho = r + p$. Здесь матрица плотности r является решением уравнения Лиувилля с полем $\mathbf{E}(t)$, а матрица p представляет “поправку”, вносимую $\mathbf{E}_p$. При этом в силу свойств $\text{Tr}(\rho) = \text{Tr}(r + p) = 1$ и $\text{Tr}(r) = 1$ поправочная матрица p не является матрицей плотности со следом 1 и путем замены переменных может быть выражена через неэрмитову матрицу. Матрицы r и p находятся из уравнений для матриц ρ и ϕ с элементами $\rho_{21} = r_{21}e^{i\omega t}$, $\rho_{12} = r_{12}e^{-i\omega t}$, $\rho_{11} = r_{11}$, $\rho_{22} = r_{22}$ и $\phi_{21} = p_{21}e^{i\omega_p t}$, $\phi_{12} = p_{12}e^{-i(2\omega - \omega_p)t}$, $\phi_{11} = p_{11}e^{-i(\omega - \omega_p)t}$, $\phi_{22} = p_{22}e^{-i(\omega - \omega_p)t}$. Переход к ρ и ϕ означает применение приближения вращающейся волны (ПВВ) в рамках дипольного приближения взаимодействия ДУИ с полями. Соответствующие уравнения имеют вид:

$$i \frac{d}{dt} \rho = [\Delta \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^-, \rho] - [\Omega \hat{\sigma}^- + \Omega^* \hat{\sigma}^+, \rho] + i \hat{\mathcal{R}}[\rho], \quad (1)$$

$$i \frac{d}{dt} \phi = \nu \phi + [\Delta \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^-, \phi] - [\Omega \hat{\sigma}^- + \Omega^* \hat{\sigma}^+, \phi] + i \hat{\mathcal{R}}[\phi] - \hat{S}[\phi], \quad (2)$$

где $\Delta = \omega_0 - \omega$ – отстройка частоты управляющего поля от частоты перехода излучателя, $\nu = \omega - \omega_p$ обозначает частоту пробного поля, отсчитываемую от ω . Влияние управляющего поля учитывается через константу связи $\Omega = \mathbf{d} \cdot \mathcal{E}/2\hbar$, которая является “полуклассической” частотой Раби, где $\mathbf{d}$ – матричный элемент оператора дипольного момента излучателя и $\hbar$ – постоянная Планка. Операторы $\hat{\sigma}^+$ и $\hat{\sigma}^-$ – стандартные проекционные операторы ДУИ. Оператор $\hat{\mathcal{R}}$ представляет релаксационные процессы. Для случая только радиационной релаксации, связанной со спонтанным распадом возбужденных состояний, $\hat{\mathcal{R}}$ представлен оператором Линдблада:

$$\hat{\mathcal{R}}[\rho] = \frac{\gamma}{2} (2\hat{\sigma}^- o \hat{\sigma}^+ - \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^- o - o \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^-), \quad (3)$$

где o – произвольная матрица, а γ – скоростная константа затухания. В общем случае $\hat{\mathcal{R}}$ также описывает дефазировку и прочие возможные механизмы релаксации. Оператор $\hat{S}$ представляет неоднородность в уравнении (2):

$$\hat{S}[\rho] = i\lambda_p^* [\hat{\sigma}^+, \rho], \quad (4)$$

которая определяется решением (1) и константой связи ДУИ с пробным полем $\lambda_p = \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}_p / 2\hbar$.

Индукцированная полями поляризация однородной резонансной среды с учетом фундаментального свойства матрицы плотности ρ определяется выражением $\mathbf{P}(t) = N \text{Tr}\{\hat{\mathbf{d}}\rho(t)\}$, где N – концентрация поляризованных частиц, а $\hat{\mathbf{d}}$ – оператор дипольного момента ДУИ. Соответственно, поляризация, индуцируемая при действии только управляющего поля, была бы $\mathbf{P}_0 = N \text{Tr}\{\hat{\mathbf{d}}r(t)\}$. Объемная плотность мощности поля, которая тратится на создание $\mathbf{P}$, равна $\langle (\mathbf{E} + \mathbf{E}_p) \cdot \partial \mathbf{P} / \partial t \rangle_t$, где $\langle \dots \rangle_t$ обозначает усреднение по времени. С другой стороны, эта же величина есть удельная работа поля A над средой, произведенная в единицу времени, которая может быть определена как изменение интенсивности сигнала I на единицу длины вдоль оси распространения z , а именно, $dA/dt = \langle (\mathbf{E} + \mathbf{E}_p) \cdot \partial \mathbf{P} / \partial t \rangle_t = -dI/dz = -\alpha I$. Здесь последнее равенство отражает закон Бугера–Ламберта–Бера с коэффициентом поглощения α . При ортогональности поляризаций действующих полей вклад пробного сигнала определяется как $dA_p/dt = \langle \mathbf{E}_p \cdot \partial \mathbf{P}_p / \partial t \rangle_t = -\alpha_p I_p$, где $\mathbf{P}_p = \mathbf{P} - \mathbf{P}_0$. Тогда $\langle \mathbf{E}_p \cdot \partial \mathbf{P}_p / \partial t \rangle_t = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}_p N \text{Re}\{\omega \langle \rho_{21} e^{i(\omega_p - \omega)t} \rangle_t + \omega_p \phi_{21}\}$, где ρ_{21} и ϕ_{21} – матричные элементы, $\phi_{21} = \text{Tr}\{\hat{\sigma}^- o\}$. Слагаемое с ρ_{21} относится к работе пробного поля над поляризацией, наведенной управляющим полем. Видно, что эта часть работы осциллирует на частоте $\omega_p - \omega$. Если $\omega_p \neq \omega$, то ее вклад в среднем равен нулю. При $\omega_p \rightarrow \omega$ изменение знака работы происходит медленно и в общем случае ее вклад необходимо учитывать. Однако, при резонансном возбуждении величина $\text{Re}\{\rho_{21}\}$ незначительна. Следовательно, коэффициент поглощения пробного сигнала можно вычислять как $\alpha_p = \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}_p N \text{Re}\{\omega_p \phi_{21}\} / I_p$. С учетом выражений для интенсивности пробного сигнала $I_p = c \mathcal{E}_p^2 / 8\pi$, где c – скорость света, и константы связи λ_p , окончательное выражение имеет вид:

$$\alpha_p(\nu) = \frac{4\pi}{\hbar} N |\mathbf{d}|^2 \frac{\omega_p}{c} \frac{1}{|\lambda_p|^2} \text{Re}(\lambda_p \phi_{21}(\nu)). \quad (5)$$

Таким образом, коэффициент поглощения (или усиления) слабого лазерного пучка в среде, подготовленной управляющим полем, определяется действительной частью недиагонального матричного элемента матрицы ϕ . Стационарные значения $\phi_{ij}(\nu)$ находятся из уравнений (1)–(2) при равенстве нулю производных по времени. Решение (1) хорошо известно (см., например, [10, 20, 21]) и должно быть использовано в неоднородном слагаемом в (2). Примеры вычисления функции $\text{Re}(\phi_{21}(\nu))$, которая опре-

деляет контур спектра (5), представлены на рис. 1.

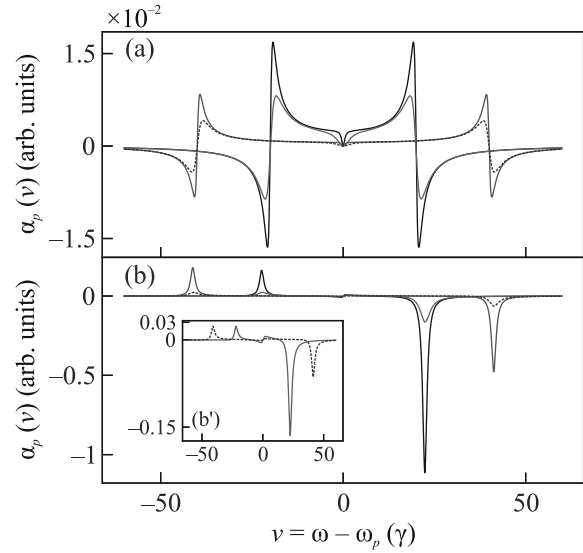


Рис. 1. (Цветной онлайн) Спектр усиления и ослабления пробного сигнала в насыщенной двухуровневой среде. Два варианта насыщения в режиме радиационной релаксации: $\Omega = 10\gamma$ (сплошная черная) и $\Omega = 20\gamma$ (сплошная красная). Два варианта насыщения в режиме с учетом дефазировки, характеризуемой скоростной константой $\gamma_\perp = 2\gamma$: $\Omega = 10\gamma$ (сплошная оранжевая) и $\Omega = 20\gamma$ (пунктирная синяя). (a) – Насыщение среды резонансным пучком, $\Delta = 0$; (b), (c) – насыщение среды пучком с отстройкой $\Delta = 10\gamma$. Кривые на рисунке (a) качественно описывают экспериментальные зависимости для одиночной квантовой точки [15].

Здесь приведены известные примеры для насыщенной среды ДУИ при $\Omega = 10\gamma$ и $\Omega = 20\gamma$ в случае резонанса $\Delta = 0$ и для отстройки $\Delta = 10\gamma$. Также показаны изменения спектров, связанные с наличием слабой дефазировки, что характерно для низких температур. Следует отметить, что области, где кривая зависимости находится в положительной полуплоскости, показывают усиление пробного сигнала за счет энергии среды, связанной с управляющим полем. Управляющее поле достаточно большой интенсивности приводит к заметному проявлению динамического эффекта Штарка (см., например, [20]), который для ДУИ выражается в расщеплении его состояний с образованием четырех эффективных переходов. На этих переходах возможно образование инверсной, нормальной и равной населенности подуровней (одетых состояний) [14]. При этом сохраняется невозможность стационарной инверсии населенностей между совокупностями высокоэнергетических и низкоэнергетических состояний. Таким образом, для перестраиваемого по частоте пробного пуч-

ка насыщенная среда может быть усиливающей, поглощающей или прозрачной. Этот эффект был подтвержден экспериментально в атомарных средах [13] и для одиночной квантовой точки [15].

Выражение (5) и его обобщения на более сложные модели систем КИ могут быть получены в рамках квантово-кинетической теории взаимодействия света с веществом. Для этого необходимо рассматривать систему, состоящую из ансамбля КИ и мод квантованного электромагнитного поля (фотонных мод). Динамика и свойства многокомпонентной системы определяются матрицей плотности $\rho_{\{af\}}$ и уравнением Лиувилля–фон Неймана:

$$i\frac{d}{dt}\rho_{\{af\}} = \frac{1}{\hbar}[\hat{H}, \rho_{\{af\}}] \quad (6)$$

с оператором Гамильтона

$$\hat{H} = \sum_a \hat{H}_a + \sum_f \hat{H}_f + \sum_{a,f} \hat{V}_{af}, \quad (7)$$

в котором индекс a нумерует излучатели, а f представляет совокупный индекс отдельной моды поля. Фигурные скобки в индексах обозначают группу подсистем, в которой каждая подсистема является либо одиночным КИ, либо отдельной фотонной модой. Постановку задачи необходимо дополнить начальным условием $\rho_{\{af\}}(0)$, которое, в частности, определяет фотонные моды, отвечающие за внешнее возбуждение (лазерные моды). При достижении системой стационарного режима энергия E_f каждой моды будет определяться постоянной скоростью поступления в нее фотонов за счет различных процессов. С целью сохранения общего характера описания можно положить, что речь идет о “некогерентных” фотонах, и определить скорость изменения E_f как:

$$w_f = \frac{d}{dt}E_f = \hbar\omega_f \frac{d}{dt}(\langle \hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f \rangle - \langle \hat{a}_f^\dagger \rangle \langle \hat{a}_f \rangle), \quad (8)$$

где $\hat{a}_f^\dagger$ и $\hat{a}_f$ – операторы рождения и уничтожения, а $\langle \dots \rangle$ обозначает квантово-механическое среднее. Используя свойство редукции матрицы плотности, выражение (8) можно раскрыть $w_f = \hbar\omega_f \text{Tr}(\hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f - \langle \hat{a}_f \rangle \hat{a}_f^\dagger - \langle \hat{a}_f^\dagger \rangle \hat{a}_f)(d/dt)\text{Tr}_{\{a\}\{f' \neq f\}}\rho_{\{af\}}$. Тогда очевидно, что $\text{Tr}_{\{a\}\{f' \neq f\}}\rho_{\{af\}} = \rho_f$, где ρ_f обозначает матрицу плотности моды f . Производная по времени $d\rho_f/dt$ находится из основного уравнения (6), что означает необходимость преобразовать оператор $\text{Tr}_{\{a\}\{f' \neq f\}}[\hat{H}, \rho_{\{af\}}]$. Несложно показать, что скорость заполнения моды в такой системе есть

$$w_f = -i\omega_f \text{Tr}_f(\hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f - \langle \hat{a}_f \rangle \hat{a}_f^\dagger - \langle \hat{a}_f^\dagger \rangle \hat{a}_f) \times \\ \times \left([\hat{H}_f, \rho_f] + \sum_a \text{Tr}_a[\hat{V}_{af}, \rho_{af}] \right). \quad (9)$$

Стандартный гамильтониан (7) в дипольном приближении содержит операторы свободных подсистем и операторы взаимодействия между излучателями и фотонными модами:

$$\begin{aligned} \hat{H}_a &= \hbar\omega_a \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^-, \\ \hat{H}_f &= \hbar\omega_f \hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f, \end{aligned} \quad (10)$$

$$\hat{V}_{af} = -\mathbf{d}_a \cdot \mathbf{E}_f(\mathbf{r}_a).$$

Взаимодействие определяется с помощью операторов дипольного момента и напряженности электрического поля:

$$\hat{\mathbf{d}}_a = (\hat{\sigma}_a^- \mathbf{d}_a + \hat{\sigma}_a^+ \mathbf{d}_a^*) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a), \quad (11)$$

$$\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}) = \mathcal{E}_f(\mathbf{r}) \hat{a}_f + \mathcal{E}_f^*(\mathbf{r}) \hat{a}_f^\dagger, \quad (12)$$

где $\mathbf{d}_a$ – матричный элемент оператора дипольного момента излучателя a в точке его локализации $\mathbf{r} = \mathbf{r}_a$, $\mathcal{E}_f(\mathbf{r})$ – амплитуда оператора полевой моды f , определяемой энергией фотона, волновым вектором $\mathbf{k}_f$ и единичным вектором поляризации $\mathbf{e}_f$ в объеме квантования V :

$$\mathcal{E}_f(\mathbf{r}) = i\mathbf{e}_f \sqrt{\frac{2\pi\hbar\omega_f}{V}} e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}}. \quad (13)$$

Использование операторов (10)–(12) приводит к выражению для скорости заполнения фотонной моды, которое содержит редуцированные матрицы плотности:

$$w_f = 2\hbar\omega_f \sum_a \text{Re}(\lambda_{af} \text{Tr}_{af} \hat{\sigma}_a^- \hat{a}_f^\dagger (\rho_{af} - \rho_a \rho_f)). \quad (14)$$

Здесь вклад в заполнение моды от каждого КИ пропорционален скоростной константе связи:

$$\lambda_{af}(\mathbf{r}) = i \frac{\mathbf{d}_a \cdot \mathcal{E}_f^*(\mathbf{r})}{\hbar}. \quad (15)$$

В квантово-кинетическом подходе решения для матриц ρ_{af} можно искать в виде $\rho_{af} = \rho_a \rho_f + g_{af}$, где g_{af} – некоторая “корреляционная” матрица. Это означает, что каждое решение подразумевает суперпозицию состояний КИ и моды, когда они не взаимодействуют и не скоррелированы и когда они максимально скоррелированы в результате взаимодействия. Последнее выражено через корреляционную матрицу g_{af} . При этом в силу свойств $\text{Tr}_{af} \rho_{af} = \text{Tr}_{af}(\rho_a \rho_f + g_{af}) = 1$ и $\text{Tr}_a \rho_a = \text{Tr}_f \rho_f = 1$ матрица g_{af} не является матрицей плотности со следом

1. Тем не менее использование корреляционной матрицы значительно упрощает вычисления. Выраженная через вспомогательную матрицу $\Phi_a = \text{Tr}_f \hat{a}_f^\dagger g_{af}$ скорость заполнения моды записывается в виде

$$w_f = 2\hbar\omega_f \sum_a \text{Re}(\lambda_{af}(\Phi_a)_{21}). \quad (16)$$

Для однородного ансамбля КИ получается $w_f = 2\hbar\omega_f n_a \text{Re}(\lambda_{af}(\Phi_a)_{21})$, где n_a – число КИ в ансамбле. Уравнение для Φ_a получается из (6), например, методом ББГКИ [22, 23]. Необходимо отметить, что Φ_a определяет корреляцию КИ с фотонной модой, но не является эрмитовой матрицей. Согласно [22] для приближений ДУИ и ПВВ соответствующее производящее уравнение имеет следующий вид:

$$i \frac{d}{dt} \Phi_a = \nu_f \Phi_a + [\Delta \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^-, \Phi_a] - [\Omega \hat{\sigma}^- + \Omega^* \hat{\sigma}^+, \Phi_a] + i \hat{\mathcal{R}}[\Phi_a] - \frac{E_f}{\hbar\omega_f} \hat{S}[\rho_a] - \hat{A}[\rho_a]. \quad (17)$$

Данное уравнение совпадает в своей однородной части с уравнением (2). Первое неоднородное слагаемое представлено также оператором (4) с заменой константы связи на λ_{af} . Однако в этом уравнении это слагаемое пропорционально энергии моды E_f . Второе неоднородное слагаемое $\hat{A}[\rho_a] = i\lambda_{af}\rho_a(\hat{\sigma}^+ - \langle \hat{\sigma}^+ \rangle)$. Таким образом, в уравнении для корреляционной матрицы отражены как индуцируемые процессы, так и спонтанные. С другой стороны, изменение энергии моды подчиняется формальному уравнению

$$\frac{d}{dt} E_f = 2\hbar\omega_f n_a \text{Re}(\lambda_{af}(\Phi_a)_{21}) = \eta_f E_f + A_f, \quad (18)$$

где η_f – скоростной коэффициент, а A_f – постоянная скорость. Из этого следует, что стационарные решения (17) при выборе лишь одного из неоднородных слагаемых будут соответствовать или процессу “затухания” моды, или ее обогащению за счет флуоресценции. Также очевидно, что для описания “затухания” можно воспользоваться решением $\phi_{21}(\nu)$ с добавлением множителя $E_f/\hbar\omega_f$. Тогда скоростной коэффициент η_f находится из (18) как $\eta_f(\nu) = 2n_a \text{Re}(\lambda_{af}\phi_{21}(\nu))$. Вместе с тем коэффициент поглощения $\alpha_f = \eta_f/c$ и соответственно

$$\alpha_f(\nu) = 2n_a \text{Re} \left(\frac{\lambda_{af}}{c} \phi_{21}(\nu) \right). \quad (19)$$

Если воспользоваться тем, что согласно (15) имеется $|\lambda_{af}|^2 = |d|^2 2\pi\omega_f/V\hbar$, и ассоциировать объем квантования V с физическим объемом в полуклассической теории, то при замене $\omega_f \rightarrow \omega_p$ и $\lambda_{af} \rightarrow \lambda_p$ спектр

(19) полностью совпадает с выражением (5). Уравнение для матрицы плотности ДУИ при равных условиях задачи сводится к (1), так что $\rho_a \equiv \rho$. Необходимо отметить, что в данном случае n_a представляет число независимых КИ.

3. Спектроскопия пробного поля для кооперативного ансамбля излучателей. Наименьший кооперативный ансамбль, в котором возможно диполь-дипольное спутывание частиц, должен состоять минимум из двух ДУИ. Уравнение для матрицы плотности ансамбля ДУИ $\rho_{\{a\}}$ двух и более частиц известно из достаточно ранних работ [24]. По своей структуре оно близко к уравнению (1) и получается при замене операторов, связанных с ДУИ в (10)–(11), на коллективные (суммы операторов) и добавлении оператора диполь-дипольного взаимодействия. Для сравнения с результатами экспериментов по наблюдению КФЛ двух примесных молекул принципиально важно рассматривать модель ансамбля, в которой КИ различимы. Это означает, что их фотофизические характеристики (параметры квантовых переходов) должны отличаться. Также важно учитывать пространственное расположение частиц относительно систем оптического возбуждения и регистрации. Согласованный учет этих обстоятельств наиболее последовательным способом возможно осуществить в рамках квантово-кинетической теории, основанной на общем уравнении (6). При этом нет необходимости применения феноменологических процедур. Дополнительным преимуществом этого формализма является простота расчетов спектральных зависимостей на основе пары производящих уравнений вида (1)–(2).

В данной работе используется уравнение (6) для матрицы плотности поля излучения и пары точечных ДУИ, расположенных в точках $\mathbf{r}_1$ и $\mathbf{r}_2$ на расстоянии, определяемом вектором $\mathbf{r}_{12}$. Частицы возбуждаются непрерывным линейно-поляризованным монохроматическим пучком, характеризуемым амплитудой напряженности электрического поля $\mathbf{E}_L$, волновым вектором $\mathbf{k}_L$ и частотой ω_L . Далее рассмотрен случай, когда $|\mathbf{r}_{12}| \ll c/\omega_L$. Каждый ДУИ может находиться в основном $|g_i\rangle$ или возбужденном состоянии $|e_i\rangle$, $i \in \{1, 2\}$, разделенных энергией $\hbar\omega_i$ и связанных дипольным переходом с моментом $\mathbf{d}_i$. При этом $\omega_1 \neq \omega_2$, $|\omega_1 - \omega_2| = |\delta| \ll \omega_1, \omega_2$ и $|\mathbf{d}_1| \neq |\mathbf{d}_2|$. Вариант пространственного расположения частиц относительно систем оптического возбуждения и регистрации показан на рис. 2а. Направления $\mathbf{k}_L$ и индуцированных дипольных моментов по отношению к $\mathbf{r}_{12}$ задаются углами ξ и θ . Угол θ ограничен $|\pi/2 - \xi| \leq \theta \leq |\pi/2 + \xi|$. К (6) можно последова-

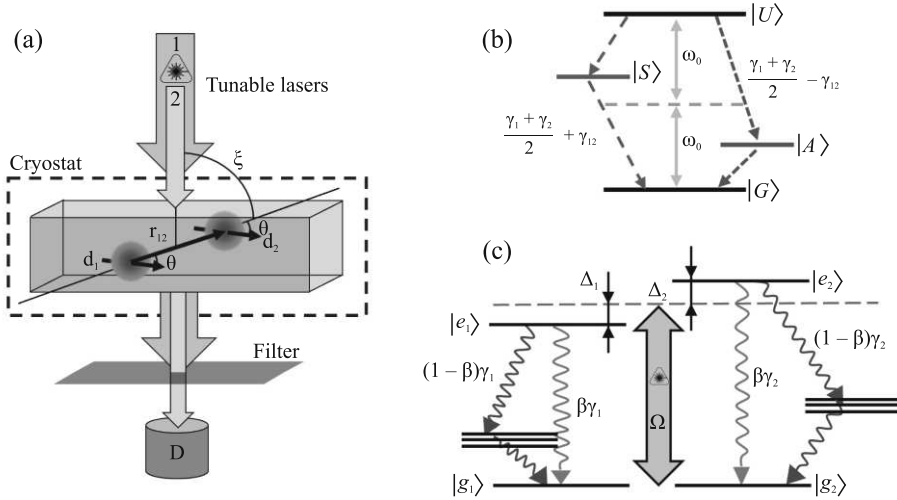


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Схема возбуждения КФЛ пары квантовых излучателей и детектирования изменения пробного сигнала. Вектор $\mathbf{r}_{12}$ определяет расположение излучателей. Возбуждающий пучок 1 характеризуется амплитудой $\mathbf{E}_L$ и волновым вектором $\mathbf{k}_L$, который образует угол ξ с $\mathbf{r}_{12}$. Индуцированные дипольные моменты $\mathbf{d}_i$ коллинеарны $\mathbf{E}_L$ и образуют угол θ с $\mathbf{r}_{12}$. Пробный сигнал сонаправлен сигналу возбуждения. Регистрация прошедшего образец пробного сигнала снабжена фильтром полосы возбуждения. Образец помещен в криостат. Регистрация слабых изменений пробного сигнала может быть организована аналогично смехе в работе [15]. (б) – Схема кооперативных состояний пары ДУИ: симметричное спутанное состояние $|S\rangle$, антисимметричное спутанное состояние $|A\rangle$, коллективное возбужденное состояние $|U\rangle$, коллективное основное состояние $|G\rangle$. (в) – Упрощенная структура состояний одиночных примесных молекул: возбужденное электронное состояние $|e_i\rangle$ распадается в основное состояние $|g_i\rangle$ по прямому каналу со скоростью $\beta\gamma_i$ и по смежному каналу через короткоживущие колебательные подуровни со скоростью $(1-\beta)\gamma_i$, где β – комбинированный фактор Дебая–Валлера/Франка–Кондона. Отстройки частоты возбуждающего лазера от частот переходов молекул составляют $\Delta_i = \omega_i - \omega$

тельно применить операцию взятия частичного следа, как это было сделано при получении (9). Процедуру имеет смысл начинать со взятия следа по операторам всех подсистем кроме ансамбля ДУИ, и затем всех подсистем, кроме одной фотонной моды. Далее каждый следующий шаг редукции (6) производится относительно степеней свободы меньшего числа подсистем. Таким образом, получается бесконечная цепочка зацепляющихся уравнений для редуцированных матриц плотности $\rho_{\{a\}}$, ρ_f , $\rho_{\{a\}f}$, $\rho_{\{a\}ff'}$ и т.д., которая полностью эквивалентна (6). Для получения искомого уравнения для корреляционной матрицы (17) цепочку необходимо модифицировать. Для этого матрицы плотности для более чем одной подсистемы следует искать в виде $\rho_{\{a\}f} = \rho_{\{a\}}\rho_f + g_{\{a\}f}$, $\rho_{\{a\}ff'} = \rho_{\{a\}}\rho_f\rho_{f'} + \rho_{f'}g_{\{a\}f} + \rho_f g_{\{a\}f'} + \rho_{\{a\}}g_{ff'} + g_{\{a\}ff'}$ и т.д. Если ввести коллективные операторы $\hat{H}_{\{a\}} = \hat{H}_{a_1} + \hat{H}_{a_2} + \hat{V}_{\{a\}f} = \hat{V}_{a_1f} + \hat{V}_{a_2f}$, где все прочие операторы определены в (7) и в (10)–(13), то уравнения первых трех порядков цепочки запишутся в виде:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_{\{a\}} - [\hat{H}_{\{a\}}, \rho_{\{a\}}] - \sum_f [\hat{U}_{\{a\}\langle f \rangle}, \rho_{\{a\}}] =$$

$$= \sum_f \text{Tr}_f [\hat{V}_{\{a\}f}, g_{\{a\}f}], \quad (20)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_f - [\hat{H}_f, \rho_f] - [\hat{U}_{\langle \{a\} \rangle f}, \rho_f] = \text{Tr}_{\{a\}} [\hat{V}_{\{a\}f}, g_{\{a\}f}], \quad (21)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} g_{\{a\}f} - [\hat{H}_{\{a\}} + \hat{H}_f, g_{\{a\}f}] - \sum_{f' \neq f} [\hat{U}_{\{a\}\langle f' \rangle}, g_{\{a\}f}] = \\ = [\hat{V}_{\{a\}f} - \hat{U}_{\langle \{a\} \rangle f} - \hat{U}_{\{a\}\langle f \rangle}, \rho_{\{a\}}\rho_f] + \\ + \sum_{f' \neq f} \text{Tr}_{f'} [\hat{V}_{\{a\}f'}, g_{\{a\}ff'}], \end{aligned} \quad (22)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{\{a\}ff'} = [\hat{V}_{\{a\}f'} - \hat{U}_{\langle \{a\} \rangle f'} - \hat{U}_{\{a\}\langle f' \rangle}, g_{\{a\}f}\rho_{f'}]. \quad (23)$$

Здесь два первых уравнения записаны точно. Уравнения для корреляционных матриц $g_{\{a\}f}$ и $g_{\{a\}ff'}$ представлены только со слагаемыми, которые обеспечивают получение уравнений вида (1)–(2). Это соответствует 2-му борновскому приближению обрыва квантовой цепочки ББККИ [22, 23, 25]. В уравнениях присутствуют потенциалы Хартри (самосогласованные поля) – частичные квантово-механические

средние коллективного оператора взаимодействия: $\hat{U}_{\{a\}\{f\}} = \text{Tr}_f \hat{V}_{\{a\}f} \rho_f$ и $\hat{U}_{\{a\}\{f\}} = \text{Tr}_{\{a\}} \hat{V}_{\{a\}f} \rho_{\{a\}}$. Внешнее возбуждение возможно определить через начальные условия. Например, одна из мод поля может быть определена как находящаяся в начальный момент времени в когерентном состоянии $|\varphi\rangle$, так что ее матрица плотности $\rho_L(0) = |\varphi\rangle\langle\varphi|$. Кроме этого, неоднородные слагаемые с корреляционными матрицами в правых частях уравнений (20) и (22) должны обеспечить радиационное затухание и взаимодействие ДУИ посредством поля. Таким образом замкнутая система (20)–(23) может быть модифицирована с использованием стандартных подходов квантовой оптики. Формальное интегрирование (21) определяет самосогласованное возбуждение $\hat{U}_{\{a\}\{f\}}$ через решения $\rho_f(t)$. Формальное интегрирование (22) и (23) дает операторы радиационного затухания и диполь-дипольного взаимодействия в операторах $\text{Tr}_f[\hat{V}_{\{a\}f}, g_{\{a\}f}]$ и $\text{Tr}_f[\hat{V}_{\{a\}f'}, g_{\{a\}ff'}]$ через решения $g_{\{a\}f}(t)$ и $g_{\{a\}ff'}(t)$. При этом принимаются допущения, соответствующие системе (1)–(2), что включает применение ПВВ и приближение Борна–Маркова. В итоге (20) и (22) модифицируются в уравнение для $\rho_{\{a\}}$ и неэрмитовой матрицы $\Phi_{\{a\}} = \text{Tr}_f \hat{a}_f^\dagger g_{\{a\}f}$:

$$i \frac{d}{dt} \rho_{\{a\}} = \sum_i \Delta_i [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_i^-, \rho_{\{a\}}] - \sum_i [\Omega_i(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^- + \Omega_i^*(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^+, \rho_{\{a\}}] - \hat{L}_{\{a\}}[\rho_{\{a\}}] + i \hat{\mathcal{R}}_{\{a\}}[\rho_{\{a\}}], \quad (24)$$

$$i \frac{d}{dt} \Phi_{\{a\}} = \nu_f \Phi_{\{a\}} + \sum_i \Delta_i [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_i^-, \Phi_{\{a\}}] - \sum_i [\Omega_i(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^- + \Omega_i^*(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^+, \Phi_{\{a\}}] - \hat{L}_{\{a\}}[\Phi_{\{a\}}] + i \hat{\mathcal{R}}_{\{a\}}[\Phi_{\{a\}}] - \frac{E_f}{\hbar \omega_f} \hat{S}_{\{a\}}[\rho_{\{a\}}] - \hat{A}_{\{a\}}[\rho_{\{a\}}]. \quad (25)$$

Уравнения (24) и (25) в целом сохраняют структуру (1) и (17) с тем отличием, что в них присутствуют диполь-дипольное взаимодействие и коллективные операторы:

$$\hat{L}_{\{a\}}[o] = \sum_{i,j;i \neq j}^2 \delta_{ij} [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-, o],$$

$$\hat{\mathcal{R}}_{\{a\}}[o] = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^2 \gamma_{ij} (2\hat{\sigma}_j^- o \hat{\sigma}_i^+ - \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- o - o \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-), \quad (26)$$

$$\hat{S}_{\{a\}}[\rho_{\{a\}}] = i \sum_{i=1}^2 \lambda_i(\mathbf{r}_i) [\hat{\sigma}_i^+, \rho_{\{a\}}].$$

Оператор $\hat{A}_{\{a\}}$ в данной работе не рассматривается, однако также представляет сумму слагаемых $i \lambda_i \rho_{\{a\}} (\hat{\sigma}_i^+ - \langle \hat{\sigma}_i^+ \rangle)$. Здесь используются отстройки $\Delta_i = \omega_i - \omega_L$, частоты Раби $\Omega_i(\mathbf{r}_i) = \mathbf{d}_i \cdot \mathbf{E}/(2\hbar) e^{-i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}_i}$, константы связи $\lambda_i(\mathbf{r}_i) = i/\hbar \mathbf{d}_i \cdot \mathcal{E}_f^*(\mathbf{r}_i)$, скоростная константа диполь-дипольного взаимодействия δ_{ij} и скорости коллективной и индивидуальной радиационной релаксации γ_{ij} , определяемые из выражений

$$\delta_{ij} = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d}_i \cdot \text{Re} \{ \overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, \omega_0) \} \cdot \mathbf{d}_j, \quad (27)$$

$$\gamma_{ij} = \frac{2}{\hbar} \mathbf{d}_i \cdot \text{Im} \{ \overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, \omega_0) \} \cdot \mathbf{d}_j,$$

где $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \omega)$ – полевой тензор Грина, который содержит зависимость от θ , а $\omega_0 = (\omega_1 + \omega_2)/2$ – средняя частота переходов излучателей. Анализ кооперативной системы двух неодинаковых ДУИ удобно проводить в базисе коллективных состояний $|U\rangle = |e_1 e_2\rangle$, $|G\rangle = |g_1 g_1\rangle$, $|S\rangle = b|e_1 g_2\rangle + a|g_1 e_2\rangle$ и $|A\rangle = a|e_1 g_2\rangle - b|g_1 e_2\rangle$. Коэффициенты $a = \sqrt{\zeta^2/(\zeta^2 + \delta_{12}^2)}$, $b = \sqrt{\delta_{12}^2/(\zeta^2 + \delta_{12}^2)}$, где $\zeta = \delta/2 + \sqrt{\delta_{12}^2 + \delta^2/4}$, определяют веса слагаемых в спутанных состояниях $|S\rangle$ и $|A\rangle$. Выражения для a и b следуют из процедуры диагонализации эффективного гамильтониана из (24)–(26), описанной, например, в [26]. Схема состояний кооперативной системы приведена на рис. 2b. Тогда скорость (16) выражается через элементы стационарной матрицы $\Phi_{\{a\}}(\nu)$, вычисленные с неоднородным слагаемым $\hat{S}_{\{a\}}$:

$$w_f(\nu) = 2\hbar \omega_f \text{Re}(\lambda_1(\mathbf{r}_1)(b\Phi_{GS} + a\Phi_{GA} + a\Phi_{SU} - b\Phi_{AU})) + 2\hbar \omega_f \text{Re}(\lambda_2(\mathbf{r}_2)(a\Phi_{GS} - b\Phi_{GA} + b\Phi_{SU} + a\Phi_{AU})). \quad (28)$$

Таким образом ослабление или усиление пробного сигнала, сканирующего пару ДУИ, определяется вкладами четырех (из шести) недиагональных элементов корреляционной матрицы. При этом вес каждого матричного элемента определяется выражением вида $a\lambda_i \pm b\lambda_j$, $i \neq j$. Дефазировка и другие механизмы релаксации в (24)–(25) могут быть получены в квантово-кинетической модели, которая включает большее число подсистем. Это приводит к необходимости построения ББГКИ более высоких порядков [23, 25]. В данной работе используется приближение радиационной релаксации, так как проводится сравнение с измерениями КФЛ при криогенных

условиях, когда ширины наблюдаемых спектральных зависимостей являются радиационно ограниченными [4–6, 27, 28].

4. Спектр возбуждения КФЛ. Производящее уравнение (24) используется для вычисления матричных элементов $\rho_{\{a\}}$. Это необходимо для определения оператора $\hat{S}_{\{a\}}$ и далее для вычисления зависимости (28). Некоторые из элементов $\rho_{\{a\}}$ также определяют спектр возбуждения КФЛ. Общая упрощенная схема состояний одиночной примесной молекулы представлена на рис. 2с. Из схемы следует, что резонансное возбуждение производит заселение верхнего электронного состояния и индуцированный дипольный момент. Возбужденное электронное состояние спонтанно распадается с излучением фотонов по двум каналам – напрямую в основное электронное состояние и по смежному каналу через колебательные уровни. Каналы распада характеризуются скоростями, которые можно определять из общей скорости радиационной релаксации γ_i через условный фактор Дебая–Валлера/Франка–Кондона β . Тогда интенсивность ФЛ имеет две компоненты – резонансную, определяемую скоростью испускания $\beta\gamma_i$, и стоксовую, определяемую скоростью $(1 - \beta)\gamma_i$. Так как колебательные состояния имеют сильную связь с фоновым резервуаром матрицы-носителя, то когерентности, индуцируемые на смежных переходах, быстро исчезают и, тем самым, не вносят вклада в диполь-дипольное взаимодействие. Следовательно, КФЛ пары примесных молекул допустимо описывать в приближении ДУИ с помощью уравнения (24). При этом в (27) к фактическим значениям δ_{ij} и γ_{ij} , при $i \neq j$, необходимо применить поправочный множитель β , а скорости распада отдельных частиц $\gamma_{ii} = \gamma_i$ сохранить как “суммарные” скорости релаксации собственных возбужденных состояний.

Техника спектроскопии возбуждения одиночных КИ, примененная в работах [4–6], основана на регистрации только стоксовой компоненты ФЛ [7]. Это означает, что спектр возбуждения КФЛ определяется элементами матрицы $\rho_{\{a\}}(\Delta)$, где $\Delta = \omega_0 - \omega_L$, которые описывают вероятности возбуждений в кооперативной системе. Для двух ДУИ существует три варианта возбуждений – возбуждены обе частицы или только одна в паре в двух возможных комбинациях. Испускание стоксовых фотонов КФЛ происходит со скоростями $(1 - \beta)\gamma_i$. Если допустить, что скорости испускания молекул одинаковые, то спектр возбуждения КФЛ можно вычислить как сумму матричных элементов $P(\Delta) = \rho_{SS} + \rho_{AA} + 2\rho_{UU}$. Из рисунка 2b следует, что спутанные состояния не вырождены при $\delta_{ij} \neq 0$ из-за диполь-дипольного взаимо-

действия. Поэтому энергии коллективных состояний отличаются и сканирование кооперативной системы с помощью перестраиваемого лазера при достаточной интенсивности возбуждения показывает наличие трех резонансов. Частота лазера, при которой с наибольшей вероятностью оба излучателя оказываются возбужденными, показывает центральный резонанс с состоянием $|U\rangle$. От него отсчитывается положение других резонансов. Такое состояние создается последовательным возбуждением частиц с поглощением двух фотонов. Поэтому создание $|U\rangle$ и излучение, связанное с его распадом, известно в литературе, как каскадный или “двухфотонный” кооперативный процесс [29]. Состояние с возбуждением лишь одной из частиц $|S\rangle$, которое создается прямым воздействием лазера, имеет большую скорость релаксации (короткое время жизни) и известно как сверхизлучательное или симметричное коллективное состояние. Второе состояние $|A\rangle$, когда возбуждение приходится только на одну частицу, не может быть создано напрямую внешним воздействием, а возникает в результате одного распада в паре возбужденных частиц. Это состояние имеет малую скорость релаксации (большое время жизни) и называется субизлучательным или антисимметричным коллективным состоянием. Расстояния между резонансами определяются величиной диполь-дипольного взаимодействия δ_{ij} и разницей в частотах переходов δ . Для неодинаковых частиц интенсивность ФЛ для всех возможных возбуждений может достигать близких значений, что подтверждается наблюдениями. При этом сверхизлучательная компонента спектра наиболее подвержена полевому уширению. На рисунке 3 представлены примеры расчета спектров возбуждения ФЛ для молекулярных пар, которые полностью согласуются с экспериментальными зависимостями. Рисунок 3а соответствует спектру возбуждения двух молекул Тг в матрице пара-терфенила, измеренному в [4] при температуре 1.4°К. Здесь приводится сравнение с результатом для максимальной соощавшейся интенсивности возбуждающего пучка, которую согласно данным в [4] и [30] можно оценить около 480 Вт · см⁻². Спектр имеет форму триплета, в котором сателлиты отстроены от центрального максимума на расстояние 1.5 ГГц. Высоты пиков соотносятся как 8.8:6.8:8.5 (субизлучение, каскад, сверхизлучение), а их ширины равны 272, 70 и 574 МГц соответственно. Рисунок 3b описывает данные из работы [5], в которой приводятся мощностные зависимости ширин боковых линий триплета возбуждения пары молекул DBATT в поликристаллическом нафталине при температуре 2 К. При максимальной ин-

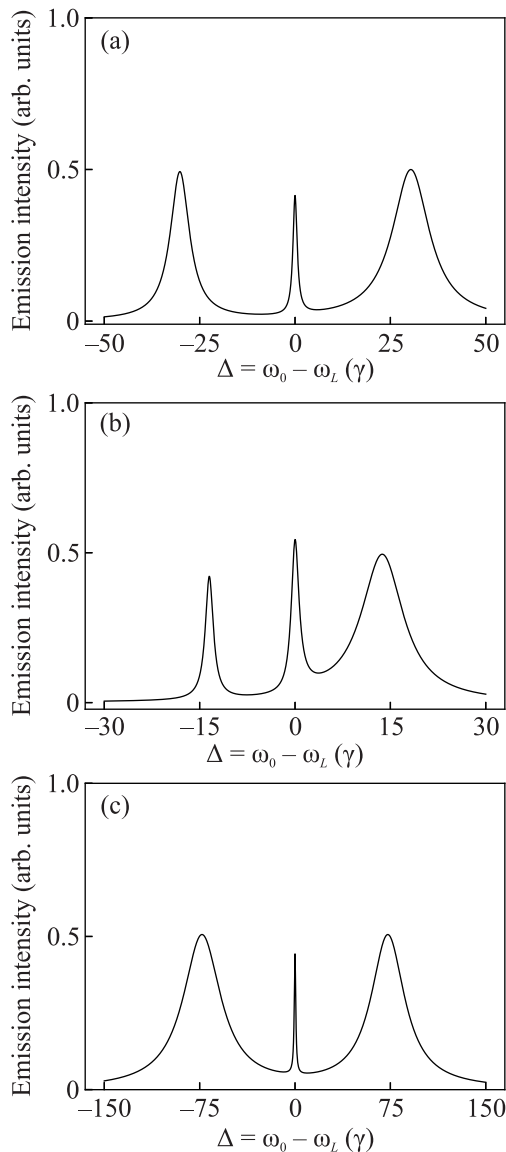


Рис. 3. Спектры возбуждения КФЛ. (а) – Две молекулы Тг в пара-терфениле [4], $\gamma = 50$ МГц, разница частот переходов $\delta = 49\gamma$, расстояние $|\mathbf{r}_{12}| = 0.033 \frac{c}{\omega_0}$, $\theta = 0.18\pi$, $\beta = 0.181$, частоты Раби $\Omega_1 = \Omega_2 = 3.3\gamma$. Сверхизлучение КФЛ соответствует положительной области отстройки, субизлучение – отрицательной области отстройки, $|\Delta| = 30.3\gamma$. (б) – Две молекулы DBATT в нафталине [5], $\gamma = 23$ МГц, $\delta = 9\gamma$, $r_{12} = 0.049 \frac{c}{\omega_0}$, $\theta = 0.18\pi$, $\beta = 0.415$, $\Omega_1 = \Omega_2 = 2\gamma$. Сверхизлучение КФЛ соответствует положительной области отстройки, субизлучение – отрицательной области отстройки, $|\Delta| = 13.7\gamma$. (с) – Две молекулы DBT в антрацене [6], $\gamma = 24$ МГц, $\delta = 145.2\gamma$, $r_{12} = 0.033 \frac{c}{\omega_0}$, $\theta = 0.37\pi$, $\beta = 0.2016$, $\Omega_1 = \Omega_2 = 12\gamma$. Сверхизлучение КФЛ соответствует отрицательной области отстройки, субизлучение – положительной области отстройки, $|\Delta| = 73.1\gamma$.

тенсивности возбуждения $250 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ ширины составляют 31 МГц (субизлучение) и 176 МГц (сверхизлучение). Рассчитанный контур на рис. 3с совпадает с результатами измерений из работы [6]. В этом случае исследовались две молекулы DBT в кристалле антрацена. Кооперативные триплеты КФЛ были зарегистрированы при температуре ниже 3 К. Интенсивность возбуждения для данного измерения можно оценивать как $320 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$. Расстояние между пиками составило 1.75 ГГц. Высоты пиков соотносятся друг с другом как 8.7:5.1:8.7 (сверхизлучение, каскад, субизлучение), а ширины соответственно равны 707, 28 и 642 МГц. Из рисунка 2б следует, что резонанс частоты возбуждающего пучка с каскадным процессом, который принят за начало координат, определяется средним значением ω_0 частот переходов. В силу наличия широкого неоднородного контура поглощения для всех рассмотренных комбинаций системы “примесная молекула + матрица” значение ω_0 для любой обнаруженной пары молекул оказывается случайным внутри некоторого диапазона. При этом измерение контура возбуждения осуществляется путем перестройки возбуждающего лазера в области частоты, соответствующей некоторой условной длине волны. При криогенных температурах условная длина волны для Тг в пара-терфениле принята за 578–580 нм [4, 31], для DBATT в нафталине – 618.7 нм [5, 32] и для DBT в антрацене – 785 нм [6, 31].

5. Моделирование усиления и ослабления пробного поля. В работах [4–6] экспериментальные контуры возбуждения КФЛ также сравнивались с результатами моделирования. При этом были использованы упрощенные модели и приближенные уравнения вида (24). Пространственная конфигурация эксперимента учитывалась лишь частично. В любом случае для сравнения моделирования с экспериментом необходимо оценить величины Δ_1 , Δ_2 , Ω_1 , Ω_2 , δ_{12} , γ_1 , γ_2 и γ_{12} . Спектральное расстояние между максимумами спектра зависит от $\delta = \Delta_1 - \Delta_2$ и диполь-дипольного взаимодействия δ_{12} , которое определяется расстоянием $|\mathbf{r}_{12}|$ и углом θ . При этом знак δ_{12} определяет расположение максимумов сверх- и субизлучения относительно начала координат на рис. 3. Значения радиационных скоростей γ_1 и γ_2 оцениваются на основании результатов отдельных измерений. Связь γ_1 и γ_2 с эффективными значениями δ_{12} и γ_{12} должна быть согласована с оценкой величины фактора β . Частоты Раби Ω_1 и Ω_2 оцениваются путем контроля интенсивности возбуждения через величину интенсивности насыщения при принятии предположения о соотношении между величинами

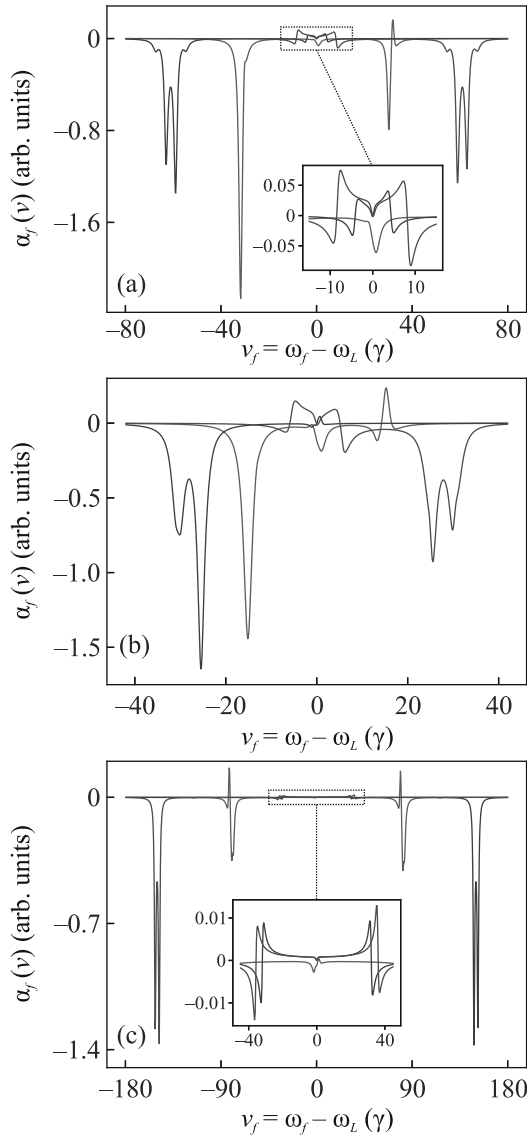


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a)–(c) – Спектры усиления и ослабления пробного сигнала для контуров КФЛ на рис. 3а–с соответственно. Синие кривые описывают сверхизлучательный режим КФЛ, красные – субизлучательный, зеленые – каскадный. Параметры приведены в подписи к рис. 3

моментов электронных переходов молекул. Интенсивность насыщения считается известной из экспериментов с одиночными молекулами. Таким образом, комбинация параметров, которая отвечает наблюдаемому контуру КФЛ, будет тем точнее, чем большому числу условий она удовлетворяет. Дополнительные условия следуют из дополнительных измерений [4–6]. В противном случае возможна значительная неопределенность конфигурации кооперативной системы, вплоть до вырождения контура КФЛ по ком-

бинациям параметров. Покажем, что в качестве нового дополнительного измерения можно использовать метод спектроскопии пробного поля.

На рисунке 4 приведены результаты численных расчетов функции (28), соответствующих максимумам зависимостей на рис. 3. Видно, что слабый сигнал может как поглощаться, так и усиливаться на определенных частотах при взаимодействии с кооперативной системой. Полосы прозрачности, усиления и поглощения имеют место при всех режимах КФЛ, однако полные спектральные картины различаются. Переходы между картинами осуществляются путем перестройки частоты управляющего лазера. Необходимо отметить, что для всех случаев ширина информативной полосы частот на рис. 4 примерно вдвое больше, чем для контура возбуждения КФЛ на рис. 3: 8 ГГц для условий эксперимента [4], 1.8 ГГц для условий в [5] и 8.6 ГГц для [6]. Наблюдение соседних пиков внутри одной полосы усиления или поглощения требует разрешения около 100 МГц.

На рисунке 5 представлен сильно уширенный модельный спектр возбуждения КФЛ для пары ДУИ

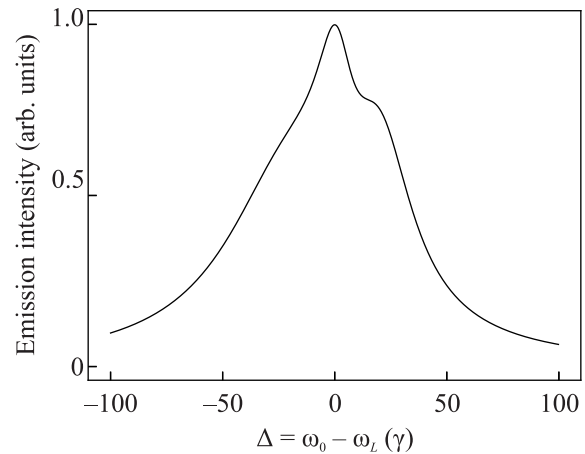


Рис. 5. Спектр возбуждения КФЛ для модельной пары ДУИ в пределе насыщения $\Omega_1 = \Omega_2 = 20\gamma$. Расстояние $|\mathbf{r}_{12}| = 0.06c/\omega_0$, разность частот переходов $\delta = 30\gamma$, дипольные моменты $\mathbf{d}_1 = \mathbf{d}_2$ направлены под углом $\theta = \pi/2$ к $\mathbf{r}_{12}$

в случае насыщения $\Omega_i = 20\gamma$. Насыщенная до такой степени система позволила бы достигнуть лучшего разрешения для зависимости (28), что показано на рис. 6. Здесь приведены изменения спектральных картин усиления и ослабления пробного сигнала, которые получаются путем управления параметрами возбуждения. На рисунке 6а демонстрируется изменение положения полос усиления и ослабления с ростом интенсивности (частоты Раби) воз-

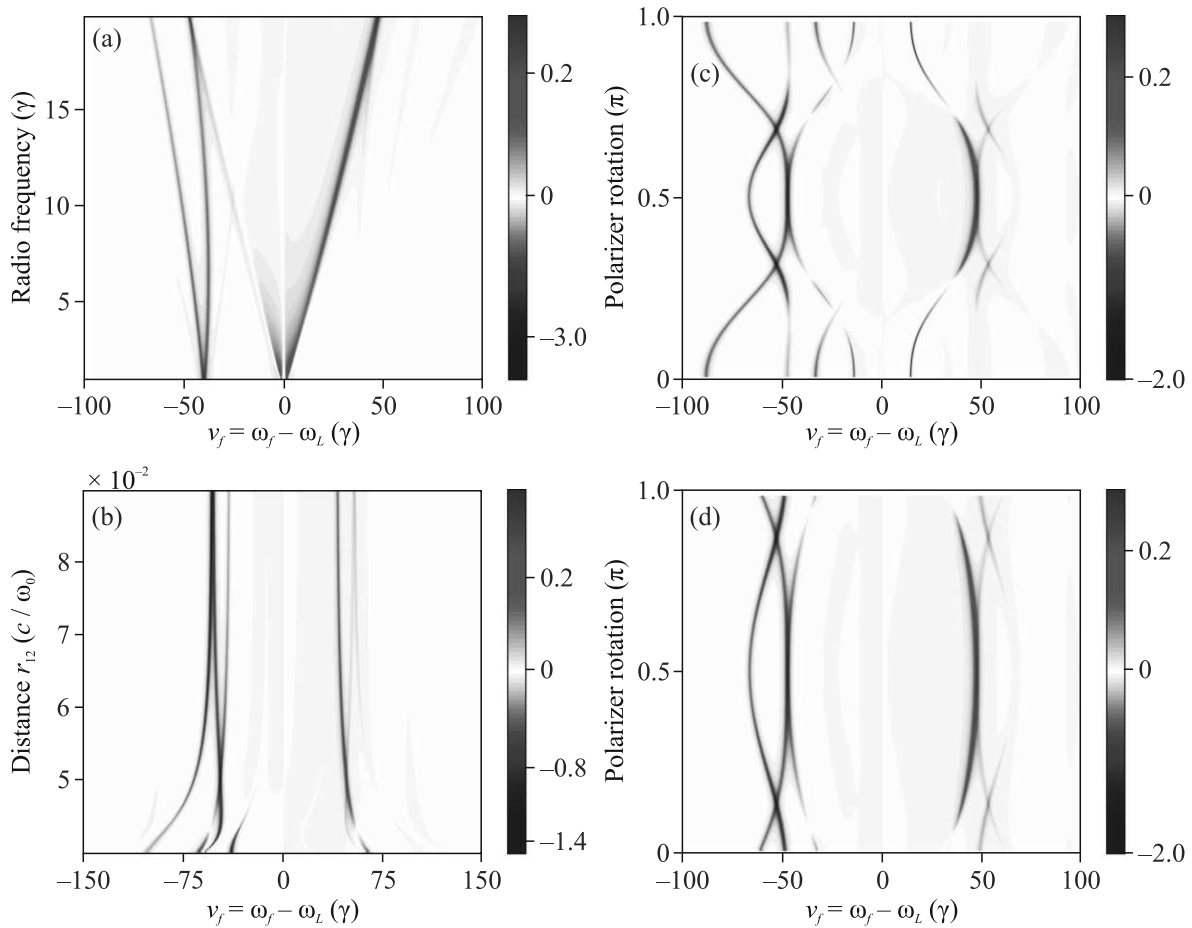


Рис. 6. (Цветной онлайн) Изменение спектра усиления и ослабления пробного сигнала кооперативной парой ДУИ с начальным контуром возбуждения КФЛ, представленным на рис. 5. (а) – Изменение частоты Раби от 1γ до 20γ . (с) и (d) – Вращение поляризации возбуждающего лазерного пучка на угол π . (b) – Различные расстояния между излучателями. Рисунки (а)–(d) соответствуют сверхизлучателю КФЛ ($\Delta = 20\gamma$). На рисунках (а)–(с) направление волнового вектора возбуждающего лазера к $\mathbf{r}_{12}$ составляет $\xi = \pi/2$, случай (d) представляет конфигурацию, когда $\xi = \pi/4$

буждения в сверхизлучательном режиме КФЛ. Верхняя граница зависимости соответствует контуру возбуждения на рис. 5. Рисунок 6b показывает, как изменялись бы положения полос для разных расстояний $|\mathbf{r}_{12}|$ при прочих фиксированных параметрах для контура на рис. 5 в режиме сверхизлучения. Отдельного внимания заслуживает анализ изменений всех вариантов спектральных картин при вращении поляризации управляющего пучка. Для сверхизлучения в начальной и конечной картине при повороте поляризатора на угол π управляемая поляризацией перестройка спектров показана на рис. 6с и d. При этом контур возбуждения КФЛ также меняется за счет изменения угла θ и величины диполь-дипольного взаимодействия. В зависимости (28) это приводит как к изменению расстояний между полосами усиления и поглощения, так и к увеличению или уменьшению их числа. При залегании каждого

ДУИ на разных глубинах относительно плоскости, нормальной к $\mathbf{k}_L$, проявляется наличие угла ξ . Это видно из сравнения рис. 6с и d.

6. Заключение. Таким образом, в работе было показано, что измерение спектров поглощения и усиления пробного сигнала при исследовании КФЛ пар КИ позволяет выявить дополнительные зависимости от ключевых параметров, характеризующих кооперативную систему. Анализ изменений, спектров поглощения и усиления пробного сигнала, связанных с контролем мощностных и поляризационных характеристик управляющего пучка, может позволить определить пространственную ориентацию оси системы КИ относительно систем возбуждения и регистрации и степень контраста фотофизических свойств КИ. Также, спектральная картина модификаций интенсивности пробного сигнала раскрывает структуру коллективных возбужденных состояний, опреде-

ляющих КФЛ. Вместе с тем определение параметров кооперативной системы может быть осуществлено только на основе моделирования спектральных зависимостей. В работе приведены основы удобной техники расчета необходимых спектров. Расчетный метод основан на квантово-кинетическом формализме для многокомпонентной матрицы плотности системы КИ и фотонных мод. В рамках оригинального подхода возможно получение производящих уравнений для матрицы плотности кооперативной системы излучателей и корреляционной матрицы излучателей с полем для произвольной конфигурации задачи. Показано, что применение данного метода вычислений для моделирования спектра возбуждения КФЛ обеспечивает полное согласие с известными в литературе экспериментами по наблюдению сверхизлучательного, каскадного и субизлучательного свечения пар примесных органических молекул. Также из проведенного анализа следует, что предложенные экспериментальные и расчетные решения создают предпосылки для разработки новых методов управляемой конверсии слабых оптических сигналов с использованием эффектов квантового спутывания. Полагаем, что полученные результаты также важны для широкого круга квантовых излучателей различной природы [33–37].

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках темы государственного задания Физического института им. П. Н. Лебедева РАН (FFMR-2024-0017).

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

1. R. H. Dicke, Phys. Rev. **93**(1), 99 (1954).
2. G. S. Agarwal, R. Saxena, L. M. Narducci, D. H. Feng, and R. Gilmore, Phys. Rev. A **21**(1), 257 (1980).
3. T. G. Rudolph, Z. Ficek, and B. J. Dalton, Phys. Rev. A **52**(1), 636 (1995).
4. C. Hettich, C. Schmitt, J. Zitzmann, S. Kühn, I. Gerhardt, and V. Sandoghdar, Science **298**(5592), 385 (2002).
5. J.-B. Trebbia, Q. Deplano, P. Tamarat, and B. Lounis, Nat. Commun. **13**(1), 1 (2022).
6. C. M. Lange, E. Daggett, V. Walther, L. Huang, and J. D. Hood, Nat. Phys. **20**(5), 836 (2024).
7. А. В. Наумов, УФН **183**, 633 (2013).
8. A. V. Naumov, I. Y. Eremchev, and A. A. Gorshchev, Eur. Phys. J. D **68**(11), 348 (2014).
9. G. Wrigge, I. Gerhardt, J. Hwang, G. Zumofen, and V. Sandoghdar, Nat. Phys. **4**(1), 60 (2008).
10. П. А. Апанасевич, *Основы теории взаимодействия света с веществом*, Наука и техника, Минск (1977).
11. B. R. Mollow, Phys. Rev. **188**(5), 1869 (1969).
12. B. R. Mollow, Phys. Rev. A **5**(3), 1522 (1972).
13. F. Y. Wu, S. Ezeikeil, M. Ducloy, and B. R. Mollow, Phys. Rev. Lett. **38**(19), 1077 (1977).
14. C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud, J. Phys. B At. Mol. Phys. **10**(3), 345 (1977).
15. X. Xu, B. Sun, P. R. Berman, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, and L. J. Sham, Science **317**(5840), 929 (2007).
16. B. R. Mollow, Phys. Rev. **5**(5), 2217 (1972).
17. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Наука, М. (1979).
18. P. Meystre and M. Sargent, *Elements of Quantum Optics*, Springer, Berlin, Heidelberg (2007).
19. Z. Ficek, R. Tanas, and S. Kielich, J. Phys. B At. Mol. Phys. **17**(8), 1491 (1984).
20. М. О. Скалли, М. С. Зубайри, *Квантовая оптика*, Физматлит, М. (2003).
21. Л. Мандель, Э. Вольф, *Оптическая когерентность и квантовая оптика*, Физматлит, М. (2000).
22. M. G. Gladush, D. V. Kuznetsov, and V. K. Roerich, Eur. Phys. J. D **64**(2–3), 511 (2011).
23. M. Bonitz, *Quantum kinetic theory*, Springer, Berlin (2016).
24. G. S. Agarwal, *Quantum statistical theories of spontaneous emission and their relation to other approaches*, Springer, Berlin, Heidelberg (1974).
25. D. V. Kuznetsov, V. K. Roerich, and M. G. Gladush, JETP **113**(4), 647 (2011).
26. Z. Ficek and S. Swain, *Quantum interference and coherence: theory and experiments*, Springer Science & Business Media, N.Y. (2005).
27. M. G. Gladush, T. A. Anikushina, A. A. Gorshchev, T. V. Plakhotnik, A. V. Naumov, JETP **128**(5), 655 (2019).
28. A. V. Naumov, A. A. Gorshchev, M. G. Gladush, T. A. Anikushina, A. V. Golovanova, J. Köhler, and L. Kador, Nano Lett. **18**(10), 6129 (2018).
29. Z. Ficek and R. Tanaś, Phys. Rep. **372**(5), 369 (2002).
30. C. Hettich, *Coherent Optical Dipole Coupling of Two Individual Molecules at Nanometre Separation*, University of Konstanz (2002) (диссертационная работа).
31. C. Hofmann, A. Nicolet, M. A. Kolchenko, and M. Orrit, Chem. Phys. **318**(1–2), 1 (2005).
32. F. Jelezko, B. Lounis, and M. Orrit, J. Chem. Phys. **107**(6), 1692 (1997).
33. А. А. Ремпель, О. В. Овчинников, И. А. Вайнштейн, С. В. Ремпель, Ю. В. Кузнецова, А. В. Наумов, М. С. Смирнов, И. Ю. Ерёмчев, А. С. Вохминцев, С. С. Савченко, Успехи химии **93**(4), RCR5114 (2024).

34. В. А. Баитова, М. А. Князева, И. А. Муканов, А. О. Тарасевич, А. В. Наумов, А. Г. Сон, С. А. Козюхин, И. Ю. Ерёмчев, Письма в ЖЭТФ **118**(7–8), 570 (2023).
35. A.YU. Neliubov, Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. **87**(53), S421 (2023).
36. А. И. Аржанов, А. О. Савостьянов, К. А. Магарян, К. Р. Каримуллин, А. В. Наумов, Фотоника **16**(2), 96 (2022).
37. А. И. Аржанов, А. О. Савостьянов, К. А. Магарян, К. Р. Каримуллин, А. В. Наумов, Фотоника **15**(8), 622 (2021).

Стабилизация оптических пузырей вблизи оси винтового световода

В. П. Рубан¹⁾

Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 24 июня 2024 г.

После переработки 30 июня 2024 г.

Принята к публикации 30 июня 2024 г.

Численно показано, что в световоде с винтовой симметрией связанные нелинейные уравнения Шредингера, описывающие взаимодействие левой и правой круговых поляризаций параксиальной оптической волны в дефокусирующей керровской среде с аномальной дисперсией, имеют устойчивые решения в виде стационарно вращающихся продолговатых пузырей с присоединенными на концах несколькими оптическими вихрями. Пузырь представляет собой произвольно длинную квазицилиндрическую трехмерную полость в одной из компонент, заполненную противоположной компонентой. Поперечный профиль пузыря определяется формой сечения световода, шагом винта, количеством вихрей и фоновой интенсивностью окружающей компоненты, но не полным количеством заполняющей компоненты.

DOI: 10.31857/S1234567824140040, EDN: KSDVPG

Введение. При изучении нелинейных волн большой интерес представляют долгоживущие когерентные структуры, в частности – солитоны и вихри (см., например, [1–16], и ссылки там). Время от времени исследователи получают в лабораторных и численных экспериментах все новые типы подобных объектов. Особенно богаты в этом отношении многокомпонентные волновые системы, и оптика – самый очевидный тому пример, так как свет может иметь две независимые поляризации. Поэтому есть смысл рассматривать оптическую волну в “нестандартных” условиях в надежде обнаружить новые эффекты. Подтверждением успешности такого подхода является данная работа – далее будет показано, что под влиянием пространственной неоднородности специального вида нелинейное взаимодействие между поляризациями может сформировать ранее неизвестные волновые структуры.

Предметом нашего внимания будет квазимонохроматическая слабонелинейная волна, распространяющаяся параксиально в широком световоде некруглого сечения с винтовой симметрией. Такой выбор мотивирован формальной аналогией между нелинейной оптикой и разреженными бозе-конденсатами. Как известно, параксиальная оптика в локально изотропной керровской среде с учетом двух круговых поляризаций света описывается парой связанных нелинейных уравнений Шредингера (НУШ) [17]. В случае дефокусирующей нелинейности и аномальной дисперсии уравнения по форме совпадают с уравнениями Гросса–Питаевского

для бинарного бозе-конденсата холодных атомов в режиме разделения фаз [18–24]. В двухкомпонентной системе возможны доменные стенки, разделяющие области с правой и левой круговыми поляризациями [25–31]. Интересные трехмерные структуры получаются при сочетании доменных стенок и квантованных вихрей (см. [32–36] и ссылки там). В бозе-конденсатах стабильные вихревые структуры поддерживаются вращением потенциала ловушки. В оптике роль эволюционной переменной вместо времени t играет (перемасштабированная) координата ζ вдоль направления распространения света, а аналогом вращения выступает винтовая симметрия световода [37], когда профиль диэлектрической проницаемости зависит от двух комбинаций переменных:

$$\tilde{x} = x \cos \Omega \zeta + y \sin \Omega \zeta,$$

$$\tilde{y} = y \cos \Omega \zeta - x \sin \Omega \zeta.$$

В этом случае аналогом временного периода вращения ловушки оказывается шаг винта $S = 2\pi/\Omega$. Роль третьей “пространственной” координаты в оптике играет “запаздывающее” время $\tau = t - \zeta/v_{\text{гр}}$. Существенным практическим отличием между бозе-конденсатами и световыми пучками является трансляционная симметрия вдоль этой третьей координаты в оптическом случае. Поэтому продольно локализованные решения уравнений не актуальны для физики холодных газов, но прямо применимы к оптике.

В недавней публикации [37] были численно получены некоторые квазистационарные конфигурации

¹⁾e-mail: ruban@itp.ac.ru

бинарных оптических пучков, в которых обе компоненты световой волны выступают как бы “на равных правах”. В данной работе найдены устойчивые стационарные решения нового типа – произвольно длинные световые “пузыри” (сгустки условно второй компоненты внутри условно первой компоненты), удерживаемые вблизи оси винтового волновода с помощью нескольких квантованных вихрей. Подчеркнем, что необходимо наличие двух или более вихрей в первой компоненте. Один вихрь при увеличении размеров пузыря не способен удержать его вблизи оси, как было отмечено в работе [35]. Теоретическая интерпретация основных свойств новых трехмерных структур дана на основе анализа энергетических зависимостей для строго двумерных решений с содержанием n второй “световой жидкости” в присутствии Q штук вихрей. Можно сразу сказать, что явление формирования квазиодномерных пузырей подобно образованию конденсированной фазы, граничащей с вакуумом, для воображаемого вещества с плотностью энергии $\varepsilon(n)$, если при некоторой конечной плотности n_0 давление $p = n^2 d(\varepsilon(n)/n)/dn$ обращается в ноль. Другими словами, функция $\varepsilon(n)/n$ имеет нетривиальный минимум (это происходит в точке, где график $\varepsilon(n)$ касается прямой, проведенной из начала координат). Само значение n_0 сильно зависит от “скорости вращения” Ω , количества вихрей Q , и от соответствующей “полной плотности” $n_1 + n$ (см. примеры графиков на рис. 1). Длина же отрезка конденсированной фазы может быть произвольно большой.

Уравнения и численный метод. Как и в предыдущих работах [35, 37], мы рассматриваем прозрачную оптическую среду с дефокусирующей керровской нелинейностью и с законом дисперсии линейных волн $k(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)}\omega/c$, предполагая наличие диапазона частот с аномальной дисперсией $k''(\omega) < 0$. Речь идет о низкочастотном крае окна прозрачности (в реальных веществах это часто инфракрасная область спектра; см., например, [38, 39]). В такой ситуации применимо известное уравнение для векторной огибающей слабонелинейной квазимонохроматической световой волны (с несущей частотой ω_0 ; подразумевается выбор комплексной экспоненты в виде $\exp[ik_0\zeta - i\omega_0 t]$) в параксиальном приближении:

$$2k_0[-i\partial_\zeta - ik'_0\partial_t + k''_0\partial_t^2/2]\mathbf{E} - \Delta_\perp \mathbf{E} \approx \frac{k_0^2}{\varepsilon(\omega_0)} \left[\tilde{\varepsilon}(x, y, \zeta) \mathbf{E} + \alpha |\mathbf{E}|^2 \mathbf{E} + \beta (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) \mathbf{E}^* \right]. \quad (1)$$

Здесь $k'_0 = 1/v_{\text{gr}}$ – обратная групповая скорость света в среде, k''_0 – отрицательный коэффициент хроматической дисперсии, $\tilde{\varepsilon}(x, y, \zeta)$ – малая неоднородность

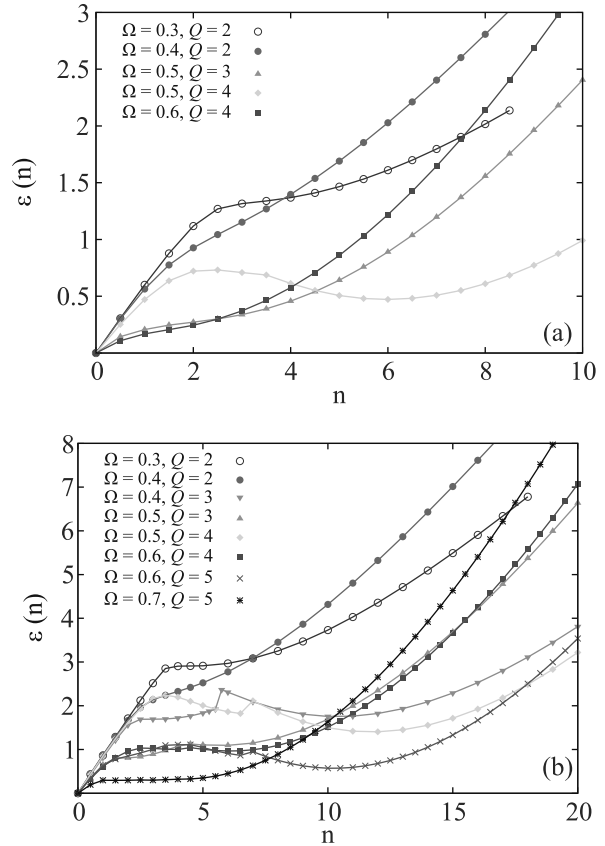


Рис. 1. (Цветной онлайн) Энергетические зависимости для различных скоростей вращения и числа вихрей при значениях суммарной общей плотности $n_+ = (n_1 + n)$ на единицу длины: (a) – $n_+ = 60.0$; (b) – $n_+ = 100.0$

диэлектрической проницаемости на несущей частоте, $\alpha(\omega_0)$ и $\beta(\omega_0)$ – отрицательные нелинейные коэффициенты. Вводится новая переменная $\tau = t - \zeta/v_{\text{gr}}$ – “запаздывающее” время. Амплитуда электрического поля выражается в терминах медленных амплитуд $A_{1,2}(x, y, \tau, \zeta)$ левой и правой круговых поляризаций,

$$\mathbf{E} \approx [(\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)A_1 + (\mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y)A_2]/\sqrt{2}, \quad (2)$$

и тогда световая волна описывается парой связанных НУШ [17], аналогично бинарному бозе-конденсату холодных атомов (при замене переменных $\zeta \rightarrow t, \tau \rightarrow z$). После перемасштабирования получается безразмерная система

$$i\frac{\partial A_{1,2}}{\partial \zeta} = \left[-\frac{1}{2}\Delta + U(x, y, \zeta) + |A_{1,2}|^2 + g|A_{2,1}|^2 \right] A_{1,2}, \quad (3)$$

где $\Delta = \partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_\tau^2$ – трехмерный оператор Лапласа в “координатном” пространстве $\mathbf{r} = (x, y, \tau)$, а внешний потенциал $U \propto -\tilde{\varepsilon}(x, y, \zeta)$. Параметр перекрестной фазовой модуляции $g = 1 + 2\beta/\alpha$. В предположении быстрого нелинейного отклика он равен 2. Суще-

ственно, что нелинейное взаимодействие между двумя компонентами сводится к простой некогерентной связи посредством коэффициента g и сохраняет количество каждой компоненты $N_{1,2} = \int |A_{1,2}|^2 dx dy d\tau$. Таким образом, модель описывает две квантовые сжимаемые жидкости с плотностями $I_{1,2} = |A_{1,2}|^2$ и скоростями $\mathbf{v}_{1,2} = \nabla \text{Arg}(A_{1,2})$.

Как и в недавней работе [37], здесь мы сосредоточимся на винтовых волноводах с плоским дном и резкими стенками. Такие волноводы должно быть легче реализовать экспериментально, особенно если Керровская среда – жидкая. Но для удобства численного моделирования мы будем аппроксимировать соответствующую яму с вертикальными стенками выражением

$$U = C[1 - \exp(-[(\tilde{x}^2 + \kappa^2 \tilde{y}^2)/36]^5)], \quad (4)$$

с большим параметром $C = 42$ и поперечной анизотропией $\kappa^2 = (1 + 0.3)/(1 - 0.3) = 13/7$. Анизотропия необходима для воздействия вращения.

Принципиально важно, что уравнения (3) представляют собой гамильтонову систему

$$i\partial A_{1,2}/\partial \zeta = \delta \mathcal{H}/\delta A_{1,2}^*.$$

Соответствующий неавтономный гамильтониан есть

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & \frac{1}{2} \int (|\nabla A_1|^2 + |\nabla A_2|^2) dx dy d\tau \\ & + \int U(x, y, \zeta) (|A_1|^2 + |A_2|^2) dx dy d\tau \\ & + \frac{1}{2} \int (|A_1|^4 + |A_2|^4 + 2g|A_1|^2|A_2|^2) dx dy d\tau. \end{aligned} \quad (5)$$

Этот функционал не сохраняется в процессе эволюции. Однако, поскольку во вращающейся системе координат мы имеем автономную систему, интегралом движения является функционал

$$\mathcal{H}_\Omega = \mathcal{H} - \Omega \int [A^\dagger (iy\partial_x - ix\partial_y)A] dx dy d\tau, \quad (6)$$

где $A = (A_1, A_2)^T$ – двухкомпонентный столбец.

В основе данной работы лежит тот факт, что стационарно вращающиеся устойчивые решения системы (3) являются “точками локального минимума” для функционала $\mathcal{H}_\Omega$ (записанного в переменных $\tilde{x}$ и $\tilde{y}$) при фиксированных N_1 и N_2 .

Для численного моделирования уравнений (3) использовался стандартный метод (Split-Step Fourier Method) второго порядка точности по эволюционной переменной ζ в исходной (невращающейся) системе координат. Вычислительная область по переменным x, y, τ имела форму прямоугольного параллелепипеда с размерами $6\pi \times 6\pi \times 12\pi$, с периодическими граничными условиями. Но, поскольку потенциальная яма

достаточно глубока, функции $A_{1,2}$ быстро спадают практически до нуля в поперечных направлениях, так что влияние поперечных границ пренебрежимо мало.

Точность вычислений контролировалась сохранением интегралов движения до 4–6 десятичных знаков на интервале $0 < \zeta < 600$ (что практически составляет длину распространения в несколько десятков метров при выборе поперечного масштаба порядка нескольких десятков длин волн).

Для численного приготовления близкого к стационару начального состояния применялась диссипативная процедура, состоящая на каждом цикле из двух шагов. Первый шаг соответствовал чисто градиентной диссипативной динамике

$$-\partial A_{1,2}/\partial \eta = \delta \mathcal{H}_\Omega / \delta A_{1,2}^*,$$

на малом интервале вспомогательной переменной η , а на втором шаге каждая функция $A_{1,2}(x, y, \tau)$ домножалась на соответствующий множитель $f_{1,2}$ с целью удержания заданных значений $N_{1,2}$. Суммарный интервал переменной η составлял несколько десятков, так что в результате все жесткие степени свободы были эффективно погашены и система оказывалась недалеко от минимума $\mathcal{H}_\Omega$.

Результаты. Сначала в режиме свободного поиска была проведена серия предварительных численных экспериментов с начальными условиями в виде слегка возмущенного заполненного кратного вихря. В зависимости от параметров, последующая динамика оказалась существенно разной. В некоторых случаях наблюдались лишь малые колебания около устойчивого продольно однородного состояния. Но при небольших заполнениях в системе развивалась неустойчивость, в результате которой происходило перераспределение второй компоненты вдоль оси пучка и образовывались характерные структуры в виде пузырей с несколькими присоединенными “опустевшими” однократными продольными вихрями (очень похожие на те, что показаны далее на рис. 2 и 3, но не настолько же ровные и стационарные).

Для интерпретации результатов этой предварительной серии понадобилось более детальное изучение чисто двумерных стационарных состояний. Чтобы найти такие состояния с хорошей точностью, интервал переменной η в диссипативной процедуре составлял типично несколько сотен, а иногда доходил до тысяч. Длительная релаксация имела место в промежуточном по переменной $n = \int I_2 dx dy$ режиме: между конфигурациями со всеми отдельно расположенными почти пустыми вихрями – с одной сторо-

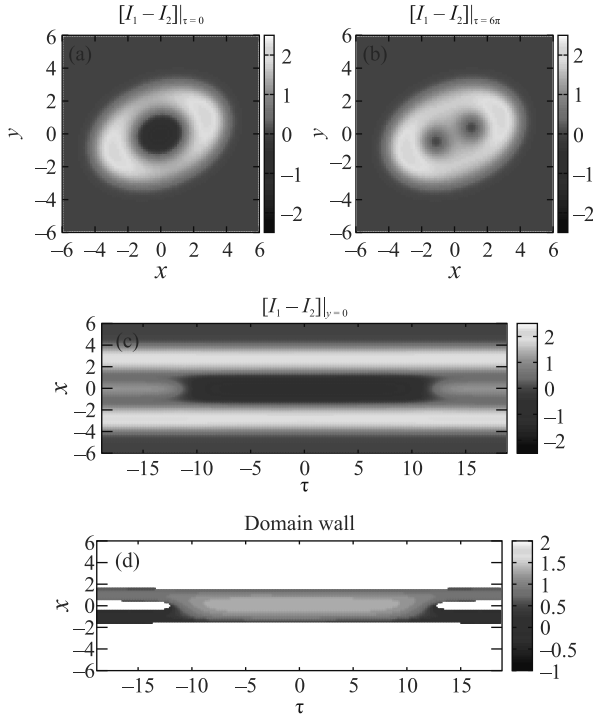


Рис. 2. (Цветной онлайн) Численный пример пузыря с двумя вихрями при “частоте вращения” $\Omega = 0.4$ и среднем по переменной τ заполнении $\langle n_+ \rangle = 60$, на дистанции $\zeta = 590$. На панелях показаны: (a) – поперечное сечение светового пучка через пузырь; (b) – поперечное сечение через пустые вихри; (c) – продольное сечение плоскостью $y = 0$; (d) – общий вид сбоку на условную поверхность пузыря и присоединенные к нему вихревые нити (здесь для эффекта трехмерности цвет отмеченных точек числовой решетки, находящихся вблизи середины доменной стенки либо в сердцевине вихря, соответствует координате y , которая перпендикулярна плоскости рисунка)

ны, и одним заполненным кратным вихрем при достаточно больших n – с другой стороны. В этом промежуточном режиме только часть вихрей объединялась в заполненный вихрь с меньшей кратностью, а остальные вихри “предпочитали” располагаться каждый отдельно (и иногда – несимметрично). Наличие нескольких локальных минимумов функционала энергии со своими областями притяжения могло приводить к изломам или даже скачкам на соответствующих графиках энергии как функции n . По счастью, для наших целей нет нужды вникать во все эти сложности, поскольку промежуточная область заведомо неустойчива по отношению к трехмерным возмущениям. Практически важно наличие устойчивых решений в области малых n и в области достаточно больших n .

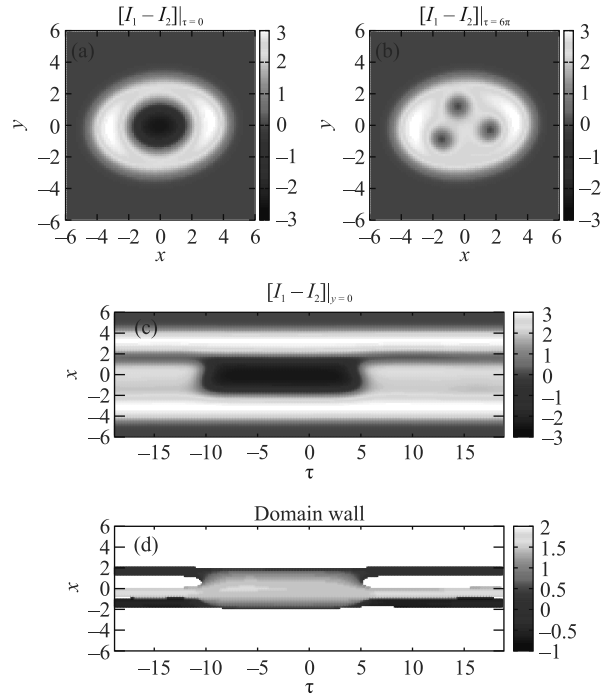


Рис. 3. (Цветной онлайн) Пример пузыря с тремя вихрями при $\Omega = 0.4$, $\langle n_+ \rangle = 100$, $\zeta = 550$

На рисунке 1 представлены примеры зависимостей энергии двумерных решений от n для разных наборов остальных параметров, включая сумму $n_+ = (n_1 + n)$. В каждом случае из полной энергии вычтено ее значение при $n = 0$, т.е. в отсутствие второй компоненты. Строго говоря, интерес представляют последовательности состояний с фиксированным значением химического потенциала создающей фон первой компоненты. Но практически это условие близко соответствует равенству $(n_1 + n) = \text{const}$ (с точностью около нескольких процентов). Для качественного анализа лучшей точности и не требуется.

На большинстве из представленных на рис. 1 графиков обращает на себя внимание наличие нетривиального минимума у отношения $\varepsilon(n)/n$. Если рассматривать $\varepsilon(n)$ как уравнение состояния некоторой фиктивной среды, связывающее плотность числа ее частиц и плотность внутренней энергии, то указанный минимум отвечает нулевому давлению. При слегка больших плотностях имеем положительное давление, а при меньших – отрицательное (т.е. натяжение). Поэтому однородные по переменной τ состояния в некоторой прилегающей области значений n устойчивы. Но если в среде с натяжением сделать “разрывы”, то она соберется в одномерные капли, соседствующие с “вакуумом”. С точки зрения нашей трехмерной системы каждая такая капля пред-

ставляет собой продолговатый пузырь внутри первой компоненты, заполненный второй компонентой. На каждом из двух концов пузыря состыкованы две стационарные двумерные конфигурации, причем в одной из них присутствует только первая компонента с разделенными вихрями – “вакуум”, а в другой конфигурации имеется один кратный вихрь с заполненной сердцевинкой – “среда”.

Прямое численное моделирование с подходящими начальными состояниями подтвердило существование и устойчивость подобных структур. Два первых примера (для пузырей с двумя и с тремя вихрями) приведены на рис. 2 и 3. Там на панелях (а), (b) и (с) цветом показана разность интенсивностей первой и второй компонент волны в трех различных сечениях светового пучка. Поскольку имеет место режим разделения фаз (т.е. произведение $I_1 I_2$ пренебрежимо мало почти везде, за исключением относительно узкой переходной области – доменной стенки), то получается, что области с положительным значением разности (светлые тона) заполнены почти исключительно первой компонентой, а области с отрицательным значением заполнены в основном второй компонентой (темные тона). Поэтому нет необходимости представлять на рисунках каждое поле интенсивности по отдельности. Только на ширине доменной стенки разность $[I_1 - I_2]$ не дает полной информации, но для общего понимания картины это не столь важно. На панелях (d) показан вид со стороны на доменную стенку, являющуюся границей пузыря, и на присоединенные к нему вихревые нити. Еще два примера представлены на рис. 4 и 5 – для пузырей с четырьмя и с пятью вихрями. Поскольку в качественном отношении все пузыри устроены одинаково, то на этих рисунках показаны только поперечные сечения. Стоит обратить внимание, что при большом числе вихрей сечение пузырей “приплюснутое”, а пустые вихри расположены скорее вдоль эллипса, а не окружности.

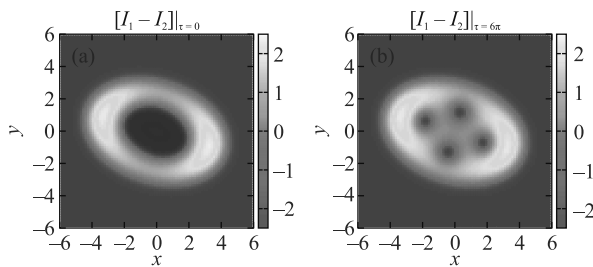


Рис. 4. (Цветной онлайн) Поперечные сечения светового пучка для пузыря с четырьмя вихрями при $\Omega = 0.5$, $\langle n_+ \rangle = 60$, $\zeta = 590$

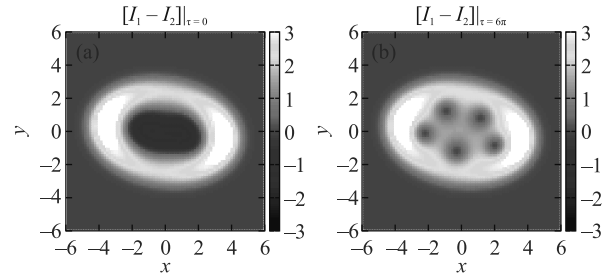


Рис. 5. (Цветной онлайн) Поперечные сечения светового пучка для пузыря с пятью вихрями при $\Omega = 0.6$, $\langle n_+ \rangle = 100$, $\zeta = 560$

Во всех приведенных выше примерах состояния не были строго стационарными, поскольку после подготовительной диссипативной процедуры все еще оставались небольшие возмущения, которые, впрочем, не усиливались на больших дистанциях распространения и тем самым только подтвердили устойчивый характер найденных структур.

Надо сказать, что при некоторых значениях параметров двумерная система пустых вихрей оказывается неустойчивой – вихрям не хватает ширины волновода, чтобы разместиться, тогда как заполненный вихрь соответствующей кратности устроен более компактно и существует в широком диапазоне переменной n (например, при $\Omega = 0.4$, $Q = 3$, $n_+ = 60$; поэтому соответствующего графика нет на рис. 1а). В таких случаях “недозаполненный” трехмерный вихрь сначала эволюционирует к образованию пузыря, а затем, если опустевшие участки вихревых нитей оказываются достаточно длинными, они постепенно приближаются к стенке волновода и перезамыкаются с ней. Через образовавшиеся каналы вторая компонента уходит на поверхность пучка. В конце концов вся конструкция разрушается. Соответствующий пример приведен на рис. 6. Другой возможный сценарий развития событий – когда сам пузырь становится локально неустойчивым по отношению к поперечным смещениям и прорывается к стенке волновода (не показано).

Закключение. Таким образом, численное моделирование показало, что вращение, создаваемое винтовым световодом, приводит к глубоким изменениям в динамике оптической волны. В частности, оно делает теоретически возможным существование структур нового типа. Такие структуры существенно пополняют “коллекцию” известных трехмерных солитонов [2]. На данном этапе эти результаты пока что – чисто умозрительные, хотя они и получены в рамках фундаментальной модели (1). Необходима дальнейшая работа как со стороны теории – в направле-

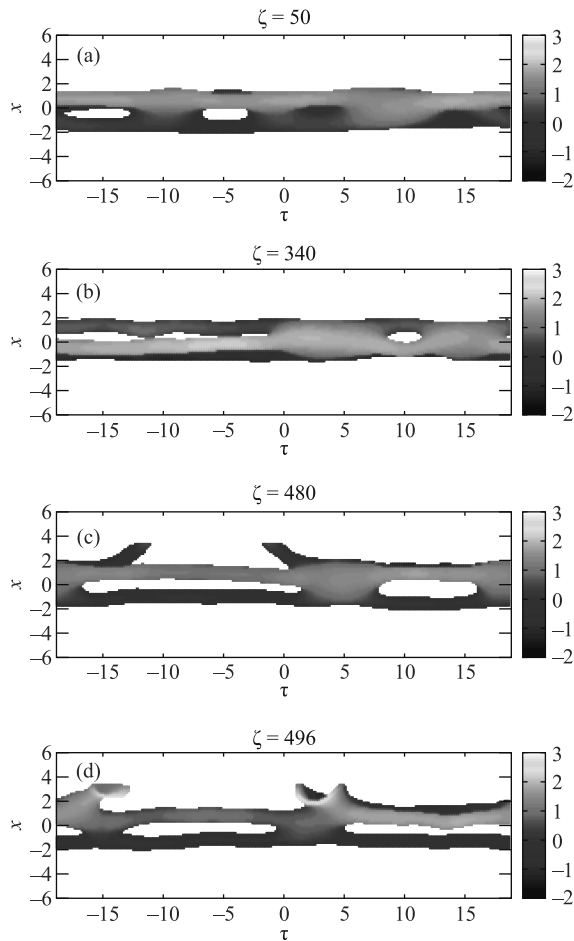


Рис. 6. (Цветной онлайн) Пример эволюции мало заполненного тройного вихря при таких значениях параметров ($\Omega = 0.4$, $\langle n_+ \rangle = 60$), когда соответствующая двумерная система не имеет стационарного решения с $n = 0$. Основные этапы: (a) – начало формирования пузырей; (b) – появление достаточно длинного участка с незаполненными вихревыми нитями; (c) – пересоединение одной из нитей со стенкой волновода (сама стенка не показана, поэтому нить выглядит разорванной); (d) – выход второй компоненты из пузыря на поверхность светового пучка.

нии получения аналитических оценок для $\varepsilon(n)$ и т.п., так и со стороны возможного будущего эксперимента – в направлении подбора обладающих нужными свойствами материалов. Сейчас трудно предвидеть, насколько серьезные технические трудности могут встретиться на пути реализации подобного эксперимента.

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках госзадания по теме FFWR-2024-0013.

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

1. Y. Kivshar and G. P. Agrawal, *Optical Solitons: From Fibers to Photonic Crystals*, 1st ed., Academic Press, California, USA (2003).
2. B. A. Malomed, *Multidimensional Solitons*, AIP Publishing (online), Melville, N. Y. (2022); <https://doi.org/10.1063/9780735425118>
3. F. Baronio, S. Wabnitz, and Yu. Kodama, Phys. Rev. Lett. **116**, 173901 (2016).
4. P. G. Kevrekidis, D. J. Frantzeskakis, and R. Carretero-González, *The Defocusing Nonlinear Schrödinger Equation: From Dark Solitons to Vortices and Vortex Rings*, SIAM, Philadelphia (2015).
5. V. N. Serkin and A. Hasegawa, JETP Lett. **72**, 89 (2000).
6. С. К. Турицын, Н. Н. Розанов, И. А. Яруткина, А. Е. Беднякова, С. В. Федоров, О. В. Штырина, М. П. Федорук, УФН **186**, 713 (2016).
7. Н. А. Веретеннов, Н. Н. Розанов, С. В. Федоров, УФН **192**, 143 (2022).
8. S. Raghavan and G. P. Agrawal, Opt. Commun. **180**, 377 (2000).
9. B. A. Malomed, D. Mihalache, F. Wise, and L. Torner, J. Opt. B **7**, R53 (2005).
10. W. H. Renninger and F. W. Wise, Nat. Commun. **4**, 1719 (2013).
11. F. Eilenberger, K. Prater, S. Minardi, R. Geiss, U. Röpke, J. Kobelke, K. Schuster, H. Bartelt, S. Nolte, A. Tünnermann, and T. Pertsch, Phys. Rev. X **3**, 041031 (2013).
12. O. V. Shtyrina, M. P. Fedoruk, Y. S. Kivshar, and S. K. Turitsyn, Phys. Rev. A **97**, 013841 (2018).
13. S. V. Sazonov, A. A. Kalinovich, M. V. Komissarova, and I. G. Zakharova, Phys. Rev. A **100**, 033835 (2019).
14. Е. Д. Залозная, А. Е. Дормидонов, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, В. П. Кандидов, Письма в ЖЭТФ **113**, 817 (2021).
15. P. Parra-Rivas, Y. Sun, and S. Wabnitz, Opt. Commun. **546**, 129749 (2023).
16. В. П. Рубан, Письма в ЖЭТФ **119**, 579 (2024).
17. А. Л. Берхоев, В. Е. Захаров, ЖЭТФ **58**, 903 (1970).
18. Tin-Lun Ho and V. B. Shenoy, Phys. Rev. Lett. **77**, 3276 (1996).
19. H. Pu and N. P. Bigelow, Phys. Rev. Lett. **80**, 1130 (1998).
20. B. P. Anderson, P. C. Haljan, C. E. Wieman, and E. A. Cornell, Phys. Rev. Lett. **85**, 2857 (2000).
21. S. Coen and M. Haelterman, Phys. Rev. Lett. **87**, 140401 (2001).
22. G. Modugno, M. Modugno, F. Riboli, G. Roati, and M. Inguscio, Phys. Rev. Lett. **89**, 190404 (2002).
23. E. Timmermans, Phys. Rev. Lett. **81**, 5718 (1998).
24. P. Ao and S. T. Chui, Phys. Rev. A **58**, 4836 (1998).
25. M. Haelterman and A. P. Sheppard, Phys. Rev. E **49**, 3389 (1994).

26. M. Haelterman and A. P. Sheppard, *Phys. Rev. E* **49**, 4512 (1994).
27. A. P. Sheppard and M. Haelterman, *Opt. Lett.* **19**, 859 (1994).
28. Yu. S. Kivshar and B. Luther-Davies, *Phys. Rep.* **298**, 81 (1998).
29. N. Dror, B. A. Malomed, and J. Zeng, *Phys. Rev. E* **84**, 046602 (2011).
30. A. H. Carlsson, J. N. Malmberg, D. Anderson, M. Lisak, E. A. Ostrovskaya, T. J. Alexander, and Yu. S. Kivshar, *Opt. Lett.* **25**, 660 (2000).
31. A. S. Desyatnikov, L. Torner, and Yu. S. Kivshar, *Progress in Optics* **47**, 291 (2005).
32. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 539 (2021).
33. В. П. Рубан, *ЖЭТФ* **160**, 912 (2021).
34. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **116**, 324 (2022).
35. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 292 (2023).
36. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 590 (2023).
37. В. П. Рубан, *ЖЭТФ* **164**, 863 (2023).
38. X. Liu, B. Zhou, H. Guo, and M. Bache, *Opt. Lett.* **40**, 3798 (2015).
39. X. Liu and M. Bache, *Opt. Lett.* **40**, 4257 (2015).

Пространственно-временная локализация областей эмиссии рентгеновского излучения в протяженном высоковольтном разряде

Е. В. Паркевич⁺¹⁾, К. В. Шпаков⁺, А. А. Родионов⁺, И. С. Байдин⁺, Я. К. Болотов⁺⁺, А. В. Огинов⁺

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

⁺⁺Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 20 мая 2024 г.

После переработки 20 июня 2024 г.

Принята к публикации 27 июня 2024 г.

Впервые проведены синхронные пространственно-временные измерения эмиссий жесткого рентгеновского излучения во время развития высоковольтного разряда при напряжениях ~ 1 МВ в полуметровых открытых воздушных промежутках. С использованием группы сцинтилляционных детекторов со свинцовыми диафрагмами и наносекундной фотосъемки разряда в собственном свечении показано, что рентгеновское излучение появляется в стадии развития разряда, когда во всем разрядном промежутке формируется множество яркосветящихся плазменных каналов и протекает ток разряда амплитудой в сотни ампер. Показано, что эмиссия рентгеновского излучения (кванты с энергией > 5 кэВ) может начинаться практически синхронно во всем разрядном промежутке, включая области катода и анода, прикатодную и прианодную области, а также середину разрядного промежутка. Получены статистические распределения суммарной мощности и количества наблюдений всплеск рентгеновского излучения вдоль разрядного промежутка.

DOI: 10.31857/S1234567824140052, EDN: SDWLYH

Явление генерации жесткого рентгеновского излучения протяженными высоковольтными разрядами занимает важное место в современной физике газового разряда [1]. Наблюдение эмиссий рентгеновского излучения в диапазоне от малых до больших энергий было зарегистрировано как при инициировании разрядов в сравнительно коротких (от единиц мм до порядка 10 см) разрядных промежутках [2–8], так и в промежутках, достигающих метра и более [9–12]. Отдельно стоит отметить экспериментальные данные, полученные во время грозových явлений в атмосфере, когда регистрировались всплески рентгеновского излучения от натуральных молний [13–15]. Предполагается, что физические процессы, связанные с генерацией жесткого рентгеновского излучения, поддаются масштабированию, и поэтому могут быть детально исследованы в условиях лабораторного эксперимента. На сегодня в данном направлении научной деятельности уже получено много результатов: раскрыты временные корреляции эмиссий рентгеновского излучения с другими типами электромагнитного излучения [16, 17], установлены энергетический спектр и пространственное распределение квантов рентгеновского излучения [9, 10, 12, 18, 19], определена связь эмиссий рентгеновского излучения с ди-

намикой разряда [20, 21] и т.д. Рассмотрены различные концепции процессов, способных создавать условия для генерации жесткого рентгеновского излучения в газоразрядной среде. Созданы модели соответствующих процессов на основе лавин убегающих электронов [22, 23], смыкающихся стримеров [24–26], быстрых вторичных волн ионизации [27, 28], распространяющихся по поверхности плазменных каналов различной формы. В ряде работ [3, 21] отмечалось, что генерация рентгеновского излучения наблюдается не в фазе распространения стримерных каналов, а уже после перемыкания промежутка стримерами и приходится на стадию развития разряда, когда во всем промежутке возникает либо диффузный разряд, либо большое количество плазменных каналов. Напротив, в работах [9–11] утверждалось, что генерация рентгеновского излучения наблюдается в разрядном промежутке исключительно в стадии смыкания отрицательных и положительных стримерных корон. К сожалению, однозначной картины всех явлений, так или иначе сопровождающих процесс генерации жесткого рентгеновского излучения во время развития протяженных высоковольтных разрядов, экспериментально до сих пор установлено не было. Обусловлено это, с одной стороны, принципиальной сложностью самих явлений, которые вдоба-

¹⁾e-mail: parkevich@phystech.edu

вок могут реализовываться одновременно в условиях эксперимента. С другой стороны, сказывается отсутствие экспериментальных данных по наблюдению с высоким временным (на уровне ~ 1 нс) и пространственным разрешением эволюции разряда в стадии генерации рентгеновского излучения при одновременном установлении пространственных зон разряда, ответственных за эмиссию такого излучения.

В данной работе на примере лабораторного разряда, инициированного при напряжениях 1 МВ в полуметровых открытых воздушных промежутках, проведена синхронная пространственно-временная локализация областей генерации рентгеновского излучения вдоль всего разрядного промежутка. Результаты работы позволили раскрыть сложный характер развития протяженного высоковольтного разряда в стадии генерации жесткого рентгеновского излучения и одновременно установить пространственные зоны разряда, связанные с эмиссией данного типа электромагнитного излучения.

В работе использовалась большая высоковольтная установка, подробно описанная в [29]. Установка позволяет получать импульсы напряжения амплитудой до 1 МВ с фронтом ≈ 200 нс и длительностью ~ 1 мкс. В проводимых исследованиях использовались импульсы отрицательной полярности. Высоковольтный импульс прикладывался к открытому воздушному промежутку длиной ≈ 55 см (рис. 1). Высоковольтный электрод (катод) представляет собой обратный конус, по центру которого вставлена игла. Диаметр скругленной кромки конуса составляет ≈ 36 см. Напротив катода установлен полусферический сетчатый анод, закрепленный на обратный токопровод. В экспериментах измерялось напряжение импульса, подаваемого на разрядный промежуток, и ток с анодного шунта, установленного между анодом и его креплением к обратному токопроводу (рис. 1). Характеристики электрофизических датчиков позволяли измерять ток и напряжение разряда с разрешением не хуже нескольких наносекунд. Динамика развития разряда отслеживалась с использованием двух камер PCO (dicam C1) со временем экспозиции 60–70 нс. Камеры были синхронизованы друг с другом с точностью ≈ 0.5 нс и регистрировали кадры с задержкой друг относительно друга ≈ 10 нс. Камеры были закрыты стеклянными светофильтрами с $\sim 80\%$ пропусканием в диапазоне 300–400 нм. Вдоль разрядного промежутка была установлена группа сцинтилляционных детекторов (SD1–SD6) рентгеновского излучения (рис. 1). В основе детекторов использовался фотоэлектронный умножитель (ФЭУ-30), состыкованный с пластиковым сцин-

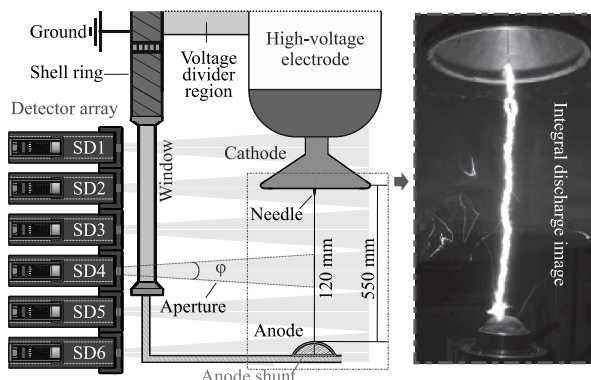


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема регистрации рентгеновского излучения из разрядного промежутка группой сцинтилляционных детекторов со свинцовыми диафрагмами

тиллятором, изготовленным из полистирола со сцинтиллирующими добавками (p-терфенил + POPOP). Во избежание нежелательных наводок от разряда регистрирующая часть каждого детектора была помещена внутрь алюминиевой трубы, по внутренней поверхности которой был дополнительно установлен спиральный магнитный экран из высоконикелевого пермаллоя. Вся сборка дополнительно помещалась внутрь бесшовной свинцовой трубы, которая имела толщину 1 см и внутренний диаметр 12 см. На торце свинцовых труб были закреплены свинцовые диафрагмы толщиной 1 см и с диаметром сквозного отверстия 4 см. Эффективная апертура детекторов позволяла разбивать весь разрядный промежуток на независимые пространственные зоны благодаря не пересекающимся апертурам соседних детекторов. На оси разрядного промежутка диаметр “вырезаемых” зон разряда составлял 12 см. Таким образом, разрешались катодная, прикатодная, анодная, прианодная области и середина промежутка. Центр диафрагм был плотно закрыт алюминиевой фольгой толщиной 100 мкм, что соответствует $100\times$ ослаблению моноэнергетического пучка фотонов с энергией 5 кэВ. Хотя, с учетом поглощения низкоэнергетических квантов в воздухе при нормальных условиях на дистанции 1 м от оси разрядного промежутка до детекторов, мы полагаем, что регистрируемые вспышки рентгеновского излучения по своему энергетическому спектру снизу ограничивались характерными энергиями в подавляющем большинстве случаев ~ 10 –20 кэВ. Калибровочные эксперименты показали, что используемые сцинтилляционные детекторы позволяют разрешать одиночные вспышки рентгеновского излучения с временным разрешением не хуже 3 нс, а величина характерного джиттера

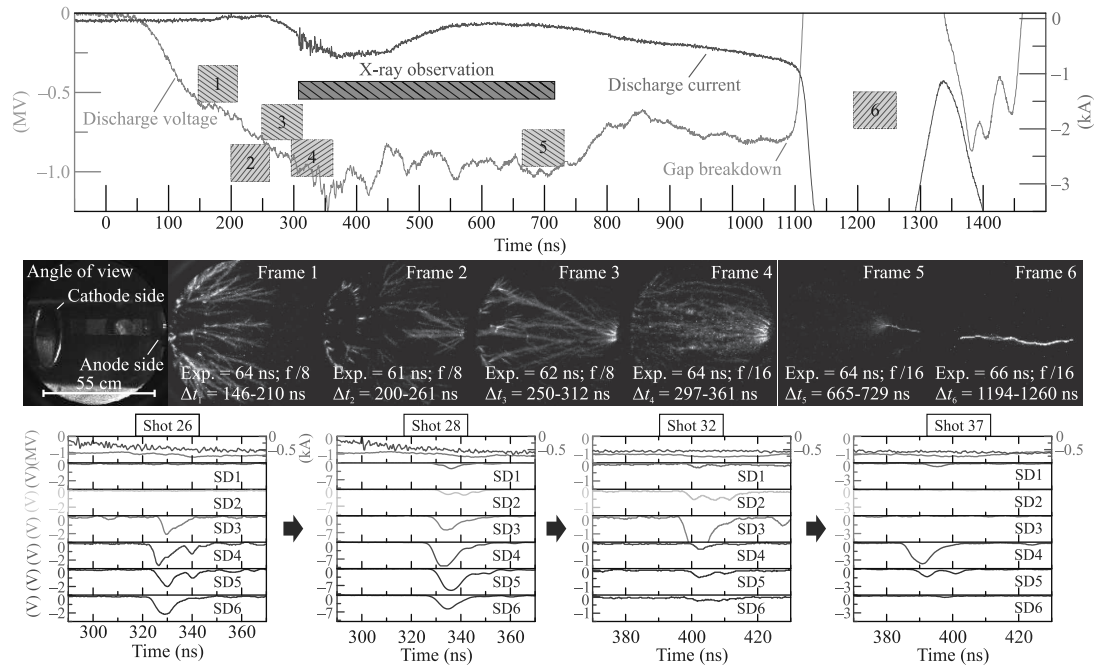


Рис. 2. (Цветной онлайн) Верхняя панель: типичные кривые тока и напряжения разряда. Средняя панель: хронология развития разряда, кадры 1–6 отмечены на верхней панели. Нижняя панель: сигналы тока, напряжения, рентгеновского излучения с детекторов SD1–SD6 в различных выстрелах

всех ФЭУ детекторов не превышает 1 нс. В экспериментах сигналы всех детекторов и измерительных датчиков регистрировались цифровыми осциллографами (1 ГГц, 5 Гвыб/с).

На рисунке 2 представлена хронология развития разряда в исследуемом промежутке, включая типичные осциллограммы тока и напряжения разряда. Благодаря стабильности работы большой высоковольтной установки и хорошей повторяемости выстрелов, приведенные кривые тока и напряжения практически ничем не отличаются от любых других, полученных в условиях используемой конфигурации электродов и полярности прикладываемого импульса напряжения. Особенности эволюции разряда на различных временных стадиях ранее были подробно описаны в работах [21, 29]. Поэтому, сразу перейдем к стадии развития разряда (соответствующей предпробойной стадии), когда наблюдается генерация рентгеновского излучения. Во-первых, отметим, что по времени это та стадия развития разряда, когда через промежуток уже протекает ток в максимуме до ~ 500 А (характерный предимпульс тока). Напряжение разряда в это время близко к 1 МВ. Во-вторых, как показывает статистика по многим выстрелам (серия порядка 1000 выстрелов), генерация рентгеновского излучения наблюдается в той стадии

развития разряда, когда в промежутке уже возникает сложная плазменная система, состоящая из множества стримерных каналов. Данные факты позволяют предполагать, что существенную роль в провоцировании генерации рентгеновского излучения могут играть ионизационные процессы в уже развитой плазменной системе, впоследствии переходящей в стадию диффузного разряда. Заметим, что схожие результаты были получены авторами работы [3] при исследовании электрических пробоев воздушных промежутков длиной 12 см при прикладывании к ним импульсов напряжения амплитудой 200 кВ.

Рассмотрим ряд одиночных выстрелов на рис. 3. В данных выстрелах эмиссия рентгеновского излучения была зарегистрирована непосредственно во временных промежутках фотосъемки быстрыми камерами, в окне скважности между кадрами двух камер, либо близко к нему. Примечательно, что во время фотосъемки в плазменной системе разрядного промежутка наблюдаются множественные ветвящиеся плазменные структуры, состоящие из стримерных каналов, а также некоторые результирующие плазменные каналы, протягивающиеся сквозь весь разрядный промежуток и соединяющие противоположные электроды. Интересно отметить, что вдоль результирующих каналов прослеживаются яркие сфе-

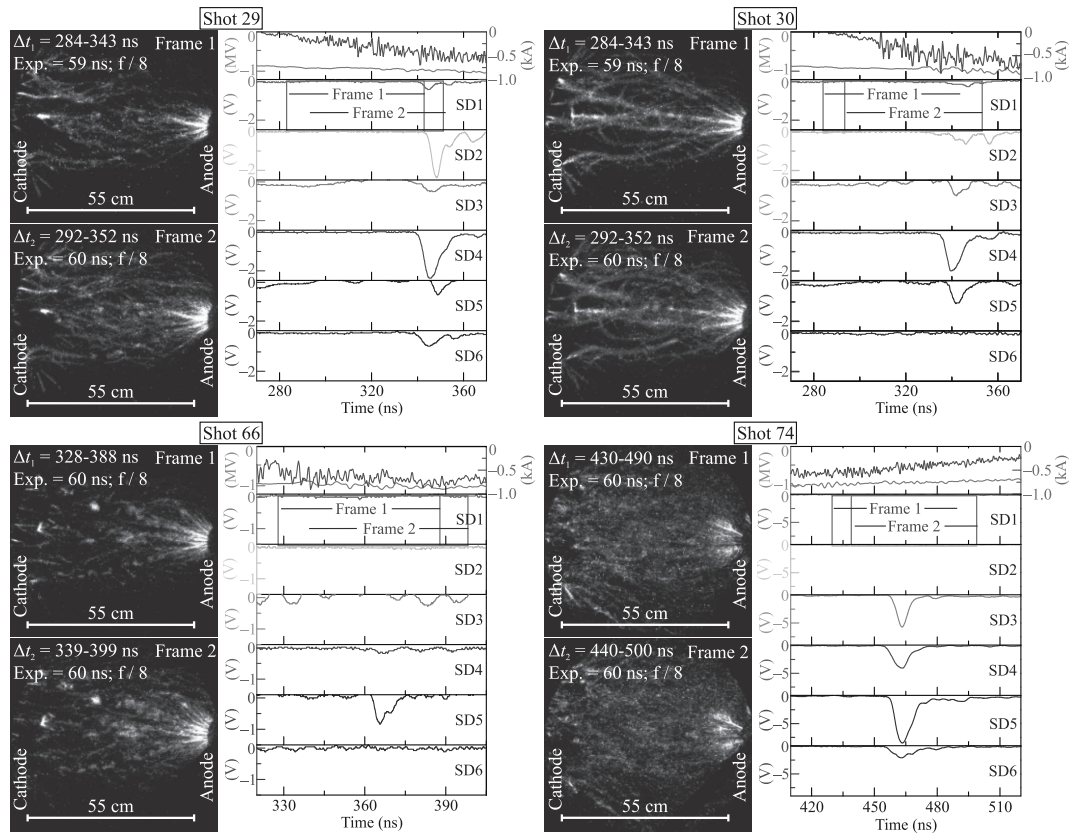


Рис. 3. (Цветной онлайн) Пространственно-временная локализация вспышек рентгеновского излучения в одиночных выстрелах

рические сгустки плазмы, создающие эффект “четочной структуры” каналов [30, 31]. Авторы ряда работ [27] предполагают, что такими зонами могут являться области интенсивного плазмообразования вследствие генерации вторичных волн ионизации, появление которых может сопровождаться всплесками на осциллограммах тока. Мы, однако, таких особенностей на кривых тока разряда с анодного пунта не наблюдаем (за исключением наводки от широкополосного радиоизлучения, также порождаемого разрядом [17]), в том числе в момент генерации рентгеновского излучения. В последнем случае кривые тока относительно гладкие, а характерная амплитуда предимпульса тока составляет ~ 500 А при напряжении ~ 1 МВ. Детальный анализ плазменных структур на фотографиях на рис. 3, зарегистрированных двумя камерами с относительной задержкой друг относительно друга ≈ 10 нс, показал, что в момент генерации рентгеновского излучения никаких заметных перемещений светящихся плазменных формирований не прослеживается. Что касается характера эмиссии рентгеновского излучения в периферию разряда, то видно, что в некоторый мо-

мент времени генерация излучения (фотоны с энергиями > 5 кэВ и вряд ли выше ≈ 300 кэВ в соответствии с измерениями, ранее выполненными в [32, 33]) может начинаться практически синхронно во всем разрядном промежутке. Минимальное значение относительной задержки между началом роста сигналов с рентгеновских детекторов составляет 0.5–1 нс, что укладывается в масштаб величины джиттера ФЭУ детекторов, установленный в серии калибровочных измерений. Аналогичный результат был получен авторами работы [4], где тоже прослеживалась синхронная генерация рентгеновского излучения во всем разрядном промежутке, хотя его длина была на порядок короче. Рентгеновское излучение при этом регистрировалось в стадии развития разряда, когда через промежуток протекал ток амплитудой несколько сотен ампер. Интенсивность вспышек рентгеновского излучения на рис. 3 различна вдоль разрядного промежутка, что может быть связано с естественной анизотропией излучения [12], в том числе с его сложным спектральным составом и общей спорадичностью во времени и в пространстве. В подавляющем большинстве вспышек эмиссия рентге-

новского излучения наблюдается в промежутке от кромок катодного конуса до заземленного анода.

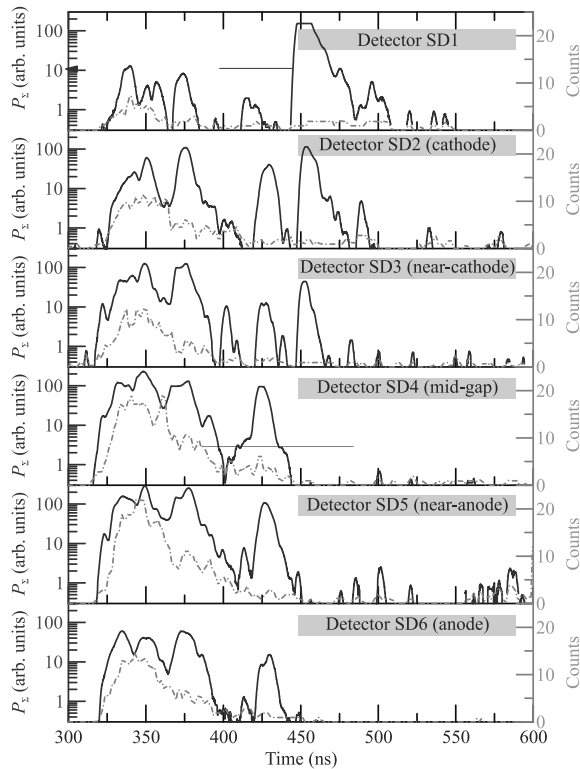


Рис. 4. (Цветной онлайн) Пространственно-временные распределения суммарной мощности сигналов и количества наблюдений всплеск рентгеновского излучения, полученные в серии из 60 выстрелов

На рисунке 4 представлены статистические распределения количества наблюдений всплеск рентгеновского излучения и суммарной мощности всплеск (P_{Σ} – сумма квадратов амплитуд всех полезных сигналов выше уровня шума) для каждой из локализованных зон разрядного промежутка. Видно, что интенсивность излучения отнюдь не доминирует в области анода (детектор SD6). Хотя можно было бы ожидать здесь большой вклад в эмиссию рентгеновского излучения за счет тормозного излучения быстрых электронов на металлическом аноде. Характеристическое излучение материала самого анода находится ниже рассматриваемого диапазона энергий фотонов. Примечательно, что высокая интенсивность эмиссии рентгеновского излучения наблюдается в области катода (детектор SD2), прикатодной (детектор SD3) и прианодной области (детектор SD5) и в середине промежутка (детектор SD4), где главенствующую роль в генерации рентгеновского излучения должны играть рассеяния быстрых электронов на ядрах компонентов воздуха. Сигна-

лы с детектора SD1 редко регистрировались в эксперименте, а наибольшая их амплитуда, как правило, достигалась в поздней стадии развития разряда. Вероятно, это было связано с частичным развитием разряда в направлении корпуса большой установки в области за катодом. Статистика наблюдений также указывает на наиболее выраженную эмиссию рентгеновского излучения в середине промежутка и прианодной области. В связи с этим, можно предположить, что ионизационные процессы, провоцирующие генерацию рентгеновского излучения, интенсивнее всего развиваются и создают соответствующие условия для генерации излучения вдали от электродов. Данное предположение находится в согласии с измерениями авторов работы [4], где было установлено, что наиболее вероятное местоположение источника рентгеновского излучения не связано с прианодной областью и находится на глубине разрядного промежутка.

Отталкиваясь от динамики развития разряда, можно было бы ожидать, что условия для возникновения пучков или лавин быстрых электронов (локальные области с полем выше порога убегания ~ 250 кВ/см в воздушной среде, в масштабе которых электроны способны набрать энергию, достаточную для последующего убегания [34]) возникают тогда, когда первые стримеры с анода подходят вплотную к катоду и контактируют с ним. В момент замыкания стримера на электрод противоположной полярности возможно возникновение малой зоны пространства с очень высоким электрическим полем [35, 36]. В такой локальной зоне прикатодной области с высоким электрическим полем можно было бы ожидать существенного усиления автоэлектронной эмиссии с последующим формированием пучков убегающих электронов [37]. В эксперименте эмиссия рентгеновского излучения, однако, всегда начинается позже, спустя десятки наносекунд после первых актов замыкания противоположных электродов растущими стримерами с анода, и приходится на стадию развития разряда, когда в промежутке наблюдается развитая система плазменных каналов.

Ясно, что получить однозначный ответ на вопрос о том, что же за механизм генерации рентгеновского излучения осуществляется в плазменной системе на рис. 2 и 3, достаточно трудно. Тем не менее, обратимся к результатам недавних работ [27, 28], в которых рассматривались вторичные поверхностные волны ионизации, распространяющиеся вдоль плазменных каналов и способные создавать условия для генерации рентгеновского излучения. На наш взгляд, эта концепция имеет право на существование, по-

скольку в условиях разряда на рис. 2 и 3 генерация рентгеновского излучения наблюдается исключительно в развитой стадии разряда, когда формируется множество плазменных каналов при напряжении 1 МВ и протекает ток разряда амплитудой порядка 500 А. В модели, представленной в [27], предполагается, что вторичные волны ионизации возникают по обе стороны от области смыкания встречных стримеров противоположной полярности и распространяются от нее (после контакта встречных стримеров) вдоль стримерных каналов. Авторами показано, что если учесть возникновение вторичных волн ионизации и дальнейшее их распространение в противоположные стороны от области смыкания встречных стримеров, то в данной области после контакта стримеров могут быть достигнуты более высокие электрические поля на более протяженных участках пространства, необходимых для разгона электронов до энергий, по крайней мере, единиц кэВ. В модели, предложенной в работе [28], не обсуждаются причины возникновения вторичных волн ионизации, но рассматриваются специфики их распространения вдоль искривленных плазменных каналов. В частности, описан механизм генерации рентгеновского излучения быстрой вторичной волной ионизации, проходящей область с резким искривлением плазменного канала. В такой ситуации механизм генерации рентгеновского излучения может быть описан в терминах эмиссии синхротронного излучения. Ожидается также, что чем выше скорость волны и проводимость плазменного канала и меньше радиус его изгиба в пространстве, тем сильнее выражена эмиссия рентгеновского излучения. В модели [27], напротив, предполагалась невысокая проводимость плазменных каналов (другими словами, рассматривалась менее ионизованная среда), чтобы электроны в области смыкания стримеров могли ускоряться с меньшими потерями набираемой энергии в виду их кулоновского взаимодействия с другими электронами газоразрядной плазмы.

Не исключено, что оба механизма генерации рентгеновского излучения, рассмотренные в работах [27, 28], правильно предсказывают суть наблюдаемых явлений. Например, когда вследствие смыкания встречных стримеров возникают результирующие плазменные каналы между электродами, и по ним начинается распространение вторичных волн ионизации. Если при этом образовавшиеся результирующие каналы имеют множественные зоны с резкими изгибами и “четочную структуру” (что характерно для результирующих каналов, наблюдаемых на рис. 2 и 3), то распространяющиеся по каналам

вторичные волны ионизации могут создавать условия для генерации рентгеновского излучения в соответствии с обоими предложенными механизмами. В этом плане интересно отметить следующий факт, что если бы возникновение эмиссии рентгеновского излучения было связано с возникновением и последующим распространением вторичной волны ионизации, то начало эмиссии данного излучения для каждого детектора вдоль оси разряда начиналось бы с некоторым запаздыванием (единицы наносекунд). Например, мы бы видели задержку в сигналах с ФЭУ от анода к катоду или наоборот, или же от середины промежутка в направлении обоих электродов. Заметим, что подобный результат ранее был получен в [4] при исследовании генерации рентгеновского излучения в 12 см воздушных промежутках. Авторам удалось выявить тенденцию опережающего сигнала рентгеновского излучения из прикатодной области по сравнению с сигналами из других областей промежутка. Скорость распространения области генерации рентгеновского излучения от катода к аноду была не менее 10^{10} см/с. Мы полагаем, что так или иначе такой эффект можно проверить и в наших условиях эксперимента в специальных измерениях, в которых разрядный промежуток будет сделан длиннее, а детекторы будут закрыты узкими вертикальными целевыми свинцовыми диафрагмами. В последующих работах мы постараемся провести соответствующие эксперименты, основываясь на результатах данной работы.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств Российского научного фонда (грант # 23-19-00524).

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

1. L. P. Babich, *High-energy phenomena in electric discharges, in dense gases: Theory, experiment, and natural phenomena*, Futurepast Incorporated, Arlington (Va.) (2003).
2. L. P. Babich, T. V. Loiko, and V. A. Tsukerman, *Soviet Phys.-Uspekhi* **33**, 521 (1990).
3. P. Repin and A. Rep'ev, *Technical Physics* **49**, 839 (2004).
4. A. Rep'ev and P. Repin, *Technical Physics* **53**, 73 (2008).
5. E. Baksht, A. Burachenko, A. Kozyrev, I. Kostyrya, M. Lomaev, V. Petin, D. Rybka, V. Tarasenko, and S. Shljakhtun, *Technical Physics* **54**, 47 (2009).
6. S. Alekseev, E. K. Baksht, A. Boichenko, I. Kostyrya, V. Tarasenko, and A. Tkachev, *Technical Physics* **57**, 1192 (2012).

7. V. Pokrovskii, P. B. Repin, and A. Trushkina, *Technical Physics* **65**, 182 (2020).
8. L. Contreras-Vidal, C. L. da Silva, and R. G. Sonnenfeld, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **56**, 055201 (2022).
9. P. O. Kochkin, C. V. Nguyen, A. P. van Deursen, and U. Ebert, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **45**, 425202 (2012).
10. P. O. Kochkin, A. P. van Deursen, and U. Ebert, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48**, 025205 (2014).
11. P. O. Kochkin, A. P. van Deursen, and U. Ebert, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**, 145203 (2014).
12. A. Agafonov, A. Oginov, A. Rodionov, V. Ryabov, and K. Shpakov, *Plasma Sources Sci. Technol.* **28**, 095014 (2019).
13. C. B. Moore, K. B. Eack, G. D. Aulich, and W. Rison, *Geophys. Res. Lett.* **28**, 2141 (2001).
14. J. R. Dwyer, H. K. Rassoul, M. Al-Dayeh, L. Caraway, A. Chrest, B. Wright, E. Kozak, J. Jerauld, M. A. Uman, V. A. Rakov, D. M. Jordan, and K. J. A. Rambo, *Geophys. Res. Lett.* **32**, L01803 (2005).
15. J. Howard, M. A. Uman, J. R. Dwyer, D. Hill, C. Biagi, Z. Saleh, J. Jerauld, and H. K. Rassoul, *Geophys. Res. Lett.* **35**, L13817 (2008).
16. J. Montanyà, F. Fabró, V. March, O. van der Velde, G. Solà, D. Romero, and O. Argemí, *J. Atmos. Sol.-Terr. Phys.* **136**, 94 (2015).
17. E. Parkevich, A. Khirianova, T. Khirionov, I. Baidin, K. Shpakov, A. Rodionov, Y. K. Bolotov, V. Ryabov, S. Ambrozevich, and A. Oginov, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **134**, 153303 (2023); <https://doi.org/10.6100/IR783261>.
18. C. V. Nguyen, A. P. van Deursen, and U. Ebert, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41**, 234012 (2008).
19. P. Hettiarachchi, V. Cooray, M. Rahman, and J. Dwyer, *Atmosphere* **8**, 244 (2017).
20. P. Kochkin, *Understanding lightning : experiments on meter long discharges and their x-rays (2014), phd Thesis 1 (Research TU/e/Graduation TU/e), Electrical Engineering*, Technische Universiteit Eindhoven (2014).
21. E. V. Parkevich, K. V. Shpakov, I. S. Baidin, A. A. Rodionov, A. I. Khirianova, T. F. Khirionov, Ya. K. Bolotov, M. A. Medvedev, V. A. Ryabov, Yu. K. Kurilenkov, and A. V. Oginov, *Phys. Rev. E* **105**, L053201 (2022).
22. A. V. Gurevich and K. P. Zybin, *Physics.-Uspekhi* **44**, 1119 (2001).
23. G. Mesyats, N. Zubarev, and I. Vasenina, *Bull. Lebedev Phys. Inst.* **47**, 209 (2020).
24. M. A. Ihaddadene and S. Celestin, *Geophys. Res. Lett.* **42**, 5644 (2015).
25. C. Köhn, O. Chanrion, and T. Neubert, *Geophys. Res. Lett.* **44**, 2604 (2017).
26. L. Babich and E. Bochkov, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 455202 (2017).
27. V. Cooray, G. Cooray, M. Rubinstein, and F. Rachidi, *Atmosphere* **12**, 1101 (2021).
28. N. Petrov, *Sci. Rep.* **11**, 19824 (2021).
29. E. V. Parkevich, A. I. Khirianova, T. F. Khirionov, I. S. Baidin, K. V. Shpakov, D. V. Tolbukhin, A. A. Rodionov, Ya. K. Bolotov, V. A. Ryabov, S. A. Ambrozevich, and A. V. Oginov, *Phys. Rev. E* **108**, 025201 (2023).
30. S. Vayanganie, V. Cooray, M. Rahman, P. Hettiarachchi, O. Diaz, and M. Fernando, *Phys. Lett. A* **380**, 816 (2016).
31. V. Tarasenko, D. Beloplotov, A. Burachenko, and E. Baksht, *Journal of Atmospheric Science Research* **3**, 1 (2020).
32. A. A. Rodionov, A. Agafonov, V. Ryabov, K. Shpakov, I. Baidin, Y. K. Bolotov, M. Medvedev, E. Parkevich, A. Mozgovoi, and A. Oginov, *JETP Lett.* **116**, 224 (2022).
33. A. A. Rodionov, A. Agafonov, V. Ryabov, K. Shpakov, I. Baidin, Y. K. Bolotov, M. Medvedev, E. Parkevich, A. Mozgovoi, and A. Oginov, *Bull. Lebedev Phys. Inst.* **49**, 221 (2022).
34. G. D. Moss, V. P. Pasko, N. Liu, and G. Veronis, *Journal of Geophysical Research: Space Physics* **111**, A02307 (2006).
35. D. V. Beloplotov, V. F. Tarasenko, and D. A. Sorokin, *JETP Lett.* **116**, 293 (2022).
36. D. V. Beloplotov, V. F. Tarasenko, V. A. Shklyayev, and D. A. Sorokin, *JETP Lett.* **113**, 129 (2021).
37. N. M. Zubarev and G. A. Mesyats, *JETP Lett.* **113**, 259 (2021).

Учет нестатичности ионного микрополя на основе теории марковских процессов при описании штарковского уширения спектральных линий в плазме

А. Ю. Летунов^{+,*}, В. С. Лисица^{*,×}, П. А. Лобода^{+,*}, А. А. Новиков^{+,*1)}

⁺ Федеральное государственное унитарное предприятие “Российский Федеральный Ядерный Центр – Всероссийский научно-исследовательский институт технической физики имени академика Е. И. Забабахина”, 456770 Снежинск, Россия

^{*} Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, 115409 Москва, Россия

[×] Федеральное государственное бюджетное учреждение Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 июня 2024 г.

После переработки 21 июня 2024 г.

Принята к публикации 27 июня 2024 г.

С использованием метода частотных флуктуаций ионного микрополя исследовано влияние теплового движения ионов на штарковское уширение спектральных линий в плазме. Предложен способ последовательного расчета основного параметра данного метода – частоты скачков ионного микрополя – на основе стохастической теории С. Чандрасекара и Д. фон Неймана. Представлены расчеты линейчатых спектров нейтрального водорода и проведено сравнение полученных результатов с экспериментальными данными. Рассчитаны спектры примесных ионов аргона в плотной горячей плазме дейтерия с учетом эффектов, связанных с движением ионов. Показано влияние частоты скачков ионного микрополя на форму провала в центре линии He_β гелиеподобного иона аргона. Представлено сравнение расчетных профилей линии He_β гелиеподобного иона титана с экспериментальными данными.

DOI: 10.31857/S1234567824140064, EDN: UTNEWD

1. Введение. Теоретическое описание профилей спектральных линий с учетом их штарковского уширения электрическими микро полями ионов и электронов (штарковских профилей) широко используется для диагностики плазмы в различных условиях. Традиционным приложением теории уширения спектральных линий является изучение свойств плотной горячей лазерной плазмы [1, 2], а также диагностика диверторной плазмы токамака по спектрам нейтрального водорода [3, 4]. Расчеты профилей спектральных линий, как правило, проводятся в рамках сложившейся “стандартной” теории уширения, где возмущающие ионы плазмы считаются квазистатическими, т.е. неподвижными в течение характерного времени задачи, а возмущение микро полями электронов рассматривается в ударном приближении (см., например, [5]). Если ударное приближение обычно хорошо описывает вклад электронов в уширение спектральных линий, то для ионов квазистатическое приближение далеко не всегда оказывается справедливым [6]. Задачу описания влияния

теплового движения ионов на штарковские профили линий обычно называют проблемой ионной динамики (ИД). Начиная с середины прошлого века, описанию эффектов ИД уделяется большое внимание [7], однако до сих пор последовательной теории, которая бы воспроизводила результат квазистатического приближения с уменьшением температуры и обеспечивала бы переход к ударному пределу при высоких температурах, так и не было создано. В настоящее время существует ряд полуфеноменологических моделей и приближенных решений, позволяющих описать влияние эффектов ИД на формирование штарковских профилей спектральных линий в ограниченной области плазменных параметров. Наиболее распространенными из них являются метод модельного микрополя (МММ) [8] и модель частотных флуктуаций ионного микрополя (Frequency-Fluctuation Model – FFM) [9]. Если в рамках МММ стохастическое изменение плазменного микрополя ведет к изменению величины спектральной интенсивности излучения в пределах всего профиля линии, то в FFM – к перераспределению интенсивности между отдельными спектральными участками профиля

¹⁾ e-mail: A.A.Novikov@vniitf.ru

линии. В обе эти теории входит параметр ν – обратное время жизни определенного значения микрополя. Данный параметр обычно подбирается либо из размерных соображений, либо выбирается таким, чтобы форма линии совпадала с расчетами, выполненными с помощью метода молекулярной динамики (МД) [10]. Частоту скачков ν можно представить в следующем виде:

$$\nu = k\nu_0 = kv_{Ti}N_i^{1/3}, \quad (1)$$

где v_{Ti} – средняя тепловая скорость возмущающих ионов, N_i – концентрация возмущающих ионов, k – численный коэффициент, который, как правило, принимается равным единице. В настоящей работе этот коэффициент находится с помощью предложенного метода последовательного вычисления частоты скачков плазменного микрополя. Для решения этой задачи мы будем использовать стохастическую модель расчета распределения напряженности поля, предложенную С. Чандрасекаром и Д. фон Нейманом [11] (ЧН). В рамках данной теории силовое поле стохастически меняется с частотой ν . Изменения величины поля полагаются марковским процессом. Исходно, данная модель была разработана для описания распределения гравитационного поля в звездных скоплениях. Однако поскольку гравитационная и кулоновская силы имеют одинаковую зависимость от расстояния, формальный результат модели ЧН можно использовать и для решения аналогичных задач, связанных с ионным микрополем. При этом модель ЧН учитывает зависимость распределения напряженности силового поля от скорости изменения самого поля, что позволяет описывать влияние динамических эффектов на распределение ионного микрополя и использовать модель ЧН для решения задач, связанных со штарковским уширением спектральных линий в плазме. Так, эта модель позволила описать эффект приведенной массы и поведение интенсивности в центре линий с несмещенной штарковской компонентой [12]. Кроме этого, модель ЧН в некотором смысле уже показала свою эффективность в уточнении величины частоты скачков. Так, в работе [13] на примере модельной задачи об уширении одной штарковской компоненты в рамках FFM было показано, что учет зависимости частоты скачков от энергетического сдвига $\nu(\omega)$ с помощью модели ЧН позволяет воспроизвести ударный предел, на который исходная версия модели FFM не выводит. Также отметим, что теория ЧН была использована в работе [14] для построения аналитической теории для расчета формы спектральных линий водорода с учетом эффектов ИД. В данной работе авторы ис-

пользовали асимптотическую зависимость частоты скачков ионного микрополя от величины этого поля, полученную для идеальной плазмы в рамках теории ЧН, для разделения ионов плазмы на две группы. Вклад от ионов первой группы в штарковское уширение линии рассчитывается в квазистатическом приближении, а от второй – в ударном.

В настоящей работе эффекты ИД будут учтены с помощью модели FFM, которая существенно проще в реализации по сравнению с MMM. В работе [15] показано, что численная процедура FFM эквивалентна решению кинетического уравнения с интегралом сильных столкновений для автокорреляционной функции, которая соответствует ионному (штарковскому) профилю с учетом эффектов ИД. Решение этого уравнения выражается в квадратурах. Это приводит к тому, что ионный профиль интенсивности линии с учетом эффектов ИД является простым функционалом от статического ионного профиля.

В настоящей работе рассматриваются спектральные линии, штарковские профили которых имеют выраженный провал в центре линии. Для таких линий довольно хорошо работают модели, которые описывают только амплитудные модуляции ионного микрополя (FFM и MMM) [9, 16]. Отметим, что для описания влияния эффектов ИД на форму линий с несмещенной штарковской компонентой необходимо учитывать вклад от вращения ионного микрополя [12, 17], что в общем случае является весьма нетривиальной задачей.

2. Учет эффектов ИД и расчет частоты скачков. В теории FFM ионный профиль с учетом эффектов ИД $I_i(\omega)$ может быть выражен через статический профиль $I_{i0}(\omega)$ следующим образом [15]:

$$\begin{aligned} I_i(\omega) &= \frac{\nu J_0(\omega) J_2(\omega) - J_1^2(\omega)}{\pi J_2^2(\omega) + \nu^2 J_1^2(\omega)}, \\ J_k(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{I_{i0}(\omega') (\omega - \omega')^k}{\nu^2 + (\omega - \omega')^2} d\omega'. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь профили интенсивности $I_{i0}(\omega)$ и $I_i(\omega)$ нормированы на единицу.

В рамках модели ЧН получена величина времени жизни T значения поля $\mathbf{F}$ [11], что позволяет вычислить частоту скачков $\nu = 1/T$. Заменяя в результате, полученном с помощью модели ЧН, массы звезд на заряды ионов и положив гравитационную постоянную $G = 1$, можно найти значение времени жизни T для ионного микрополя.

Отметим, что при выводе выражения для частоты скачков требуется учесть, что FFM учитывает

только амплитудные модуляции плазменного микрополя, а поэтому время жизни вычислялось по формуле:

$$T_{\mathbf{F},\mathbf{v}} = \frac{|\mathbf{F}|}{\sqrt{\langle |f_{\parallel}|^2 (|\mathbf{F}|, |\mathbf{v}|) \rangle}}, \quad (3)$$

где $f_{\parallel}$ – проекция вектора $\dot{\mathbf{F}}$ на направление, параллельное $\mathbf{F}$, $\mathbf{v}$ – скорость излучающей частицы. Формула для расчета $f_{\parallel}$ представлена в оригинальной работе [11]. Для того, чтобы вычислить коэффициент k в формуле (1), необходимо усреднить величину, обратную времени жизни T . В итоге получим:

$$\nu = \iint d\beta d^3\mathbf{v} \frac{1}{T_{\beta,\mathbf{v}}} H(\beta) W(\mathbf{v}) = \int_0^\infty d\beta \int_0^\infty d\gamma H(\beta) W(\gamma) \nu(\beta, 0) [1 + \gamma^2 f_\nu(\beta)]^{1/2}, \quad (4)$$

где

$$f_\nu(\beta) = \frac{\langle Z^{1/2} \rangle v_{Tr}^2}{\langle Z^{1/2} v_{Tr}^2 \rangle} + \frac{5}{12\pi} \frac{\langle Z \rangle^2 v_{Tr}^2}{\langle Z^{3/2} \rangle \langle Z^{1/2} |\mathbf{u}|^2 \rangle} f_1(\beta), \quad (5)$$

$$\nu(\beta, 0) = \nu_0 \left[2\pi \left(\frac{15}{4} \right)^{1/3} \frac{\langle Z^{1/2} |\mathbf{u}|^2 \rangle}{\langle Z^{3/2} \rangle^{1/3} v_{Tp}^2} f_2(\beta) \right]^{1/2}, \quad (6)$$

$$f_1(\beta) = \left(\frac{2}{3} - \frac{K(\beta)}{\beta H(\beta)} \right) \frac{H(\beta)}{\beta^{1/2} I(\beta)}, f_2(\beta) = \frac{I(\beta)}{\beta^{3/2} H(\beta)}, \quad (7)$$

$$W(\gamma) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \gamma^2 \exp(-\gamma^2),$$

где v_{Tr} и v_{Tp} – тепловые скорости соответственно излучающего и возмущающего ионов, $\mathbf{u}$ и Z – соответственно скорость и заряд возмущающего иона, β – безразмерное поле, которое определяется как $\beta = F/F_0$, где $F_0 = 2\pi \left(\frac{4}{15} \right)^{2/3} \langle Z^{3/2} \rangle^{2/3} N_i^{2/3}$ – сред-

нее (нормальное) поле Хольцмарка²⁾ для идеальной плазмы, F – напряженность квазистатического ионного микрополя. Усреднение выполняется следующим образом:

$$\langle u^\gamma Z^\delta \rangle = \sum_p C_p(Z) \int W_p(\mathbf{u}) Z^\delta u^\gamma d^3\mathbf{u}, \quad (8)$$

²⁾Эта формула, а также все формулы в настоящей работе записаны в атомной системе единиц: $m_e = \hbar = e = 1$.

где C_p – концентрация ионов сорта p , $W_p(\mathbf{u})$ – распределение Максвелла. Распределение квазистатического ионного микрополя имеет вид [18]:

$$H(\beta) = \frac{2\zeta^2}{\pi} \beta \int_0^\infty e^{-U(x)} x \sin(x\beta\zeta) dx, \quad (9)$$

где U и ζ определяются моделью, по которой вычисляется статическое ионное микрополе. В теории Хольцмарка $U(x) = x^{3/2}$, а $\zeta = 1$ [5]. Функции I и K в формуле (7) вычисляются по следующим формулам [11]:

$$I(\beta) = \zeta \frac{2\beta}{\pi} \int_0^\infty \exp(-U(x)) (\zeta\beta x)^{-5/2} f_H(\zeta\beta x) dx, \\ K(\beta) = \zeta \frac{2\beta}{\pi} \int_0^\infty \exp(-U(x)) (\zeta\beta x)^{-1} f_H(\zeta\beta x) dx, \quad (10)$$

$$f_H(\zeta\beta x) = \sin(\zeta\beta x) - (\zeta\beta x) \cos(\zeta\beta x).$$

В настоящей работе для описания распределения квазистатического ионного микрополя (9) используется модифицированное [19] распределение Хупера [20], которое последовательно учитывает взаимодействие ионов плазмы, экранированных электронами. На рисунке 1 представлены зависимости без-

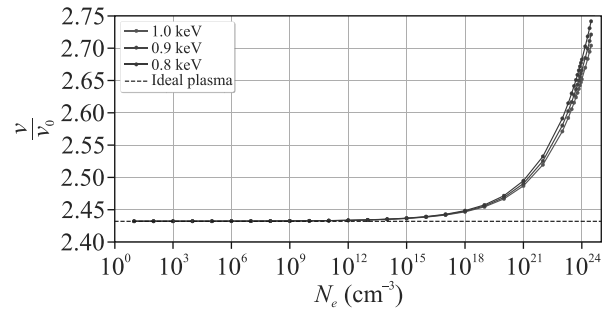


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость безразмерной частоты скачков от концентрации ионов при фиксированной температуре; примесь аргона (0.1 %) в дейтериевой плазме

размерной частоты скачков ν/ν_0 от концентрации ионов при фиксированных значениях их температуры. Видно, что с ростом концентрации имеет место небольшой рост величины ν/ν_0 . Это связано с учетом эффектов неидеальности в модели Хупера. Дело в том, что учет экранировки приводит к росту статистического веса малых электрических полей в распределении ионного микрополя – соответственно, максимум распределения $H(\beta)$ с ростом экранировки смещается влево. Для малых полей небольшое по-

абсолютной величине изменение микрополя может быть сравнимо с величиной самого поля, а значит его относительное изменение при этом оказывается велико. Это и приводит к некоторому росту отношения ν/ν_0 .

3. Расчет спектров нейтрального водорода.

Атом водорода является наиболее простой атомной системой, поэтому штарковское уширение водородных линий в плазме хорошо изучено как теоретически [21, 22], так и экспериментально [23]. При этом штарковские спектры атома водорода, как известно, целесообразно рассчитывать в параболическом базисе (см, например, [5]), поскольку в этом случае частотный сдвиг штарковской компоненты линии имеет простой аналитический вид:

$$\Delta\omega_\tau = \frac{3}{2}F \left(n(n_1 - n_2) - n'(n'_1 - n'_2) \right), \quad (11)$$

где τ обозначает весь набор квантовых чисел верхнего и нижнего штарковских уровней, n и n_1, n_2 – соответственно главное квантовое число и параболические квантовые числа верхних подуровней, а аналогичные квантовые числа со штрихом относятся к нижним подуровням.

Статический штарковский профиль линии для определенного значения ионного микрополя F имеет следующий вид:

$$I_0(\omega, F) = \sum_{\tau, p} \left| a_\tau^{(p)} \right|^2 \delta(\omega - \omega_\tau(F)), \quad (12)$$

где p обозначает поляризацию, $a_\tau^{(p)}$ – дипольный матричный элемент, который в настоящей работе вычисляется по формулам Гордона [21], $\omega_\tau = \omega_0 + \Delta\omega_\tau$, $\omega_0 = -\frac{1}{2n^2} + \frac{1}{2n'^2}$. Для получения квазистатического ионного профиля выражение (12) необходимо усреднить по распределению ионного микрополя:

$$I_{i0}(\omega) = \int_0^\infty I_0(\omega, F) H(F) dF, \quad (13)$$

а для учета эффектов ионной динамики необходимо подставить квазистатический профиль $I_{i0}(\omega)$ в функционал (2).

Для того, чтобы рассчитать полный профиль линии, необходимо свернуть ионный штарковский профиль с профилем Фойгта $V(\omega)$, описывающим электронное столкновительное и доплеровское уширение:

$$I(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_i(\omega - \omega') V(\omega') d\omega'. \quad (14)$$

Профиль Фойгта $V(\omega)$ является сверткой лоренцевского профиля, описывающего столкновительное уширение электронами, и гауссовского профиля, отвечающего доплеровскому уширению. В расчетах, представленных в настоящей работе, электронная ширина вычислялась с помощью приближенной теории, описанной в монографии [5]:

$$\gamma = 16N_e \langle v \rangle \rho_0^2(\langle v \rangle) \left(0.215 + \ln \left(\frac{r_D}{\rho_0} \right) \right),$$

$$\rho_0(\langle v \rangle) = \left[\frac{2}{3} \left(\frac{\hbar}{Zm_e \langle v \rangle} \right)^2 I(n, n') \right]^{1/2}, \quad (15)$$

$$I(n, n') = \frac{n^4 + n'^4}{2},$$

где r_D – электронный дебаевский радиус, $\langle v \rangle$ – средняя скорость электронов.

На рисунке 2 представлено сравнение расчетов профиля спектральной линии H_β (переход $n = 4 \rightarrow n' = 2$) с результатами известных экспериментов на

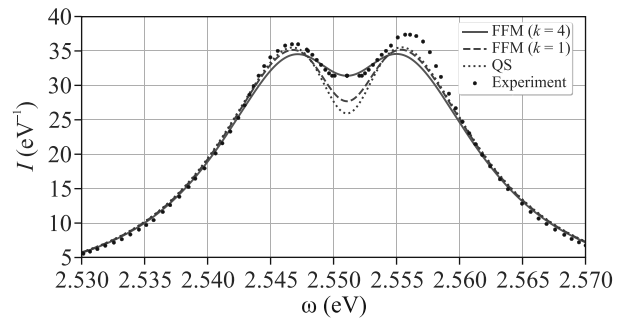


Рис. 2. (Цветной онлайн) Профиль линии H_β (переход $n = 4 \rightarrow n' = 2$), $N_e = 8.3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$, $T = 13400 \text{ К}$

электрической дуге, проведенных под руководством В. Л. Визе [23]. Расчет показал, что при температуре и плотности, которые реализовались в эксперименте, $k = \nu/\nu_0 = 4$. Видно, что расчет профиля с данным значением частоты скачков плазменного микрополя лучше описывает центральный участок линии, чем расчеты в квазистатическом приближении (QS) и с $\nu = \nu_0$. При этом ширины профилей линий на полувысоте (FWHM) во всех расчетах совпадают, т.е. оказываются нечувствительными к эффектам ионной динамики, поскольку в данном случае частота скачков оказывается вдвое ниже, чем FWHM. Поскольку расчетные значения FWHM совпадают с экспериментальным, то это также означает, что модель расчета электронной столкновительной ширины [5], используемая в настоящей работе, хорошо работает для рассматриваемых параметров. Также отметим,

что в эксперименте наблюдается небольшая асимметрия относительно центра провала, что, судя по всему, связано с квадрупольным вкладом в интенсивность излучения линии H_β [24].

4. Расчет профилей линий многозарядных ионов. Для расчета профилей спектральных линий многозарядных ионов (МЗИ) в плазме в настоящей работе используется модель LINEDM [25], построенная на основе формализма матрицы плотности для произвольных многоэлектронных ионов и позволяющая учитывать основные виды уширения линий таких ионов в плазме: доплеровское, однородное (электронно-столкновительное, радиационное и автоионизационное) и ионное квазистатическое уширение. При интеграции FFM в модель LINEDM возникает сложность, связанная с необходимостью выделения квазистатического ионного профиля $I_{i0}(\omega)$, входящего в выражение (2), при том, что в модели LINEDM вычисляется профиль линии $I^{(DM)}(\omega)$, учитывающий сразу все механизмы уширения. Эту сложность можно обойти [26], используя подход классической теории уширения спектральных линий [5].

Рассмотрим автокорреляционную функцию для профиля линии $I^{(DM)}(\omega)$, которая является фурье-образом от этого профиля:

$$\Phi^{(DM)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I^{(DM)}(\omega) e^{i\omega\tau} d\omega, \quad (16)$$

$$I^{(DM)}(\omega) = \frac{1}{\pi} \text{Re} \left\{ \int_0^{\infty} e^{-i\omega\tau} \Phi^{(DM)}(\tau) d\tau \right\}. \quad (17)$$

Профиль $I^{(DM)}(\omega)$ можно представить в виде свертки фойгтовского профиля, описывающего доплеровское и однородное уширение [5], $V(\omega)$ и эффективного ионного квазистатического $I_{i0}(\omega)$ профиля $I_{i0}(\omega)$. Соответственно, автокорреляционная функция $\Phi^{(DM)}(\tau)$ результирующего профиля $I^{(DM)}(\omega)$ является произведением автокорреляционных функций, соответствующих указанным, статистически независимым, механизмам уширения:

$$\Phi^{(DM)}(\tau) = \Phi_V(\tau) \cdot \Phi_{i0}(\tau), \quad (18)$$

где $\Phi_V(\tau)$ и $\Phi_{i0}(\tau)$ – автокорреляционные функции, отвечающие соответственно фойгтовскому $V(\omega)$ профилю и эффективному квазистатическому ионному $I_{i0}(\omega)$ профилю. Отсюда нетрудно получить формулу для вычисления $I_{i0}(\omega)$:

$$I_{i0}(\omega) = \frac{1}{\pi} \text{Re} \left\{ \int_0^{\infty} \frac{\Phi^{(DM)}(\tau)}{\Phi_V(\tau)} e^{-i\omega\tau} d\tau \right\}. \quad (19)$$

Далее необходимо подставить полученный эффективный квазистатический ионный профиль в формулу (2). Полученную функцию $I_i(\omega)$ затем необходимо свернуть с фойгтовским профилем $V(\omega)$ ³⁾.

На рисунке 3 представлен профиль спектральной линии He_β перехода $n = 3 \rightarrow n = 1$ гелиеподобного

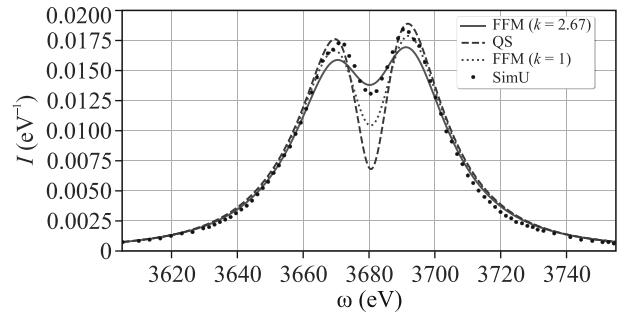


Рис. 3. (Цветной онлайн) Профиль линии He_β (переход $n = 3 \rightarrow n = 1$ в гелиеподобном ионе $ArXVII$), $N_e = 2 \cdot 10^{24} \text{ см}^{-3}$, $T = 1 \text{ кэВ}$. Излучение светящейся примеси аргона с концентрацией 0.1 % в дейтериевой плазме. Сравнение с результатами расчетов [27], проведенных с использованием метода МД (SimU)

иона $ArXVII$ в дейтериевой плазме с диагностической примесью аргона (0.1 % по числу атомов) при плотности электронов $N_e = 2 \cdot 10^{24} \text{ см}^{-3}$ и температуре $T = 1 \text{ кэВ}$. При указанных параметрах $\nu = 2.68\nu_0$. На рисунке 3 приведены результаты расчетов по программе LINEDM в квазистатическом приближении и с привлечением модели FFM при $\nu = \nu_0$ и $\nu = 2.68\nu_0$ (т.е. по модели, представленной в настоящей работе), а также расчетов [27], проведенных по модели SimU [28, 29] с использованием метода МД для учета движения ионов. При этом $\nu_0 \approx 15.5 \text{ эВ}$, а $\nu \approx 43 \text{ эВ}$. Учитывая, что расстояние между пиками примерно равно 25 эВ, эффекты ИД должны существенно влиять на форму провала, что и наблюдается в расчетах. Также видно, что для всех рассмотренных случаев ширины линий имеют близкие значения, однако форма профиля в центре линии при этом имеет различный вид. В центре линии данные МД-расчетов по SimU и по модели, представленной в настоящей работе, наиболее близки. При этом максимумы в МД-расчете по SimU оказываются несколько выше. Это связано с тем, что профили, представленные на рис. 3, нормированы на площадь под каждой кривой, при том, что профиль, рассчитанный с помощью SimU, оказывается несколько уже. Хотя

³⁾В данном расчете фойгтовский профиль $V(\omega)$ также вычисляется по программе LINEDM при ионном микрополе $F = 0$.

в теории уширения результаты МД-расчетов иногда считаются “эталонными”, к этому следует относиться весьма аккуратно. Так, в работе [27] различные модели, использующие метод МД, показали существенно разные результаты при описании формы провала спектральной линии Lu_β нейтрального водорода.

На рисунке 4 приведено сравнение экспериментального профиля линии He_β гелиеподобного иона

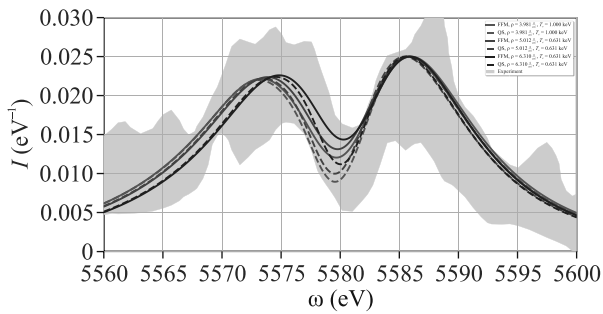


Рис. 4. (Цветной онлайн) Профиль линии He_β (переход $n = 3 \rightarrow n = 1$ в гелиеподобном ионе TiXX) в сравнении с результатами эксперимента [1]

TiXX , зарегистрированного при облучении тонкой титановой фольги в обкладках из алюминия мощным лазерным импульсом с энергией 8–10 Дж и длительностью импульса $\simeq 45$ фс. На рисунке 4 представлены результаты нескольких расчетов линии He_β иона TiXX для плотностей $\rho = 3.98\text{--}6.31 \text{ г/см}^3$ и температур $T = 630\text{--}1000$ эВ титановой фольги, при которых экспериментальные данные с учетом погрешности измерения могут быть описаны расчетами по методике, представленной в настоящей работе. Отметим, что при интерпретации экспериментальных результатов в работе [1] интервал плотностей и температур, при которых удается описать экспериментальный профиль линии оказался немного меньше. Это, по-видимому, связано с тем, что в расчетах, представленных в работе [1], явным образом учтен монополюсный член, который позволяет с высокой точностью описывать красный сдвиг спектральной линии. В то же время из рис. 4 видно, что расчеты, проведенные в рамках настоящей модели, хорошо согласуются с экспериментальными данными, а значит, величина красного сдвига в данном случае меньше ширины линии.

Из рисунка 4 видно, что погрешности измерений не позволяет интерпретировать экспериментальные данные с необходимой точностью. Во-первых, интервал температур и плотностей титановой фольги, при которых регистрировалось излучение линии He_β иона TiXX , согласно проведенным нами расче-

там, получается довольно большим. Отметим, что по оценкам авторов работы [1], этот интервал еще шире. Во-вторых, по результатам эксперимента нельзя сделать вывод о том какова роль эффектов ионной динамики при формировании профиля рассматриваемой спектральной линии, где точность определения интенсивности в эксперименте составляет $\delta I \approx 40\text{--}50\%$. В условиях рассматриваемого эксперимента $\nu_0 \approx 1$ эВ, а $\nu \approx 5$ эВ. При этом расстояние между пиками примерно равно 10 эВ, а поэтому в центральной области, ширина которой равна примерно 5 эВ, должны быть важны эффекты ИД, что, в частности, видно из рис. 4. Поэтому для того, чтобы в данном эксперименте можно было бы обнаружить эффекты ИД, необходимо, чтобы в центре линии погрешность определения интенсивности была менее 20 %. Тем не менее, на основе приведенного сравнения можно сделать ряд выводов. Во-первых, ширина спектральной линии (FWHM) очень слабо изменяется в зависимости от температуры и плотности в рассмотренных интервалах. Так, при изменении температуры и плотности примерно вдвое ширина линии меняется менее, чем на 1 %. Во-вторых, из рис. 4 в то же время видно, что глубина провала в центре штарковского профиля зависит от температуры и плотности намного сильнее. Это говорит о том, что диагностика плазмы по глубине и форме провала штарковских профилей линий переходов с четными значениями Δn (например, линий H_β и He_β) может быть заметно более чувствительной, чем по величине FWHM, для чего важно обеспечить возможность проведения спектральных измерений в центральной части линий с более высокой точностью, чем для измерения FWHM. Для рассмотренных условий, как указывалось выше, точность таких измерений должна быть лучше 20 %.

5. Заключение. В настоящей работе предложен метод расчета частоты скачков ионного микрополя с помощью стохастической теории С. Чандрасекара и Д. фон Неймана. Полученные результаты использованы при расчете штарковских профилей с учетом эффектов ИД по модели FFM. Приведены расчеты профиля бальмеровской линии водорода H_β . Сравнение с экспериментальными данными показало, что центральная область лучше описывается в рамках модели, представленной в настоящей работе, чем в квазистатическом приближении и с использованием упрощенного варианта FFM.

Предложен метод использования FFM в контексте формализма матрицы плотности. На примере линии He_β иона AgXVII показано, что эффекты ИД и, в частности, величина частоты скачков ионного мик-

рополя могут сильно влиять на форму провала спектральных линий МЗИ с четным Δn . Анализ расчетных данных для штарковского профиля линии He_β гелиеподобного иона TiXX показал, что для такой линии форма провала в центре линии существенно более чувствительна к изменению параметров плазмы, чем ее ширина на полувысоте.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета института (учреждения, организации). 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. B.F. Kraus, L. Gao, K.W. Hill, M. Bitter, P. C. Efthimion, T. A. Gomez, A. Moreau, R. Hollinger, Sh. Wang, H. Song, J.J. Rocca, and R.C. Mancini, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 205001 (2021).
2. P. Beiersdorfer, G.V. Brown, A. McKelvey, R. Shepherd, D.J. Hoarty, C.R.D. Brown, M.P. Hill, L.M.R. Hobbs, S.F. James, J. Morton, and L. Wilson, *Phys. Rev. A* **100**, 012511 (2019).
3. A.V. Gorbunov, E.E. Mukhin, E.B. Berik, K. Yu. Vukolov, V.S. Lisitsa, A.S. Kukushkin, M.G. Levashova, R. Barnsley, G. Vayakis, and M. J. Walshe, *Fusion Eng. Des.* **123**, 695 (2017).
4. E.E. Mukhin, G.S. Kurskiev, A.V. Gorbunov et al. (Collaboration), *Nucl. Fusion* **59**, 086052 (2019).
5. И. И. Собельман, *Введение в теорию атомных спектров*, АН СССР, М. (1963).
6. В. И. Коган, *Физика плазмы и проблемы управляемых термоядерных реакций* **4**, 258 (1958).
7. M. Takeo and S. Chen, *Rev. Mod. Phys.* **29**, 20 (1957).
8. A. Brissaud and U. Frisch, *JQSRT* **11**, 1767 (1971).
9. B. Talin, A. Calisti, L. Godbert, R. Stamm, R. W. Lee, and L. Klein, *Phys. Rev. A* **51**, 1918 (1995).
10. E. Stambulchik and Y. Maron, *Phys. Rev. E* **87**, 053108 (2013).
11. S. Chandrasekhar and J. von Neumann, *Astrophys. J.* **97**, 1 (1943).
12. А. В. Демур, В. С. Лисица, Г. В. Шолин, *ЖЭТФ* **73**, 400 (1977).
13. V. A. Astapenko, A. Yu. Letunov, and V. S. Lisitsa, *Universe* **7**, 176 (2021).
14. A. Derevianko and E. Oks, *JQSRT* **58**, 553 (1997).
15. Л. А. Буреева, М. Б. Кадомцев, М. Г. Левашова, В. С. Лисица, А. Калисти, Б. Талин, Ф. Б. Розми, *Письма в ЖЭТФ* **90**, 718 (2009).
16. A. V. Anufrienko, A. E. Bulyshev, A. L. Godunov, A. V. Demura, Y. K. Zemtsov, V. S. Lisitsa, and A. N. Starostin, *JETP* **76**, 219 (1993).
17. A. V. Demura and E. Stambulchik, *Atoms* **2**, 334 (2014).
18. A. V. Demura, *Int. J. Spectrosc.* **2010**, 671073 (2010).
19. E. Kh. Akhmedov, A. L. Godunov, Yu. K. Zemtsov, V. A. Makhrov, A. N. Starostin, and M. D. Taran, *JETP* **89**, 470 (1985).
20. Jr. C. F. Hooper, *Phys. Rev.* **165**, 215 (1968).
21. Э. Бете, М. Солпитер, *Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами*, М. (1960).
22. В. С. Лисица, *Успехи физических наук* **122**, 449 (1977).
23. W. L. Wiese, D. E. Kelleher, and D. R. Paquette, *Phys. Rev. A* **6**, 1132 (1972).
24. А. В. Демур, Г. В. Демченко, Д. Николич, *К теории асимметрии спектральных линий атомарного водорода в плазме*, Препринт ИАЭ 6430/6 (2006).
25. P. A. Loboda, I. A. Litvinenko, G. V. Baydin, V. V. Popova, and S. V. Koltchugin, *Laser and Particle Beams* **18**, 275 (2000).
26. A. Yu. Letunov, V. S. Lisitsa, P. A. Loboda, and A. A. Novikov, *Physics of Atomic Nuclei* **86**, 2224 (2023).
27. S. Ferri, A. Calisti, C. Mossé et al. (Collaboration), *Atoms* **2**, 299 (2014).
28. E. Stambulchik and Y. Maron, *High Energy Density Physics* **6**, 9 (2010).
29. E. Stambulchik and Y. Maron, *JQSRT* **99**, 730 (2006).

Перекачка энергии между связанными планарными магннными волноводами вблизи особой точки

О. С. Темная¹⁾, С. А. Никитов

Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 июня 2024 г.

После переработки 17 июня 2024 г.

Принята к публикации 17 июня 2024 г.

Исследована перекачка энергии в связанных планарных магннных гетероструктурах “ферромагнетик-нормальный металл” с равноценным усилением и затуханием спиновых волн, в которых возможно наблюдение особой точки – точки пространства параметров системы, где вырождаются ее собственные значения и собственные векторы. Показано, что при увеличении постоянного электрического тока разной полярности, которое приводит к изменению величины спин-поляризованного тока, длина перекачки энергии из одной гетероструктуры в другую растет и в особой точке стремится к бесконечности. Наличие рассогласования в собственных затуханиях намагниченностей двух волноводов приводит к уменьшению критического тока, при котором возникает особая точка, тогда как рассогласование в волновых числах (отсутствие синхронизма фазовых скоростей) приводит к увеличению критического тока при ограничении длины перекачки. Представленные результаты могут быть использованы при создании управляемых магннных направленных межсоединений.

DOI: 10.31857/S1234567824140076, EDN: UYAXAT

Спиновые волны могут распространяться в магнитных материалах с минимальными потерями энергии и имеют на порядки меньшие длины волн, чем электромагнитные волны той же частоты [1, 2]. Эти характеристики спиновых волн можно использовать для создания новых устройств обработки и передачи информации, а также для устройств спин-волновой логики. Важной задачей в этой области является управление характеристиками распространяющихся спиновых волн в планарных и многослойных структурах [3–5]. В многослойных структурах, где тонкие ферромагнитные слои разделены изоляторами, возможен точный контроль связи и фазовых соотношений распространяющихся спиновых волн путем изменения толщины ферромагнитных слоев, однако их применение ограничено неудобством возбуждения и детектирования спиновых волн в ферромагнитных слоях. С другой стороны, в дипольно связанных планарных однослойных магннных структурах параметры спиновых волн можно контролировать путем изменения расстояния между структурами. Такая конфигурация также хорошо исследована и широко применяется в оптике [6]. Связанные планарные магннные структуры проще в изготовлении и лучше совместимы с КМОП-устройствами.

Одной из важнейших характеристик связанных волноведущих структур является длина перекачки энергии, которая определяет расстояние, на котором два волновода взаимодействуют и обмениваются энергией. Длина перекачки энергии зависит от физических параметров волноводов и материалов, из которых они изготовлены, а также от расстояния между ними. Энергия периодически переносится из одной структуры в другую и обратно на расстоянии $L = \pi/\Delta k_x$, где $\Delta k_x = (k_{as} - k_s)$ – волновое число [7], k_s и k_{as} – волновые числа связанных симметричной и асимметричной спин-волновых мод, соответственно. Длина перекачки энергии является главной характеристикой направленных ответвителей [1, 3], поэтому необходимо иметь возможность управлять ею с большой точностью.

В данной работе мы рассматриваем связанные магнитным дипольным взаимодействием гетероструктуры ферромагнетик-нормальный металл (ФМ–НМ). Через НМ, обладающий сильным спин-орбитальным взаимодействием, протекает постоянный электрический ток, в зависимости от направления которого благодаря спиновому эффекту Холла наблюдается усиление или затухание спиновых волн в ФМ [8]. Пропуская через слои НМ постоянный ток в разных направлениях, мы равномерно увеличиваем и уменьшаем амплитуды спиновых волн, распространяющихся в связанных

¹⁾e-mail: ostemnaya@gmail.com

ФМ волноводах. В спектрах таких систем могут возникать так называемые особые точки, в которых вырождаются собственные значения и собственные векторы системы [9–13]. После такого вырождения энергия распространяется с усилением только в одной из структур, в другой же она быстро полностью затухает. Энергия перекачивается между структурами и по мере приближения к особой точке меняется длина перекачки.

Исследуемая система связанных магнитных структур ФМ–НМ представлена на рис. 1. В одном

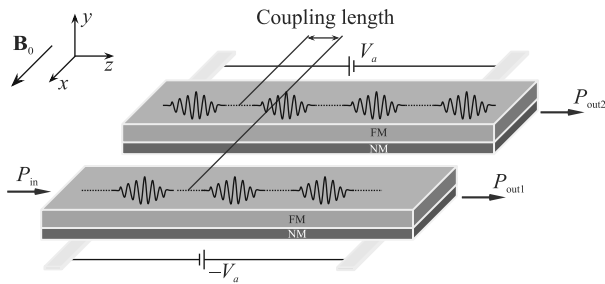


Рис. 1. (Цветной онлайн) Связанные магнитным дипольным взаимодействием планарные магнитные структуры ФМ–НМ

волноводе вдоль главной оси распространяется поверхностная магнитостатическая спиновая волна (ПМСВ), возбужденная микрополосковой линией передачи с частотой ω и мощностью P_{in} . Во втором волноводе за счет магнитодипольного взаимодействия с первым также возбуждается ПМСВ, причем энергия магнитных возбуждений периодически перекачивается от одного ФМ волновода к другому, что было как показано численно [3], так и наблюдалось экспериментально [5, 14]. При протекании через металлический слой постоянного электрического тока с плотностью J_c благодаря спиновому эффекту Холла возникает спиновый ток плотностью J_s , направленный по оси z в ферромагнитный слой, причем они связаны выражением $J_s = \theta_{SH} J_c = \theta_{SH} |V_a| / \rho l$ [8], где θ_{SH} – спиновый угол Холла, V_a – постоянное напряжение, подведенное к металлу, ρ – удельное сопротивление НМ, l – расстояние между контактами подводимого к металлу напряжения. В случае, когда вектор поляризации спинового тока $\mathbf{p}$ коллинеарен стационарному направлению намагниченности, путем изменения направления и величины J_c можно управлять затуханием на границе ФМ–металл, частично компенсируя его или усиливая. Векторы поляризации спинового тока $\mathbf{p}$ и стационарной намагниченности $\mathbf{M}_0$ должны быть сонаправленными для компенсации затухания спиновых волн и

антипараллельными для создания дополнительного положительного эффективного затухания [8].

Динамика намагниченности в ФМ волноводе описывается уравнением Ландау–Лифшица–Гильберта (ЛЛГ) [1]:

$$\frac{d\mathbf{M}_{1,2}}{dt} = -\mu_0 \gamma [\mathbf{M}_{1,2} \times \mathbf{H}_{eff}] + \frac{\alpha_G}{M_0} \left[\mathbf{M}_{1,2} \times \frac{d\mathbf{M}_{1,2}}{dt} \right] \pm \frac{\sigma J_s}{M_s} [\mathbf{M}_{1,2} \times [\mathbf{M}_{1,2} \times \mathbf{p}]], \quad (1)$$

где $\gamma \approx 2\pi \cdot 28 \text{ ГГц/Тл}$ – гиромагнитное отношение, $\mu_0 = 1.256 \cdot 10^{-6}$ – магнитная постоянная, $\mathbf{M}$ – вектор намагниченности волновода, $\mathbf{H}_{eff}$ – эффективное магнитное поле, включающее внешнее, обменное и размагничивающее поля, M_s – намагниченность насыщения ФМ, α_G – константа затухания Гильберта, $\sigma = C\gamma/T$ [8], M_s – намагниченность насыщения, T – эффективная толщина ФМ, где происходит спиновый транспорт, C – феноменологическая константа, характеризующая эффективность переноса спинового момента из НМ в ФМ, J_s – плотность спинового тока в слое нормального металла [8]. В зависимости от знака $\mathbf{p}$ в уравнении ЛЛГ (1) можно либо компенсировать затухание ФМ (второе слагаемое в правой части (1)), либо усилить его.

В случае стационарных во времени волновых процессов можно перейти от временных уравнений (1) к связанным уравнениям для огибающих $c_{1,2}(z)$ спиновых волн [1], распространяющихся вдоль оси $0z$ (рис.1), в виде

$$\begin{aligned} \frac{dc_1}{dz} &= -i(\beta_1 + i(\Delta_0 + \Delta))c_1 + i\Omega c_2, \\ \frac{dc_2}{dz} &= -i(\beta_2 + i(\Delta_0 - \Delta))c_2 + i\Omega c_1. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь $\beta_{1,2}$ – постоянные распространения волн в волноводах, Δ_0 и $\Delta(I_0)$ – собственные и вносимые за счет тока I_0 потери, соответственно, Ω – константа магнитной дипольной связи между волноводами, зависящая от расстояния между ними. Вывод модели (1) из уравнения ЛЛГ с учетом переноса спинового момента в форме Слончевского представлен в [13]. Используя подстановку $c_{1,2}(z) = A_{1,2}e^{\gamma z}$, для случая синхронизма фазовых скоростей $\beta_1 = \beta_2 = \beta_0$ получаем выражение для собственных значений в виде

$$\gamma_{1,2} = \Delta_0 - i\beta_0 \pm \sqrt{\Delta^2 - \Omega^2}. \quad (3)$$

Анализ выражения (2) показывает, что при $\Delta = \Omega$ (т.е. в особой точке) характеристические корни совпадают $\gamma_1 = \gamma_2$, при $\Delta < \Omega$ мнимые части двух корней не совпадают, при $\Delta > \Omega$ действительные

части двух корней не совпадают. В общем случае решение (2) можно представить в следующем виде:

$$\gamma_{1,2} = (\Delta_0 \pm \alpha) - i(\beta_a \mp \tilde{\beta}_a), \quad (4)$$

где $\alpha = \sqrt{D} \cos \frac{\Phi}{2}$; $\beta_a = \frac{\beta_1 + \beta_2}{2}$; $\tilde{\beta}_a = \sqrt{D} \sin \frac{\Phi}{2}$; величины D и Φ определяются из выражений

$$D = \sqrt{\left(\Delta^2 - \Omega^2 - \left(\frac{\beta_1 - \beta_2}{2}\right)^2\right)^2 + (\Delta(\beta_1 - \beta_2))^2},$$

$$\Phi = \arctan \left(\frac{\Delta(\beta_1 - \beta_2)}{\Delta^2 - \Omega^2 - ((\beta_1 - \beta_2)/2)^2} \right). \quad (5)$$

Таким образом, общее решение системы уравнений (1) можно представить в виде

$$c_1(z) = A_1 e^{\gamma_1 z} + A_2 e^{\gamma_2 z} =$$

$$= e^{(\Delta_0 - i\beta_a)z} \cdot (A_1 e^{\alpha_0 z} + A_2 e^{-\alpha_0 z}), \quad (6)$$

$$c_2(z) = \frac{1}{i\Omega} \left(i\beta_1 + \frac{d}{dz} \right) c_1(z) =$$

$$= \frac{e^{(\Delta_0 - i\beta_a)z}}{i\Omega} (\kappa_1 A_1 e^{\alpha_0 z} + \kappa_2 A_2 e^{-\alpha_0 z}),$$

где $\kappa_{1,2} = (i\beta_1 \pm \gamma_2)$, $\alpha_0 = (\alpha + i\tilde{\beta}_a)$. В частном случае, когда энергия в точке при $z = 0$ сосредоточена только в первом волноводе $c_1|_{z=0} = A_0$, а во втором равна нулю $c_2|_{z=0} = 0$, выражения (6) примут следующий вид:

$$c_1(z) = e^{(\Delta_0 - i\beta_a)z} \cdot \frac{A_0}{2} \cdot (e^{\alpha_0 z} + e^{-\alpha_0 z}), \quad (7)$$

$$c_2(z) = \frac{A_0 e^{(\Delta_0 - i\beta_a)z}}{2i\Omega} (i\kappa_1 e^{\alpha_0 z} + \kappa_2 e^{-\alpha_0 z}).$$

Используя выражения (7), можно найти зависимости энергии спиновых волн в каждом волноводе как $P_{1,2}(z) = 2|c_{1,2}(z)|^2$. На рисунке 2 показаны зависимости нормированных к максимальному значению $P_0 = P_1|_{z=0}$ величины энергии $E_{1,2} = P_{1,2}/P_0$ от расстояния z для нулевого значения вносимых потерь. При этом амплитуды обеих волн затухают с декрементом, соответствующему собственным потерям спиновых волн в волноводах Δ_0 . Как видно, на длине [2] $L_0 = \pi / D$ происходит полная перекачка энергии из одного волновода во второй, а увеличение спинового тока с 1.2 мА до 3.7 мА приводит к увеличению длины перекачки с 15 мкм до 20 мкм (рис. 3) для выбранных типичных параметров численного эксперимента. Амплитуда пика, при котором происходит полная перекачка энергии, растет вследствие увеличения плотности спин-поляризованного

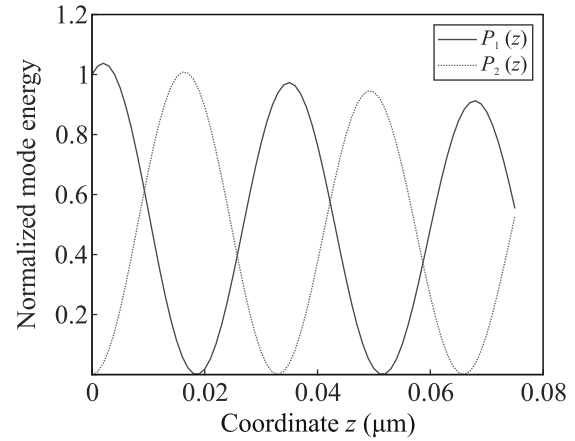


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость энергии спин-волновых мод от длины для двух волноводов при нулевых вносимых потерях

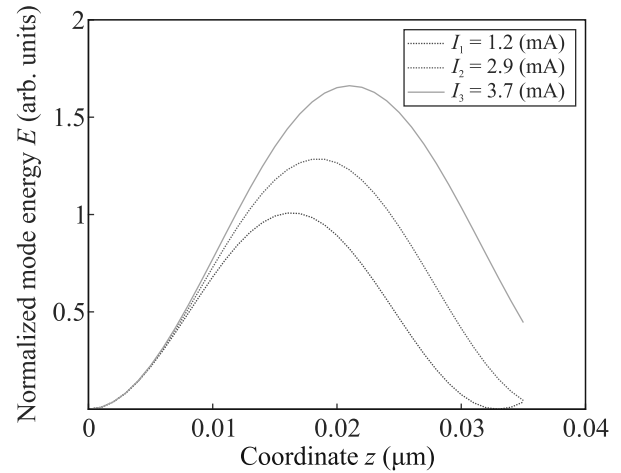


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость энергии спин-волновой моды в одном из волноводов от расстояния при трех значениях спин-поляризованного тока, характеризующих вносимые потери $I_1 = 1.2$ мА, $I_2 = 2.9$ мА, $I_3 = 3.7$ мА

тока, пропускаемого через обе структуры симметрично. Для численных оценок использовались следующие параметры [9]: $\beta_{1,2} = k_0/v_g$, $k_0 = 20 \cdot 10^6$ рад/м, $v_g = 3.6 \cdot 10^5$ м/с, $\Omega_0 = 9.7 \cdot 10^4$ рад/м, $\Delta_0 = -0.01 \cdot \Omega_0$, $\Delta = \sigma I/v_g$, $\sigma = 6.15 \cdot 10^{12}$ рад/(А · с).

Рассмотрим возможность изменения длины перекачки при разных значениях параметров системы связанных волноводов. При изменении рассогласования собственного затухания намагниченностей в двух волноводах $\Delta_1 = \Delta_0 + \Delta + \Delta g$ и $\Delta_2 = \Delta_0 - \Delta$ действительная часть волнового числа увеличивается, а длина перекачки L_0 уменьшается. Таким образом, наличие рассогласования в собственных затуханиях уменьшает величину тока I_{EP} , при кото-

рой наблюдается особая точка, однако оно увеличивает декремент затухания и амплитуды волн уменьшаются быстрее по длине волноводов. По этой причине использование волноводов с несимметричными собственными значениями потерь не является предпочтительным. На рисунке 4 представлено семей-

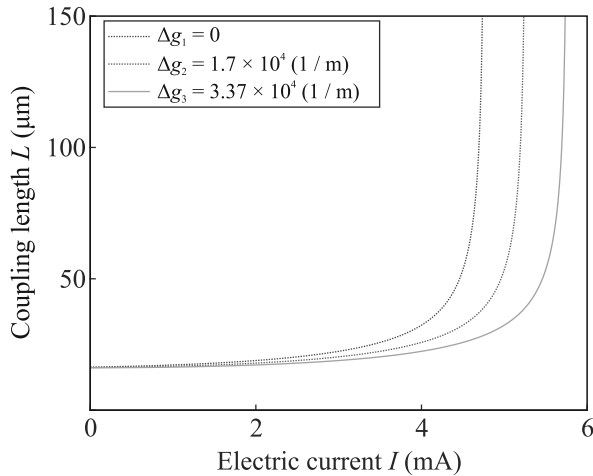


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости длины перекачки энергии между волноводами от величины тока, пропускаемого через слои нормального металла для разницы в собственных затуханиях: $\Delta g_1 = 0$, $\Delta g_2 = 1.7 \cdot 10^4$ (1/м), $\Delta g_3 = 3.37 \cdot 10^4$ (1/м)

ство зависимостей длины перекачки от величины тока для разных значений рассогласования в затуханиях Δg . Рассогласование в собственных постоянных распространения $\beta_{1,2}$ (отсутствие синхронизма фазовых скоростей) приводит к уменьшению действительной части волнового числа и, соответственно, к увеличению длины перекачки (рис. 5). При этом при некоторых значениях рассогласования $\beta_{1,2}$ происходит ограничение роста величины длины перекачки до бесконечности с током, что ограничивается порогом неустойчивости спиновых волн. Стоит отметить, что для случая рассогласования волновых чисел значение тока в особой точке увеличивается в сравнении с рассогласованием собственных потерь при отсутствии уменьшения амплитуды волн, поскольку собственный декремент затухания не меняется. В данном случае длина перекачки энергии между волноводами ограничена при тех же значениях тока, что позволяет использовать системы с особыми точками в управляемых магнанных межсоединениях с контролируемой длиной перекачки.

Таким образом, в работе исследована динамика длины перекачки энергии спиновых волн между двумя планарными магнанными волноводами с равноценным усилением и затуханием спиновых волн. Показано, что при увеличении плотности спин-

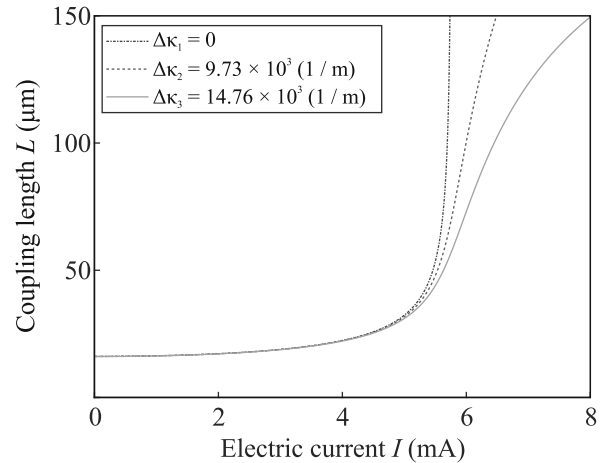


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости длины перекачки энергии между волноводами от величины тока, пропускаемого через слои нормального металла для разницы в собственных волновых числах: $\Delta k_1 = 0$, $\Delta k_2 = 9.73 \cdot 10^4$ (1/м), $\Delta k_3 = 14.6 \cdot 10^4$ (1/м)

поляризованного тока длина перекачки энергии из одного волновода в другой растет и в особой точке стремится к бесконечности. Наличие рассогласования в собственных затуханиях намагниченностей двух волноводов приводит к уменьшению критического тока особой точки, тогда как рассогласование в волновых числах приводит к увеличению критического тока при ограничении длины перекачки. Представленные результаты могут быть использованы при создании управляемых магнанных направленных ответвителей, а также могут быть интересны для построения сложных магнанных межсоединений с контролируемыми потерями [15].

Финансирование работы. Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда # 24-19-00250.

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

1. S. M. Rezende, *Fundamentals of Magnonics*, Springer first edition, Switzerland (2020).
2. С. А. Никитов, А. Р. Сафин, Д. В. Калябин, А. В. Садовников, Е. Н. Бегинин, М. В. Логунов, М. А. Морозова, С. А. Одинцов, С. А. Осокин, А. Ю. Шараевская, Ю. П. Шараевский, А. И. Кирилук, УФН **190**, 1009 (2020).
3. Q. Wang, P. Pirro, R. Verba, A. Slavin, B. Hillebrands, and A. V. Chumak, *Sci. Adv.* **4**(1), e1701517 (2018).
4. A. V. Sadovnikov, E. N. Beginin, S. E. Sheshukova, D. V. Romanenko, Yu. P. Sharaevskii, and S. A. Nikitov, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 202405 (2015).
5. X.-g. Wang, . G.-h. Guo, and J. Berakdar, *Nat. Commun.* **11**, 5663 (2020).

6. A. V. Krasavin and A. V. Zayats, *Adv. Opt. Mater.* **3**, 1662 (2015).
7. H. Sasaki and N. Mikoshiba, *J. Appl. Phys.* **52**, 3546 (1981).
8. Z. Wang, Y. Sun, M. Wu, V. Tiberkevich, and A. Slavin, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 146602 (2011).
9. T. Kato, *A Short Introduction to Perturbation Theory for Linear Operators*, Springer first edition, N.Y. (2011).
10. A. A. Zyablovsky, A. P. Vinogradov, A. A. Pukhov, A. V. Dorofeenko, and A. A. Lisyansky, *Phys.-Uspekhi* **57**, 1063 (2014).
11. X. Wang, X.-g. Wang, G. Guo, and J. Berakdar, *Phys. Rev. Appl.* **15**, 034050 (2021).
12. A. V. Sadvnikov, A. A. Zyablovsky, A. V. Dorofeenko, and S. A. Nikitov, *Phys. Rev. Appl.* **18**, 024073 (2022).
13. O. S. Temnaya, A. R. Safin, D. V. Kalyabin, and S. A. Nikitov, *Phys. Rev. Appl.* **18**, 014003 (2022).
14. A. V. Sadvnikov, S. A. Odintsov, E. N. Beginin, A. A. Grachev, V. A. Gubanov, S. E. Sheshukova, Y. P. Sharaevsky, and S. A. Nikitov, *JETP Lett.* **107**, 1 (2018).
15. A. V. Chumak, P. Kabos, M. Wu et al. (Collaboration), *IEEE Trans. Magn.* **58**, 6 (2022).

Эволюция сверхпроводящего параметра порядка пниктидов Na(Fe, Co)As вдоль фазовой диаграммы допирования

С. А. Кузьмичев^{*,+}, И. В. Морозов[×], А. И. Шилов^{*}, Е. О. Рахманов^{×,+}, Т. Е. Кузьмичева⁺¹⁾

⁺ Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^{*} Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

[×] Химический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 июня 2024 г.

После переработки 13 июня 2024 г.

Принята к публикации 13 июня 2024 г.

С помощью спектроскопии эффекта некогерентных многократных андреевских отражений исследовано многощелевое сверхпроводящее состояние монокристаллов пниктидов Na(Fe, Co)As недо- и передопированных составов. Напрямую определены величины микроскопических сверхпроводящих параметров порядка, их температурные зависимости и соответствующие характеристические отношения $2\Delta(0)/k_B T_c$. Собранная нами значительная статистика данных однозначно указывает на заметное уменьшение степени предположительной анизотропии большой сверхпроводящей щели в передопированных составах при удалении от антиферромагнитной и нематической областей фазовой диаграммы допирования.

DOI: 10.31857/S1234567824140088, EDN: VBOUTK

1. Введение. NaFeAs относится к семейству 111 сверхпроводящих (СП) пниктидов на основе щелочных металлов [1], демонстрирующему интересную нетривиальную физику, однако, остающемуся до сих пор малоизученным (в качестве обзора см. [2]). Из-за наличия щелочного металла пниктиды семейства 111 быстро деградируют в присутствии даже следовых количеств H_2O и O_2 , поэтому экспериментальный процесс необходимо полностью проводить в защитной атмосфере.

В отличие от большинства пниктидов, NaFeAs сохраняет СП свойства в стехиометрическом составе, демонстрируя антиферромагнитный (АФМ) и структурный (нематический) переход выше T_c (как показано на вставке к рис. 1). При частичном электронном замещении $Fe_{1-x}Co_x$ АФМ и нематичность в недодопированной (НД) области фазовой диаграммы подавляются, при этом критическая температура достигает максимума $T_c \approx 22$ К [2]. Уровень Ферми пересекают дырочные и электронные зоны, образующие слабо гофрированные цилиндры вокруг Γ и M-точек зоны Бриллюэна [3], на которых ниже T_c возникают несколько СП конденсатов.

Поскольку поверхность Ферми Na(Fe, Co)As типична для пниктидов, его СП щелевая структура может быть описана с помощью универсальных ме-

ханизмов образования куперовских пар посредством спиновых ($s^\pm$) [4], орбитальных (s^{++}) [5] и нематических флуктуаций [6]. Важной особенностью ферропниктидов является зависимость СП параметра порядка Δ от угла θ в k -пространстве, широко наблюдаемая экспериментаторами (в частности, для СП семейства 111 с помощью фотоэмиссионной спектроскопии с угловым разрешением (ARPES) в работах [7–9]). С точки зрения предложенных теоретических моделей, в “чистом” s^{++} -пределе устойчивое решение в основном достигается при изотропном СП параметре порядка (s -волновая симметрия), однако при увеличении интенсивности спин-флуктуационного или нематического канала возможно получение большого разнообразия анизотропных распределений $\Delta(\theta)$, включая d - и расширенный s -волновой тип (как с точками нулей, так и без них) [6, 10, 11].

Экспериментальные исследования СП щелевой структуры семейства NaFeAs крайне немногочисленны. Большинство исследователей сообщают об обнаружении двухщелевой сверхпроводимости с СП параметрами порядка Δ_L и Δ_S , однако, величины характеристических отношений, полученные различными методами, плохо согласуются [2]. Методом измерения теплоемкости [12] было оценено слабое уменьшение $2\Delta_L(0)/k_B T_c$ в передопированных (ПД) составах относительно оптимально допированной области. Оценки типа симметрии СП щелей в NaFeAs-

¹⁾ e-mail: kuzmichevate@lebedev.ru

пниктидах противоречат друг другу: так, в работах [13] и [14] была показана реализация d - и s -волновой симметрии СП щелей, соответственно, как в НД, так и в ПД областях. Подобные противоречия, очевидно, вызваны ограниченностью используемых моделей и ставят вопрос об их расширении для применения к пниктидам железа.

Интересно отметить, что в $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ НД состава с помощью ARPES была обнаружена заметная угловая зависимость большой СП щели без точек нулей в k -пространстве [9], ненаблюдаемая теми же исследователями в ПД кристаллах с близкой $T_c \approx 18$ К. К сожалению, эти исследования не были продолжены для $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ других составов. Таким образом, из-за отсутствия прямых измерений эволюция СП свойств допированных NaFeAs при изменении степени замещения до сих пор надежно не определена, хотя подобные данные могли бы дать существенную информацию о механизмах сверхпроводимости пниктидов и взаимодействии АФМ, нематической и СП фаз.

В проведенных ранее исследованиях нашей группы [15–17] были получены предварительные сведения о СП параметрах порядка в $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ различных составов и приведен ряд косвенных аргументов в пользу реализации угловой зависимости $\Delta_L(\theta)$ в k -пространстве. В данной работе с помощью прямого локального метода спектроскопии эффекта некогерентных многократных андreeвских отражений собрана значительная статистика данных о СП энергетических параметрах и их температурных зависимостях. На основе полученных результатов проведено сравнение СП щелевой структуры $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ НД и ПД составов и определена ее эволюция вдоль фазовой диаграммы допирования.

2. Детали эксперимента. Монокристаллы номинального НД состава $\text{NaFe}_{0.979}\text{Co}_{0.021}\text{As}$ и ПД состава $\text{NaFe}_{0.955}\text{Co}_{0.045}\text{As}$ в виде тонких пластин прямоугольной формы с линейными размерами до 8 мм были получены кристаллизацией из расплава. Получение прекурсора (NaAs) и подготовка реакционной смеси, отбор полученных кристаллов, подготовка и монтаж образцов для изучения физических свойств проводились в перчаточном боксе в атмосфере аргона с концентрацией кислорода и паров воды менее 0.1 млн^{-1} . Для получения NaAs стехиометрическое количество мышьяка постепенно добавляли к расплавленному в агатовой ступке Na . Далее в алундовый тигель к приготовленному NaAs добавляли Fe и CoAs в нужных соотношениях, тигель с реакционной смесью заваривали в герметичный ниобиевый контейнер для исключения потери щелочного метал-

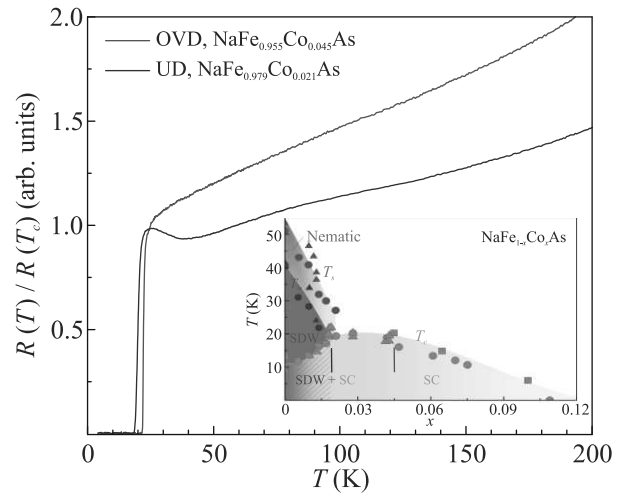


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурная зависимость сопротивления монокристаллов номинальных составов $\text{NaFe}_{0.979}\text{Co}_{0.021}\text{As}$ (НД, синяя кривая) и $\text{NaFe}_{0.955}\text{Co}_{0.045}\text{As}$ (ПД, красная кривая). На вставке приведена фазовая диаграмма допирования (адаптировано из [2]); штрихами синего и красного цвета отмечен исследованный диапазон

ла, а металлический контейнер запаивали в вакуумированную кварцевую ампулу. Полученную сборку помещали в муфельную печь, нагревали до температуры $1050\text{--}1150^\circ\text{C}$, некоторое время выдерживали и затем охлаждали до $400\text{--}600^\circ\text{C}$ с последующим отключением печи. Количественный и качественный состав полученных крупных монокристаллов был подтвержден методом рентгеновской дифракции и локального рентгеноспектрального микроанализа.

На рисунке 1 приведены температурные зависимости сопротивления монокристаллов $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ НД и ПД составов (данные синего и красного цвета, соответственно) с близкими критическими температурами $T_c^{\text{bulk}} \approx 20\text{--}22$ К. Для НД кристалла выше T_c сопротивление уменьшается с ростом температуры, достигает минимума при температуре $T_s \approx 35$ К структурного перехода, а при более высоких температурах $R(T)$ демонстрирует относительно слабый рост. Напротив, в ПД составе $R(T)$ монотонно возрастает и не показывает ни магнитного, ни структурного перехода в соответствии с фазовой диаграммой допирования [2] (см. вставку к рис. 1).

Для создания планарных механически регулируемых наноконтактов сверхпроводник-барьер-сверхпроводник (ScS) с направлением протекания тока вдоль оси с использовалась техника “break-junction” [18]. Геометрия и детали эксперимента с образцами слоистых соединений, преимущества

и недостатки метода подробно описаны в обзоре [19]. В слоистых монокристаллах используемый метод планарного “break-junction” позволяет получать туннельные наноконтакты размером порядка 10–50 нм на ступеньках-и-террасах чистых криогенных сколов, а массивные СП берега обеспечивают эффективный теплоотвод, защищая контактную область от перегрева в процессе пропускания измерительного тока.

Известно, что в SnS-контакте (n – тонкий нормальный металл) с NS-границами высокой прозрачности (N – объемный нормальный металл, сила туннельного барьера $Z \lesssim 0.3$) и отсутствием фазовой когерентности между СП берегами (диаметр контакта d больше длины когерентности ξ_0) ниже T_c реализуется эффект некогерентных многократных андреевских отражений (ЭНМАО). Некогерентный андреевский транспорт вызывает на вольтамперной характеристике (ВАХ) такого контакта избыточный ток (относительно нормальной ВАХ выше T_c) во всем диапазоне смещений eV , при этом сверхтоковая ветвь отсутствует [20, 21]. На соответствующем $dI(V)/dV$ -спектре при $eV \rightarrow 0$ (так называемая область пьедестала) динамическая проводимость повышается в разы относительно нормальной проводимости G_N контакта, также возникает серия минимумов субгармонической щелевой структуры (СГС), положение которых V_n напрямую определяется величиной СП щели Δ при любых температурах вплоть до T_c [20–22]: $|eV_n(T)| = 2\Delta(T)/n$, $n = 1, 2, \dots$. Для многощелевого сверхпроводника на $dI(V)/dV$ -спектре будут присутствовать СГС от каждой щели. Число n^* наблюдаемых минимумов СГС для планарного контакта (в случае $Z, \Gamma = 0$, Γ – параметр размытия) примерно соответствует отношению размера контакта d_c и характерной длины неупругого рассеяния l_c в c -направлении [21, 23]: $n^* \approx l_c/d_c$.

В планарном SnS-контакте в случае баллистического транспорта в ab -плоскости (если длина свободного пробега l_{ab}^{el} превышает d_{ab}) k_x - и k_y -компоненты импульса квазичастиц сохраняются, при этом k_z -компонента может не сохраняться из-за “перемешивания” носителей вдоль направления тока в результате неупругого рассеяния.

Тип углового распределения $\Delta(\theta)$ (θ – угол в $k_x k_y$ -плоскости) можно косвенно оценить по форме андреевских минимумов на $dI(V)/dV$ -спектре баллистического SnS-контакта в рамках подхода [24] (см. рис. 4 в [19]). Гипотетически, в случае изотропной СП щели на $dI(V)/dV$ должны наблюдаться резкие интенсивные минимумы СГС, при этом сильное подавление амплитуд СГС ожидается в случае СП па-

раметра порядка с точками нулей (“нодами”) в распределении $\Delta(\theta)$. Для анизотропной СП щели с расширенной s -волновой симметрией в $k_x k_y$ -плоскости без точек нулей предполагается [19, 24] появление СГС, состоящей из дублетов (двух минимумов, соединенных “аркой”), протяженность которых определяется максимальной Δ^{out} и минимальной Δ^{in} энергиями связи куперовских пар в k -пространстве. Напротив, типичная “арочная” форма дублета не предсказывается для случая двух изотропных СП щелей с близкими амплитудами (рис. 4 в [19]). К сожалению, различить два вышеуказанных случая анизотропии СП параметра порядка (образующегося в одной или разных зонах, соответственно) при исследовании реального планарного SnS-контакта (с $Z, \Gamma \neq 0$ и конечным l/d) может быть сложно, принимая во внимание отсутствие соответствующих, расширенных теоретических моделей. В любом случае, степень анизотропии далее будем определять как $A \equiv 100\% \cdot [1 - \Delta^{in}/\Delta^{out}]$, не спекулируя на ее природе.

Подытоживая, отметим, что ЭНМАО-спектроскопия – это прямой локальный метод определения основных энергетических параметров СП состояния и их температурных зависимостей вплоть до T_c . Как следствие, одним из важнейших преимуществ ЭНМАО-спектроскопии является возможность определения локальной критической температуры SnS-контакта T_c^{local} , соответствующей температуре перехода контактной области (размером до 50 нм) в нормальное состояние. Это позволяет не только получить более точные, локальные значения характеристического отношения $r_i \equiv 2\Delta_i(0)/k_B T_c^{local}$, но и определить эволюцию величин $\Delta_i(0)$ и r_i вдоль фазовой диаграммы.

3. Экспериментальные данные и обсуждение. На рисунке 2 показаны типичные ВАХ и $dI(V)/dV$ -спектры SnS-контактов на микротрещине, получаемые при 4.2 К в монокристаллах Na(Fe, Co)As НД (а) и ПД составов (б). Видно, что ВАХ симметричны относительно нуля, воспроизводимо не имеют гистерезиса и вместо сверхтоковой ветви демонстрируют область повышенного наклона при $eV \rightarrow 0$ (“пьедестал”), что исключает джозефсоновскую природу наблюдаемых на $dI(V)/dV$ особенностей. Помимо этого, на ВАХ наблюдается избыточный ток во всем диапазоне смещений eV (сравните сплошную и штриховую синие линии на рис. 2а). Данные особенности ВАХ соответствуют реализации режима ЭНМАО и достаточно высокой прозрачности SnS-контакта ($Z < 1/2$) согласно всем соответствующим классическим моделям [20–22].

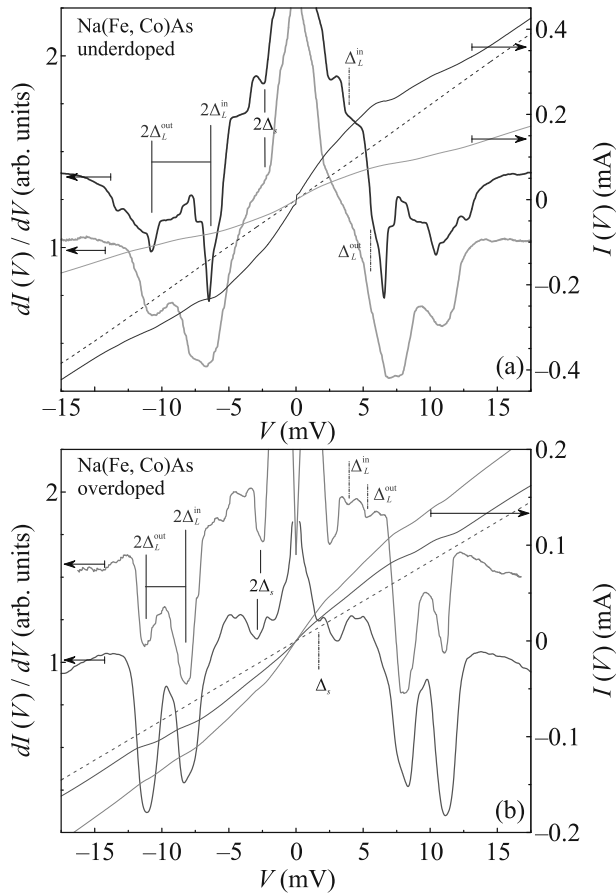


Рис. 2. (Цветной онлайн) ВАХ (правая ось) и $dI(V)/dV$ -спектры (левая ось) SnS-контактов на базе $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ НД (а) и ПД (б) составов, измеренные при 4.2 К. Для удобства сравнения данные приведены в одном масштабе по оси смещений. При 4.2 К вертикальными штрихами и отмечено положение фундаментальных андреевских гармоник от СП параметров порядка $2\Delta_L^{\text{out}}$, $2\Delta_L^{\text{in}}$ (дублет) и малой СП щели $2\Delta_S$; штрихпунктирными линиями отмечено ожидаемое положение соответствующих вторых субгармоник. Для сравнения штриховыми линиями приведены ВАХ, соответствующие контактам, показанным синим (а) и красным цветом (б) и измеренные выше T_c

В НД и ПД составах $dI(V)/dV$ -спектры на рис. 2 имеют схожие андреевские структуры. Для SnS-контакта на базе НД кристалла (рис. 2а) при рассмотрении спектра в сторону уменьшения eV первой андреевской особенностью является дублет: два минимума при смещениях $|eV| \approx 10.7$ мэВ и $|eV| \approx 6.5$ мэВ. Эти минимумы не являются $n = 1, 2$ субгармониками одной и той же изотропной СП щели, поскольку отношение их положений составляет ≈ 1.6 вместо $V_1/V_2 = 2$, предсказываемого для СГС. Значит, каждый из этих минимумов является фундаментальной ($n = 1$) гармоникой от СП параметров по-

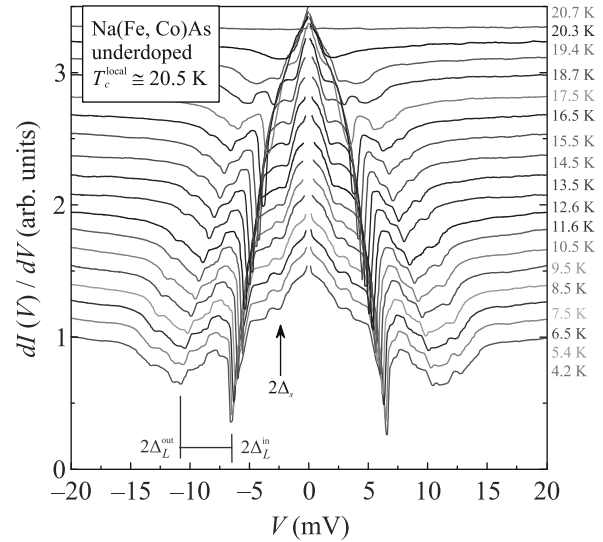


Рис. 3. (Цветной онлайн) Эволюция $dI(V)/dV$ -спектра SnS-контакта (аналогичен кривой синего цвета на рис. 2а, $T_c^{\text{local}} \approx 20.5$ К), полученного в монокристалле НД состава, с температурой. Кривые намеренно сдвинуты по вертикали, слабая нелинейность $dI(V)/dV$ нормального состояния подавлена для удобства. Вертикальными штрихами и стрелками при 4.2 К отмечены фундаментальные андреевские гармоники от СП энергетических параметров Δ_L^{out} , Δ_L^{in} , Δ_S

рядка, которые далее будут обозначены как Δ_L^{out} и Δ_L^{in} . Положения минимумов напрямую определяют их амплитуды при $T \ll T_c$ как $\Delta_L^{\text{out}}(0) \approx 5.35$ мэВ и $\Delta_L^{\text{in}}(0) \approx 3.25$ мэВ. Степень предположительной анизотропии можно оценить как $A_L \approx 39\%$. Значительная амплитуда данных андреевских минимумов однозначно указывает на отсутствии точек нулей наблюдаемых СП параметров порядка (s - или расширенная s -волновая симметрия). Особенности $dI(V)/dV$, наблюдаемые при вдвое меньших смещениях (штрихпунктирные линии на рис. 2а) можно интерпретировать как вторые ($n = 2$) субгармоники от этих СП параметров порядка. При малых смещениях $|eV| \approx 2.4$ мэВ присутствует фундаментальная гармоника от малой СП щели $\Delta_S(0) \approx 1.2$ мэВ.

В НД образцах подобные андреевские структуры воспроизводятся на спектрах полученных планарных SnS-контактов, имеющих различную площадь и нормальное сопротивление R_N (которое может быть оценено по наклону ВАХ). Таким образом, наблюдаемые структуры отражают внутренние свойства $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ и не могут быть вызваны геометрическими резонансами или поверхностными дефектами.

Похожие, также воспроизводящиеся ВАХ и спектры SnS-контактов были получены в монокристаллах ПД состава (рис. 2б). На $dI(V)/dV$ -

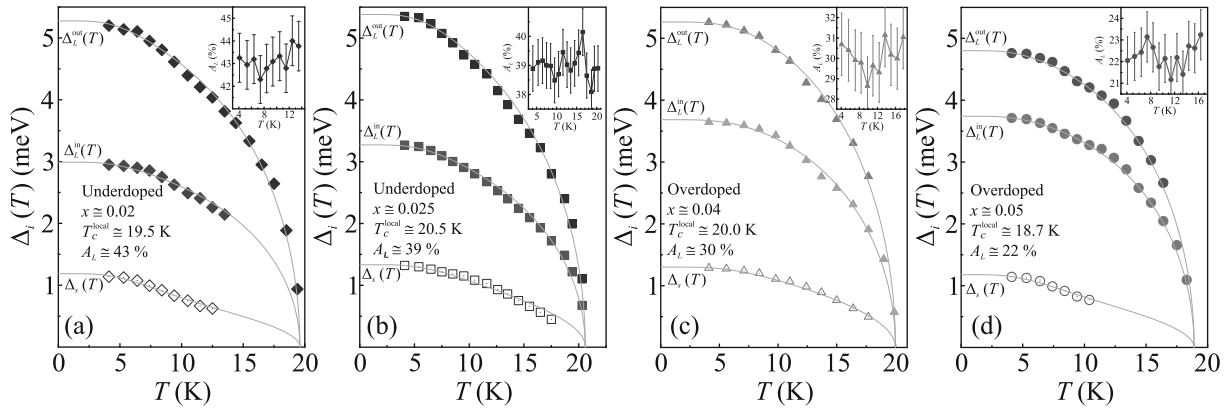


Рис. 4. (Цветной онлайн) Температурные зависимости СП параметров порядка в монокристаллах НД (а), (b) и ПД составов (с), (d). На вставках приведены температурные зависимости предположительной анизотропии большой СП щели $A_L(T)$. Локальные T_c были оценены на основе аппроксимаций многозонной БКШ-образной моделью [25–28] как температуры, при которых $\Delta_L \rightarrow 0$. Приблизительные степени замещения x в $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ приведены в соответствии с фазовой диаграммой, показанной на вставке к рис. 1

характеристиках при больших смещениях также наблюдается дублет, положения которого напрямую определяют амплитуды $|eV| = 2\Delta_L^{\text{out}} \approx 11.2$ мэВ и $|eV| = 2\Delta_L^{\text{in}} \approx 8.2$ мэВ. Заметим, однако, что его относительная ширина значительно меньше наблюдаемой для НД состава и соответствует степени анизотропии $A_L \approx 27\%$.

Изменение вида $dI(V)/dV$ -спектра с температурой показано на рис. 3 для SnS-контакта, полученного в НД кристалле, в качестве примера. Хорошо видно, как с увеличением температуры положение всех андреевских особенностей сдвигается в сторону нуля и уменьшается амплитуда пьедестала. При $T = 20.7 \text{ K} > T_c$ андреевские структуры исчезают, и $dI(V)/dV$ -спектр становится гладким, что соответствует нормальному состоянию контактной области. Подобные измерения $I(V)$ и $dI(V)/dV$ -характеристик в широком диапазоне температур были проведены для SnS-контактов на базе НД и ПД образцов. Примеры измеренных напрямую температурных зависимостей СП параметров порядка показаны на рис. 4; данные, полученные на основе рис. 3, показаны на рис. 4b. Для наглядности на рис. 4 зависимости расположены в порядке, соответствующем фазовой диаграмме допирования (т.е. при увеличении T_c^{local} в НД области и ее уменьшении в ПД области).

Полученные температурные зависимости трех наблюдаемых энергетических щелевых параметров $\Delta_L^{\text{out}}(T)$, $\Delta_L^{\text{in}}(T)$ и $\Delta_S(T)$ для всех составов имеют схожую форму, которая может быть описана в рамках многозонной модели на основе уравнений Москаленко и Сула [25, 26] с перенормировками

температур в интегралах теории Бардина-Купера-Шриффера (БКШ) (основы и ограничения модели, подгоночные параметры аппроксимации подробно описаны в [27, 28]).

Общей особенностью определенных напрямую зависимостей $\Delta_i(T)$ является аналогичный температурный тренд $\Delta_L^{\text{out}}(T)$ и $\Delta_L^{\text{in}}(T)$: как показано на вставках, степень анизотропии $A_L(T)$ остается практически постоянной с увеличением температуры (максимальное отклонение $\pm(1-2\%)$). Такое поведение, с большой долей вероятности, указывает на то, что СП параметры порядка Δ_L^{out} и Δ_L^{in} относятся к одному и тому же СП конденсату, анизотропному в k -пространстве, а не являются отдельными СП щелями, открывающимися в разных зонах на поверхности Ферми (подробнее этот вопрос обсуждается в [17]). Малая СП щель имеет отличающуюся температурную зависимость и убывает с температурой чуть быстрее. В целом, температурные тренды $\Delta_i(T)$ типичны для случая умеренного межзонного взаимодействия между СП конденсатами в импульсном пространстве.

Для определения эволюции СП щелевой структуры при изменении степени электронного допирования нами была собрана значительная статистика зависимостей $\Delta_i(T)$ и определены локальные критические температуры соответствующих SnS-контактов в образцах НД и ПД составов. На рисунке 5а показана репрезентативная выборка вида дублета при $T \ll T_c$, наблюдаемого при больших смещениях на $dI(V)/dV$ -спектре. Для удобства сравнения данные приведены в одинаковом масштабе по оси смещений, eV нормировано на $2\Delta_L^{\text{out}}(0)$. При рассмотрении слева направо

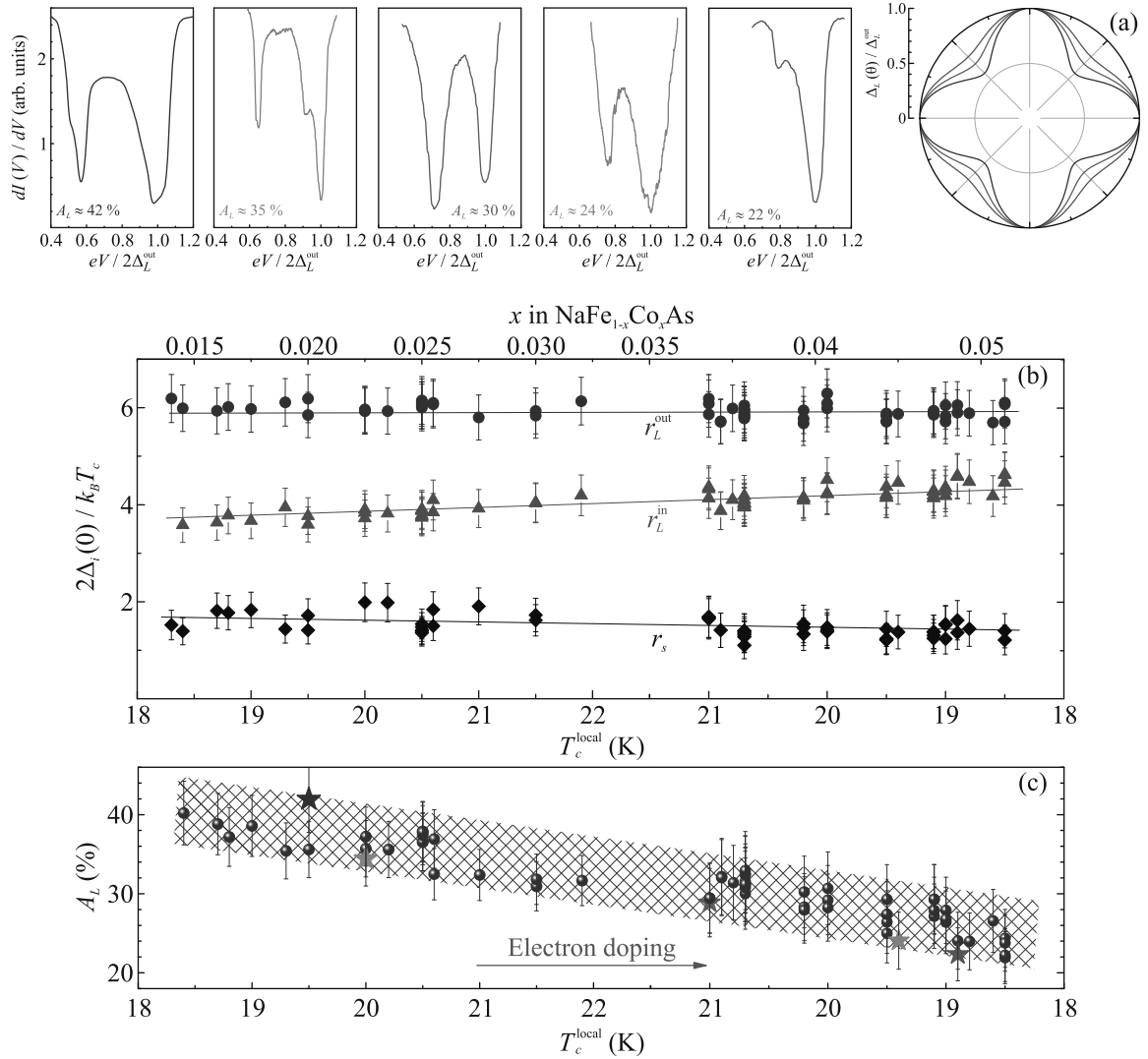


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Фрагменты $dI(V)/dV$ -спектров SnS-контактов с различными T_c^{local} , полученные в монокристаллах НД и ПД состава и содержащие дублет от предположительно анизотропной большой СП щели. Для наглядности данные приведены в одинаковом масштабе по оси смещений и расположены в порядке увеличения степени электронного замещения, согласно фазовой диаграмме допирования. Справа соответствующими цветами схематически показано угловое распределение $\Delta_L(\theta)$ в предположении его $\cos(4\theta)$ -типа и расширенной s -волновой симметрии большой СП щели. (б) – Зависимость характеристических отношений r_i трех СП параметров порядка и (с) – степени анизотропии A_L от локальной критической температуры SnS-контакта. Звездами соответствующих цветов показаны данные контактов, для которых на (а) приведены дублеты на $dI(V)/dV$ -спектрах. Приблизительные степени замещения x приведены в соответствии с фазовой диаграммой на вставке к рис. 1

(что соответствует движению от НД к ПД области) дублет заметно сужается и относительное положение минимума при $eV = 2\Delta_L^{\text{in}}$ увеличивается. В предположении анизотропии Δ_L , открывающейся в одной эффективной зоне (т.е. ее расширенной s -волновой симметрии без точек нулей), можно схематически представить изменение ее углового распределения в $k_x k_y$ -плоскости, как показано на рис. 5а справа (цвета соответствуют фрагментам спектров).

Для исследованного диапазона критических температур от $T_c^{\text{local}} \approx 18.3$ К в НД области до $T_c^{\text{local}} \approx 18.5$ К в ПД области характеристические отношения $r_L^{\text{out}} \approx 5.7-6.2$ и $r_s \equiv 2\Delta_S(0)/k_B T_c^{\text{local}} \approx 1.2-2.0$ остаются примерно постоянными (рис. 5б). Аналогичный скейлинг амплитуд большой и малой СП щелей $\Delta_{L,S}(0)$ с T_c наблюдался нами ранее в оксипниктидах семейства 1111 НД и оптимально допированных составов [29, 30]. Относительно боль-

шой разброс значений r_S в Na(Fe, Co)As, заметный на рис. 5b, связан с меньшей точностью определения $\Delta_S(0)$ из-за малой амплитуды ее андреевских гармоник на $dI(V)/dV$ -спектрах; это может быть вызвано наличием точек нулей в распределении $\Delta_S(\theta)$, низкой концентрацией носителей заряда или заметным отношением $\Gamma/\Delta_S(0)$ в соответствующих зонах. В целом, значение $r_S < 3.53$ характерно для “слабого” или “ведомого” конденсата в многощелевом сверхпроводнике.

Достаточно сильные изменения при движении от НД к ПД области претерпевает характеристическое отношение r_L^{in} : оно практически линейно увеличивается примерно от 3.7 в НД области с $T_c^{\text{local}} \approx 18.5$ К до 4.3 в ПД составах с $T_c^{\text{local}} \approx 18.5$ К (треугольники на рис. 5b). Это соответствует постепенному сужению дублета на $dI(V)/dV$ -спектре и уменьшению степени анизотропии A_L более чем в полтора раза: в среднем от 40 % до 24 %. Полученные данные качественно согласуются с результатами ARPES [9].

Наблюдаемое различие СП щелевой структуры можно объяснить близостью АФМ и нематических фаз в монокристаллах НД составов (последнее подтверждается наличием структурного перехода на зависимости $R(T)$, см. рис. 1) и их заметным влиянием на свойства СП подсистемы. Согласно классической теории ВТСП-купратов Абрикосова [31], а также расчетам СП щелевой структуры железосодержащих сверхпроводников в рамках s^{++} и $s^{\pm}$ -подходов [10, 11], понижение Δ_L^{in} (т.е. минимума предположительного распределения $\Delta_L(\theta)$ в $k_x k_y$ -плоскости) относительно Δ_L^{out} может быть достигнуто (преимущественно вдоль вектора нестинга) при усилении интенсивности спин-флуктуационного взаимодействия, ожидаемого в НД области; аналогичная тенденция ожидается при введении спаривания посредством нематических флуктуаций [6].

Линейная экстраполяция зависимостей $r_i(T_c^{\text{local}})$, приведенных на рис. 5b, предсказывает изотропизацию Δ_L в сильно передоприванной области с $T_c \approx 8$ К (что примерно соответствует составу NaFe_{0.91}Co_{0.09}As согласно фазовой диаграмме на рис. 1 в [2]) и, напротив, сильную анизотропию нулей $\Delta_L(\theta)$ вблизи (> 60 %, $\Delta_L^{\text{in}} \rightarrow \Delta_S$) стехиометрического состава. Полученное нами значительное усиление анизотропии большой СП щели при приближении к АФМ и нематической фазе однозначно указывает на важность спин-флуктуационного и/или нематического канала в механизме куперовского спаривания и их заметном влиянии на свойства СП подсистемы в Na(Fe, Co)As.

4. Заключение. Методами спектроскопии эффекта некогерентных многократных андреевских отражений планарных контактов на микротрещине в монокристаллах Na(Fe, Co)As собрана значительная статистика измеренных локально и напрямую данных об амплитудах, характеристических отношениях и температурных зависимостях СП параметров порядка. Проведено сравнение СП щелевой структуры Na(Fe, Co)As НД и ПД составов с близкими $T_c > 18.3$ К и определена эволюция СП щелевой структуры вдоль фазовой диаграммы допирования. Обнаружено заметное (почти в 1.7 раза), практически линейное усиление степени анизотропии большой СП щели в НД области, что указывает на сильное влияние АФМ и нематической фаз на свойства СП подсистемы пниктидов Na(Fe, Co)As. Аппроксимация полученной зависимости предсказывает изотропизацию большой СП щели $\Delta_L^{\text{out}} \approx \Delta_L^{\text{in}}$ в сильно передоприванном составе NaFe_{0.91}Co_{0.09}As с $T_c \approx 8$ К и $\Delta_L^{\text{in}} \rightarrow 0$ Δ_S вблизи стехиометрического состава NaFeAs.

Измерения частично проведены с использованием оборудования Центра коллективного пользования Физического института им. П. Н. Лебедева Российской академии наук.

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках проекта Российского научного фонда 22-72-10082.

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

1. J. H. Tapp, Z. Tang, B. Lv, K. Sasmal, B. Lorenz, P. C. W. Chu, and A. M. Guloy, Phys. Rev. B **78**, 060505(R) (2008).
2. T. E. Kuzmicheva and S. A. Kuzmichev, JETP Lett. **114**, 630 (2021).
3. M. D. Watson, S. Aswartham, L. C. Rhodes, B. Parrett, H. Iwasawa, M. Hoesch, I. Morozov, B. Büchner, and T. K. Kim, Phys. Rev. B **97**, 035134 (2018).
4. I. I. Mazin, D. J. Singh, M. D. Johannes, and M. H. Du, Phys. Rev. Lett. **101**, 057003 (2008).
5. H. Kontani and S. Onari, Phys. Rev. Lett. **104**, 157001 (2010).
6. L. Benfatto, B. Valenzuela, and L. Fanfarillo, npj Quantum Mater. **3**, 56 (2018).
7. S. V. Borisenko, V. B. Zabolotnyy, A. A. Kordyuk, D. V. Evtushinsky, T. K. Kim, I. V. Morozov, R. Follath, and B. Büchner, Symmetry **4**, 251 (2012).
8. K. Umezawa, Y. Li, H. Miao, K. Nakayama, Z.-H. Liu, P. Richard, T. Sato, J. B. He, D.-M. Wang, G. F. Chen, H. Ding, T. Takahashi, and S.-C. Wang, Phys. Rev. Lett. **108**, 037002 (2012).

9. Q. Q. Ge, Z. R. Ye, M. Xu, Y. Zhang, J. Jiang, B. P. Xie, Y. Song, C. L. Zhang, P. Dai, and D. L. Feng, *Phys. Rev. X* **3**, 011020 (2013).
10. T. Saito, S. Onari, and H. Kontani, *Phys. Rev. B* **88**, 045115 (2013).
11. T. Saito, Y. Yamakawa, S. Onari, and H. Kontani, *Phys. Rev. B* **92**, 134522 (2015).
12. G. Tan, P. Zheng, X. Wang, Y. Chen, X. Zhang, J. Luo, T. Netherton, Y. Song, P. Dai, C. Zhang, and S. Li, *Phys. Rev. B* **87**, 144512 (2013).
13. K. Cho, M. A. Tanatar, N. Spyrison, H. Kim, Y. Song, P. Dai, C. L. Zhang, and R. Prozorov, *Phys. Rev. B* **86**, 020508(R) (2012).
14. S. Y. Zhou, X. C. Hong, X. Qiu, B. Y. Pan, Z. Zhang, X. L. Li, W. N. Dong, A. F. Wang, X. G. Luo, X. H. Chen, and S. Y. Li, *Europhys. Lett.* **101**, 17007 (2013).
15. S. A. Kuzmichev, I. V. Morozov, A. I. Shilov, E. O. Rakhmanov, and T. E. Kuzmicheva, *JETP Lett.* **117**, 612 (2023).
16. L. Morgun, S. Kuzmichev, I. Morozov, A. Degtyarenko, A. Sadakov, A. Shilov, I. Zhuvagin, Y. Rakhmanov, and T. Kuzmicheva, *Materials* **16**, 6421 (2023).
17. S. Kuzmichev, A. Muratov, S. Gavrilkin, I. Morozov, A. Shilov, Y. Rakhmanov, A. Degtyarenko, and T. Kuzmicheva, *Eur. Phys. J. Plus* **139**, 74 (2024).
18. J. Moreland and J. W. Ekin, *J. Appl. Phys.* **58**, 3888 (1985).
19. S. A. Kuzmichev and T. E. Kuzmicheva, *Low Temp. Phys.* **42**, 1008 (2016).
20. M. Octavio, M. Tinkham, G. E. Blonder, and T. M. Klapwijk, *Phys. Rev. B* **27**, 6739 (1983).
21. R. Kümmel, U. Günsenheimer, and R. Nicolsky, *Phys. Rev. B* **42**, 3992 (1990).
22. D. Averin and A. Bardas, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1831 (1995).
23. Z. Popović, S. A. Kuzmichev, and T. E. Kuzmicheva, *J. Appl. Phys.* **128**, 013901 (2020).
24. T. P. Devereaux and P. Fulde, *Phys. Rev. B* **47**, 14638 (1993).
25. V. A. Moskalenko, *Phys. Met. Metallogr.* **8**, 25 (1959).
26. H. Suhl, B. T. Matthias, and L. R. Walker, *Phys. Rev. Lett.* **3**, 552 (1959).
27. S. A. Kuzmichev, T. E. Kuzmicheva, and S. N. Tchesnokov, *JETP Lett.* **99**, 295 (2014).
28. T. E. Kuzmicheva and S. A. Kuzmichev, *Low Temp. Phys.* **45**, 1161 (2019).
29. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, M. G. Mikheev, Ya. G. Ponomarev, S. N. Tchesnokov, V. M. Pudalov, E. P. Khlybov, and N. D. Zhigadlo, *Phys.-Uspekhi* **57**, 819 (2014).
30. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, V. M. Pudalov, and N. D. Zhigadlo, *Phys. Rev. B* **95**, 094507 (2017).
31. A. A. Abrikosov, *Physica C* **341-348**, 97 (2000).

Логарифмическая релаксация фотопроводимости квазиодномерного полупроводника TiS_3

И. Г. Горлова⁺, С. Г. Зыбцев⁺, В. Я. Покровский⁺¹⁾, С. А. Никонов⁺, С. В. Зайцев-Зотов⁺⁺, А. Н. Титов[×]

⁺Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

⁺⁺Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, факультет физики, 105066 Москва, Россия

[×]Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения РАН, 620108 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 9 мая 2024 г.

После переработки 14 июня 2024 г.

Принята к публикации 28 июня 2024 г.

Исследованы переходные процессы в фотопроводимости монокристаллов TiS_3 при подаче на образец прямоугольных импульсов света в области длин волн $\lambda = 405\text{--}940$ нм. Установлено, что спад фотопроводимости после выключения излучения при температурах от 180 до 78 К описывается логарифмическим законом в интервале от 10^{-3} до 10^2 с, т.е. при изменении времени на 5 порядков. Это означает, что процесс релаксации характеризуется временами, распределенными в диапазоне от десятков микросекунд до десятков минут, как минимум. Показано, что релаксация имеет преимущественно последовательный характер: барьер для рекомбинации повышается по мере приближения проводимости к равновесному значению.

DOI: 10.31857/S123456782414009X, EDN: WXHCOQ

Квазиодномерный слоистый полупроводник TiS_3 несколько десятилетий привлекает внимание исследователей, что связано как с перспективами практического применения этого слоистого трихалькогенида в наноэлектронике [1] и оптоэлектронике [2], так и с его необычными электронными свойствами [3]. Много лет идет дискуссия о возможности возникновения коллективных электронных состояний в TiS_3 ([4] и ссылки в ней, [5]). Особенности, связанные с предполагаемыми фазовыми переходами, наблюдались, в частности, в фотопроводимости [6]. Несмотря на ряд аргументов в пользу образования волны зарядовой плотности (ВЗП) или экситонного диэлектрика [7], существование подобного состояния до сих пор не доказано. Вместе с тем, сильная корреляция электронов в TiS_3 – общее свойство низкоразмерных соединений – не вызывает сомнений. Так, ряд оптических и фотоэлектрических свойств TiS_3 не описывается одноэлектронными моделями [8]. Например, сообщается о вкладе распада экситонов в люминесценцию [9].

Согласно [2] TiS_3 является прямозонным полупроводником с запрещенной зоной ~ 1 эВ, однако по некоторым данным переходы между валентной и проводящей зоной не прямые [10, 11]. Уровень Ферми при комнатной температуре находится примерно на 1 эВ выше потолка валентной зоны [12], т.е. вбли-

зи дна зоны проводимости. Соответственно, проводимость – электронная [13, 14]. Эта картина объясняется существованием донорного уровня или минизоны вблизи энергии Ферми [12, 15–17]. В соответствии с энергией активации холловской концентрации электронов [13, 14], этот уровень расположен на 400 К ниже края подвижности зоны проводимости. В [6] выдвинуты аргументы в пользу того, что релаксация фотопроводимости идет через этот уровень. Предположительно, электроны, возбужденные из валентной зоны в зону проводимости, быстро переходят на донорный уровень, в то время как рекомбинация электронов с донорного уровня – гораздо более медленный процесс. Таким образом, за малые времена устанавливается динамическое равновесие между электронами на донорном уровне и в зоне проводимости, а время жизни на этом уровне определяет время релаксации τ фотопроводимости $\delta\sigma$. На основании величины $\delta\sigma$ и оценки числа фотонов, поглощаемых в образце в единицу времени, была получена приблизительная оценка времени релаксации: $\tau = 3\text{--}25$ мкс [6]. Однако в некоторых соединениях τ может зависеть от величины $\delta\sigma$ (см., например [18–21]). В этом случае релаксацию невозможно описать одним значением τ , т.е. функцией $\exp(-t/\tau)$.

Прямым способом определения времен жизни фотоносителей является экспериментальное исследование переходных процессов в фотопроводимости.

¹⁾e-mail: vadim.pokrovskiy@mail.ru

В данной работе изучен процесс релаксации фотопроводимости после выключения подсветки. Обнаружено, что спад фотопроводимости в диапазоне температур 78–180 К хорошо описывается как $\delta\sigma \propto -\ln(t)$. Сравнение переходных процессов при разных интенсивностях засветки показало, что релаксация имеет, преимущественно, последовательный характер.

Монокристаллические висеры TiS_3 были синтезированы в ИФМ УрО РАН (Екатеринбург). Перед измерениями висеры расщеплялись механически в плоскости ab , параллельной проводящим слоям, до толщины ~ 100 нм с помощью электрохимически заточенных вольфрамовых игл. В образцах большей толщины значения $\delta\sigma/\sigma_0$, где σ_0 – темновая проводимость, были меньше. Сопротивление образцов в исследованном диапазоне температур, 78–300 К, было порядка 1 МОм. Фотопроводимость исследовалась в двухконтактной конфигурации [6]. Контакты были приготовлены методом лазерного распыления золота [22]. Сопротивление контактов при температурах от гелиевой до комнатной было на 3–4 порядка ниже сопротивления самих образцов [22], поэтому двухзондовые исследования TiS_3 можно считать вполне корректными. Часть измерений проводилась на переменном токе, что позволяет исключить вклад фотоэлектродвижущей силы в измеряемый сигнал.

В качестве источников излучения использовались светодиоды с длинами волн излучения $\lambda = 405, 470, 525, 660$ и 940 нм. Светодиоды располагались снаружи криостата с образцом. Излучение подводилось к висеру по волоконному кабелю. Это обеспечивало стабильность параметров излучения при изменении температуры образца. Ток светодиода I_d задавался с помощью низкочастотного генератора, сигнал на выходе которого имел вид однополярного меандра. Длительность фронтов излучения при включении или выключении светодиодов была существенно меньше 1 мс. Измерения проводимости образца TiS_3 проводилось в режиме заданного напряжения: сигнал, пропорциональный току, снимался с эталонного сопротивления, как правило – 100 кОм. Записывались осциллограммы $\delta\sigma(t)$ как при возрастании, так и при спаде $\delta\sigma$ (вставка к рис. 1). Более детально изучены были переходные процессы после выключения светодиода.

Важной экспериментальной задачей было исследование релаксации в максимально широком диапазоне времен, причем, в условиях, когда $\delta\sigma$ может составлять сотые доли процента от σ_0 . В связи с этим переходные процессы записывались в двух режимах. При измерениях релаксации на малых време-

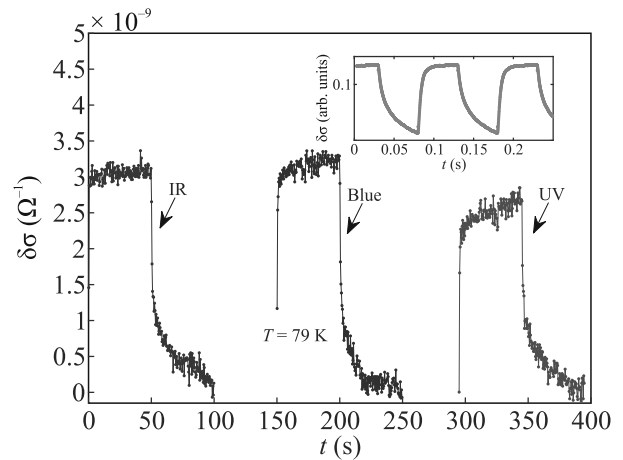


Рис. 1. (Цветной онлайн) Фрагменты осциллограмм фотопроводимости при включении-выключении светодиодов с длинами волн 940 нм (IR), 470 нм (синий) и 405 нм (UV) фиолетовый. Образец # 1, $T = 79$ К. Значения I_d подобраны так, чтобы амплитуды изменения $\delta\sigma$ были близкими. Вставка: пример осциллограммы фотопроводимости при подаче на светодиод тока в виде меандра: I_d изменяется от 0 до 5 мА. $T = 100$ К, $\lambda = 525$ нм

нах ($\sim 10^{-4}$ – 0.2 с) на образец подавалось постоянное смещение. Напряжение с эталонного сопротивления подавалось на вход усилителя PAR 113, включенный в режим измерения переменного напряжения, причем фильтр был настроен на максимально широкий диапазон частот – от 0.03 Гц до 300 кГц. В данном режиме можно без существенных искажений исследовать переходные процессы на временах от десятков мкс до десятых долей секунды. Сигнал с выхода PAR 113 записывался с помощью цифрового осциллографа, с использованием режима многократного усреднения.

Для исследования релаксации фотопроводимости на больших временах (~ 0.2 – 100 с) на образец TiS_3 подавалось переменное напряжение, и ток измерялся с помощью синхронного детектора SR830, с использованием опции сдвига нуля по выходу. Напряжение с аналогового выхода SR830 подавалось на цифровой осциллограф. Светодиод включался вручную на время около 1 с, после этого выключался. При включении светодиода на 10 с получены аналогичные результаты.

Записи на малых и больших временах сшивались, причем единственным подгоночным параметром был сдвиг нуля проводимости.

В числе деталей эксперимента отметим также необходимость стабилизации температуры с точностью $\sim 10^{-3}$ К. Это позволило регистрировать изменения проводимости с точностью не хуже

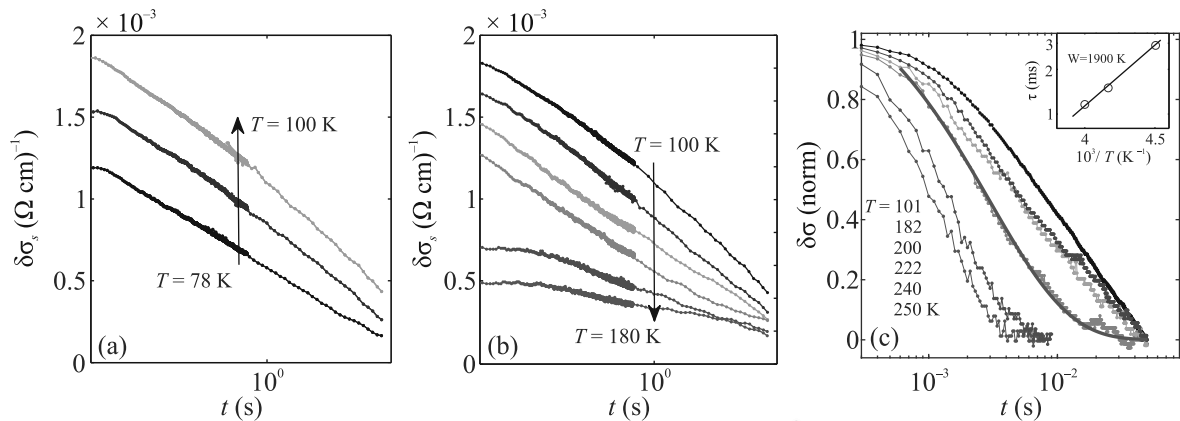


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а), (б) – Зависимости удельной фотопроводимости $\delta\sigma_s$ от времени в полулогарифмическом масштабе при разных T . (а) – Низкие температуры. Снизу вверх: $T = 78, 90, 100$ К. (б) – Высокие температуры. Сверху вниз: $T = 100, 110, 140, 150, 160, 180$ К. На панелях (а) и (б) стрелка указывает направление повышения T . Образец # 2. (с) – Зависимости от времени фотопроводимости $\delta\sigma$, нормированной на значение в момент выключения светодиода. Образец # 1. При $T = 222$ К зависимость $\delta\sigma$ приближена как $\exp[-(t/\tau)^\beta]$ с $\beta = 0.7$ и $\tau = 3$ мс. На вставке: зависимость τ от обратной температуры, где значения τ получены таким же приближением $\delta\sigma(t)$ при $T = 250, 240$ и 222 К

$\delta\sigma/\sigma_0 \sim 10^{-5}$. Все данные приведены на двух образцах с размерами $62 \times 3 \times 0.3 \text{ мкм}^3$ (# 1) и $540 \times 7 \times 0.5 \text{ мкм}^3$ (# 2). Наиболее полный цикл измерений, в диапазоне t от 2×10^{-4} до 10^2 с, был проведен на образце # 2.

Зависимость характера переходного процесса от λ была особо заметна на переднем фронте, при включении светодиода. Как видно из рис. 1, после включения ультрафиолетового (УФ) светодиода ($\lambda = 405 \text{ нм}$) рост фотопроводимости не насыщается за время 50 с. При более длительных измерениях, в течение нескольких минут, мы также наблюдали непрерывный рост проводимости без признаков насыщения. После выключения УФ подсветки значение σ не снижалось до начального темнового значения. Повторная подсветка еще более увеличивала проводимость. Необратимый рост σ был замечен и при облучении синим светом ($\lambda = 470 \text{ нм}$). При облучении на других длинах волн рост σ насыщался (рис. 1). Медленный рост фототока в TiS_3 после включения излучения в УФ диапазоне наблюдался и в [23]. Необратимый рост σ можно объяснить воздействием коротковолнового излучения на межатомные связи или на генерацию вакансий серы, по аналогии с долговременными переходными процессами в фотопроводимости ZnO [24].

Из рисунка 1 также видно, что после выключения света спад фотопроводимости проходил примерно по одному и тому же закону для разных λ . В дальнейшем мы сосредоточились на изучении спада σ после выключения светодиода, ограничившись подсветкой на длине волны $\lambda = 525 \text{ нм}$.

На рисунке 2 приведены кривые релаксации фотопроводимости в логарифмическом масштабе по оси t при разных температурах. На панелях (а) и (б) приведены значения удельной фотопроводимости, $\delta\sigma_s(t)$, для образца # 2. Зависимости получены сшиванием кривых, записанных с помощью цифрового осциллографа в двух диапазонах времени²⁾. При этом точка отсчета $\delta\sigma$, т.е. темновая проводимость, известна приблизительно. На рисунке 2с приведены кривые релаксации фотопроводимости, нормированной на ее максимальное значение, измеренные на образце # 1, причем, – до более высоких температур.

Максимальной величины $\delta\sigma$ на образце # 2 достигает в области 100 К, в согласии с [6]. Поэтому, чтобы кривые не перекрывали друг на друга, мы привели их на двух панелях: при $T \leq 100$ К (слева) и при $T \geq 100$ К (справа). Видно, что во всем диапазоне температур, при которых удалось измерить $\delta\sigma(t)$, кривые релаксации описываются логарифмическим законом, начиная с $t \sim 10^{-3}$ с до максимального времени измерения, 10^2 с. При этом возрастание времени начала логарифмической релаксации до

²⁾ Детали измерений. Малые времена ($t < 0.4$ с): I_d – однополярный меандр с частотой 1.08 Гц. Запись после выключения в течение 0.43 с, частота дискретизации – 5 кГц. Сигнал многократно усреднен. Большие времена ($t > 0.2$ с): I_d включается на время ≈ 1 с и выключается вручную. Проводимость TiS_3 измеряется на переменном токе с помощью SR830 на частоте 42 Гц. Постоянная времени SR830: 0.1 с. Осциллограф записывает сигнал с аналогового выхода SR830 с использованием опций смещения нуля и дополнительного усиления $\times 100$ в течение 100 с с частотой дискретизации 100 Гц. Значения $\delta\sigma$ усреднены по времени.

10^{-2} с при 160 и 180 К (рис. 2b) нельзя связать с переходным процессом в светодиоде. Этот результат нас удивил, поскольку с повышением температуры можно ожидать снижения всех характерных времен релаксации. Отметим, что на образце #1 такого малого наклона кривых $\delta\sigma$ от $\log(t)$ при $t \sim 10^{-3} - 10^{-2}$ с не наблюдалось (рис. 2с).

При максимальных t и T в некоторых случаях был замечен переход к $\delta\sigma(t) = \text{const}$, что означает полную релаксацию фотопроводимости. Такой переход хорошо виден на образце #1 (рис. 2с), на котором удалось наблюдать релаксацию до более высоких температур – до 220 К.

Логарифмический вид зависимости $\delta\sigma(t)$ означает, что вначале процесс релаксации характеризуется малыми временами, затем – замедляется. Например, из начального наклона зависимости $\ln(\delta\sigma)$ от t при $T = 35$ К (рис. 2а) можно оценить $\tau \sim 30$ мс, из конечного (при $t = 100$ с) – $\tau \sim 200$ с. Оценка τ , приведенная в [6], оказалась заниженной из-за того, что измерения $\delta\sigma$ проводились при мощностях, соответствующих максимальным токам светодиодов, т.е. при максимальном темпе генерации-рекомбинации. Заметим также, что наклон кривых $\delta\sigma_s$ от $\log(t)$ с ростом температуры от 78 К до примерно 100 К возрастает (рис. 2а), затем – уменьшается (рис. 2b).

Прежде, чем анализировать результаты, вспомним, с чем может быть связан логарифмический вид релаксации. Отклонение от экспоненциального закона означает, что процесс нельзя описать одним временем релаксации, т.е. барьером определенной высоты. Это характерно для неоднородных систем, например, для спиновых стекол, в которых наблюдается логарифмическая релаксация намагниченности [25]. При линейном (равномерном) распределении барьеров по высоте получаем экспоненциальное распределение времен релаксации, и релаксация идет по логарифмическому закону. Такую релаксацию называют параллельной в том смысле, что ее можно представить как суперпозицию независимых процессов, идущих в разных точках образца [26].

В [27] (см. также [26], стр. 306) была предложена идея последовательной (каскадной) релаксации. В этом случае процесс релаксации представляет собой последовательность переходов через барьеры, причем каждый следующий переход может произойти только после предыдущего, более быстрого. По мере релаксации высота барьера возрастает, так что каждый следующий переход характеризуется все большим и большим временем.

Хотя идея, высказанная в работе [27], широко обсуждается, примеров экспериментального наблюде-

ния последовательной релаксации не так много (см., например, [28]). Один из немногих экспериментально подтвержденных случаев – релаксация метастабильных состояний ВЗП [29]. С релаксацией метастабильных состояний ВЗП авторы [21] связывают логарифмическую релаксацию фотопроводимости в TaS_3 .

Обсудим более подробно релаксацию деформации ВЗП, поскольку это коллективное состояние рассматривается как возможное в TiS_3 . Как показано в [29], релаксация деформации ВЗП в большинстве случаев определяется барьером для проскальзывания ее фазы (ПФ), который уменьшается пропорционально величине деформации ВЗП. В полуэмпирической широко применимой модели ПФ [30, 31] описывается как термически активированный процесс. При фиксированной температуре скорость релаксации пропорциональна частоте ПФ:

$$d\zeta/dt \propto -\exp(-W/kT), \quad (1)$$

где ζ – отклонение химпотенциала квазичастиц от равновесного значения, т.е. мера деформации ВЗП, $W \propto \zeta_{\text{cr}}$ – энергетический барьер для релаксации, а ζ_{cr} – максимальная (критическая) деформация ВЗП. Легко убедиться, что (1) описывает релаксацию $\zeta - \zeta_{\text{cr}} \propto -\ln(t/t_0)$, где t_0 – частота попыток [29], а $d[\zeta/(kT)]/d\ln t = (dW/d\zeta)^{-1}$, характеризует скорость повышения барьера при уменьшении ζ . В пределе униполярной проводимости $\zeta/(kT) = \delta\sigma/\sigma$, и $\delta\sigma \propto -\ln(t/t_0) + \zeta_{\text{cr}}$. Здесь $\delta\sigma$ – отклонение проводимости от равновесного значения. Излом $\delta\sigma(t)$ при больших t , т.е. переход к $\delta\sigma(t) = \text{const}$ (как на рис. 2с), соответствует достижению равновесия, при котором происходят спонтанные переходы через барьер W в обе стороны.

Добавим, что в ряде работ для описания неэкспоненциальной релаксации, например, в [27], используется также функция “затянутая экспонента” (*stretched exponential form*), предложенная в [32]: $\zeta \propto \exp[-(t/\tau)^\beta]$. Она удобна, когда при широком распределении времен в системе можно все-таки выделить некоторое характерное время релаксации τ . При $\beta = 1$ получаем обычную экспоненциальную релаксацию, при $\beta \rightarrow 0$ – логарифмическую. Вариант приближения зависимости $\delta\sigma(t)$ “затянутой экспонентой” показан на рис. 2с. С повышением температуры время τ уменьшается (вставка к рис. 2с). При 250 К кривая $\delta\sigma(t)$ становится практически экспоненциальной (β близко к 1). При понижении температуры β приближается к 0, т.е. распределение времен становится все шире, и определить среднее значение τ – все сложнее.

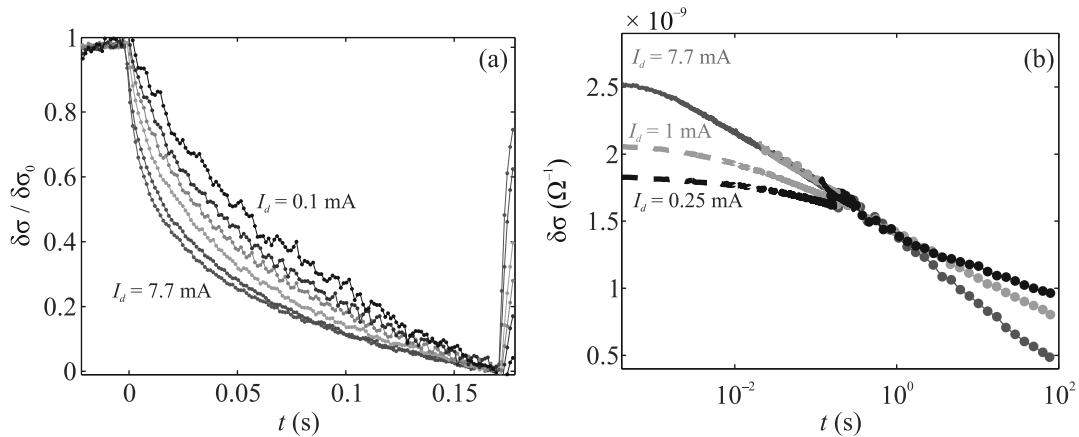


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Кривые релаксации $\delta\sigma(t)$, нормированные на $\delta\sigma(0)$, измеренные после выключения ($t = 0$) тока диода $I_d = 7.7, 3, 1, 0.5, 0.25$ и 0.1 mA (измерения в области малых времен). (б) – Зависимости $\delta\sigma(t)$ после выключения тока диода $I_d = 7.7, 1$ и 0.25 mA; кривые при $I_d = 1$ и 0.25 mA приведены со сдвигом по времени на 0.019 и 0.12 с, соответственно. Пунктиром показан ход $\delta\sigma(t)$ при $I_d = 1$ и 0.25 mA без сдвига по t , т.е. при отсчете времени от момента выключения I_d . Образец # 2

Как различить последовательную и параллельную релаксацию? Одна из возможностей – сравнить спады измеряемой величины после воздействий разной интенсивности. Для определенности рассмотрим релаксацию фотопроводимости $\delta\sigma$ после воздействия импульсов излучения разной мощности. В случае параллельной релаксации состояния после воздействия будут отличаться только числом (концентрацией) возбужденных состояний, а их распределение по высоте барьеров будет тем же. Значит, зависимости $\delta\sigma(t)$ должны масштабироваться просто умножением на константу.

При последовательном процессе величина $\delta\sigma$ определяет высоту барьера для релаксации, т.е. скорость релаксации в данный момент времени: чем меньше $\delta\sigma$, тем выше барьер, и тем медленнее релаксация. В этом случае можно ожидать, что спад фотопроводимости после выключения светодиода будет идти тем быстрее, чем выше была мощность излучения светодиода, что наблюдается для TiS_3 . Это видно из рис. 3а, где показаны нормированные на $\delta\sigma(0)$ переходные процессы $\delta\sigma(t)$, измеренные после выключения подсветки разной интенсивности.

В случае последовательной релаксации, переходные процессы $\delta\sigma(t)$ должны совмещаться сдвигом по времени. Действительно, в идеале, состояние системы в каждый момент времени однозначно определяется величиной $\delta\sigma$, вне зависимости от предыстории. Попытка такого масштабирования кривых $\delta\sigma(t)$ приведена на рис. 3б. Видно, что совмещение является далеко не идеальным: при $t < 1$ с, т.е. для кривых, показанных на рис. 3а, совмещение хорошее, но в области $t > 1$ с кривые расходятся. Отсутствие иде-

ального масштабирования можно понять: реальная система всегда пространственно неоднородна – как из-за структурных особенностей, так и из-за неоднородности засветки образца, например, по глубине. В подобных случаях необходимо учитывать параллельно идущие в разных режимах процессы релаксации, и совмещение кривых $\delta\sigma(t)$ сдвигом по t не будет полным (рис. 3б). Тем не менее, на основании рис. 3 можно сделать однозначный вывод о существовании последовательных процессов в релаксации фотопроводимости.

Следствием ускорения темпа рекомбинации с ростом интенсивности является нелинейность зависимости максимального значения $\delta\sigma$ от мощности излучения (I_d), что видно, например, из рис. 3б. Сублинейная зависимость фототока в TiS_3 от мощности излучения ($\lambda = 405$ nm) наблюдалась также в [23].

Какие эффекты могут приводить к росту характерного времени релаксации фотопроводимости по мере приближения к равновесию? Один из известных процессов, наблюдаемых в полупроводниках при столкновительной рекомбинации, – переход релаксации от линейного к квадратичному режиму по мере роста $\delta\sigma$. Наблюдается этот переход и в квазиодномерных проводниках с ВЗП, в которых щель имеет пайерлсовскую природу [33]. Квадратичная релаксация – более быстрая, чем линейная – наблюдается, когда концентрация фотоэлектронов превышает равновесную. Этим объясняется отсутствие масштабирования переходных процессов $\delta\sigma(t)$ в квазиодномерном проводнике TaS_3 при разных интенсивностях излучения: вставка к рис. 1 в [33] выглядит аналогично рис. 3а. Однако в случае TiS_3 $\delta\sigma/\sigma_0$ не пре-

вышает 1 %, поэтому едва ли фотоэлектроны могут существенно повлиять на режим рекомбинации. Если же рассмотреть дырки, их равновесная концентрация, исходя из ширины щели ~ 1 эВ и положения уровня Ферми вблизи края зоны проводимости (на ~ 40 мэВ ниже края) [14, 15], даже при комнатной температуре пренебрежимо мала. Дырки появляются после воздействия излучения, и именно их концентрация определяет скорость рекомбинации. В этом случае скорость рекомбинации, определяемая вероятностью встречи электрона и дырки, пропорциональна концентрации дырок p , и релаксация следует экспоненциальному закону: $dp/dt = -Bp$, где $B > 0$.

Последовательная логарифмическая релаксация фотопроводимости будет наблюдаться, например, в случае, если дыркам для рекомбинации необходимо преодолеть барьер, высота которого падает приблизительно линейно с ростом их концентрации. На наш взгляд, такое возможно, если фотовозбужденные дырки попадают в потенциальные ямы, связанные с флуктуациями потенциального рельефа или захватываются ловушками, например, на поверхности. Возникает пространственное разделение неравновесных электронов и дырок. Можно предположить, что с ростом населенности ловушек энергия дырок в них повышается из-за кулоновского взаимодействия с электронами (притяжения) и другими дырками в потенциальных ямах (отталкивания). В ходе релаксации, по мере высвобождения дырок из потенциальных ям, барьер для выхода из этих ям будет повышаться.

Процесс релаксации фотопроводимости, который определяется поверхностными состояниями – ловушками для дырок, наблюдается, например, в ZnO [24, 34]. В результате релаксация фотопроводимости происходит достаточно медленно, за время от нескольких секунд до часов, и хорошо описывается “затянутой экспонентой” [19, 20].

В случае TiS_3 роль ловушек могут играть вакансии серы, или другие структурные дефекты, характерные для этого соединения [35]. Кроме того, на поверхности кристаллов адсорбируются молекулы O_2 , о чем свидетельствует деградация свойств тонких вискероов TiS_3 при длительном хранении на воздухе. С изменением структуры поверхности мы связываем исчезновение особенностей на температурной зависимости термоЭДС в образцах сечением менее 1 мкм^2 [36]. Известно также, что при нагреве до 300°C на воздухе TiS_3 постепенно превращается в TiO_2 [23].

Проанализируем наклон кривых, представленных на рис. 2. Производная $d \ln \sigma / dt$ дает “мгновенное

время релаксации”, т.е. характеризует высоту барьера, которая растет по мере уменьшения $\delta\sigma$. В частности, в модели для ВЗП, в пределе униполярной проводимости $d \ln \sigma / dt \propto -\exp(-W/kT)$ при $T = \text{const}$, как следует из (1).

Наклон $d(\delta\sigma)/d \log t$ интерпретировать сложнее. По аналогии с [29], $d(\delta\sigma)/d \log t$ характеризует снижение барьера вследствие рекомбинации одной электронно-дырочной пары. Немонотонная температурная зависимость величины $d(\delta\sigma)/d \log(t)$ качественно соответствует зависимости подвижности электронов μ , известной из измерений эффекта Холла [6, 14] и эффекта поля [6, 37]. Подвижность электронов в TiS_3 достигает максимума вблизи 100 K, т.е. максимум $d(\delta\sigma)/d \log(t)$ при ~ 100 K обусловлен максимальной подвижностью электронов при этой температуре. Поскольку $\delta\sigma_s = e\delta n\mu$, где δn – концентрация фотоэлектронов, наклон $d(\delta n)/d \log t$ слабо зависит от температуры. Если учесть, что $\delta n \approx p$, во всех случаях спад δn определяется скоростью опустошения ловушек (или других состояний), на которых оказались дырки. Таким образом, влияние на высоту барьера выхода одной дырки из ловушки слабо зависит от температуры. Добавим, что возрастание барьера в процессе релаксации можно описать на языке квазиуровня Ферми для дырок: по мере релаксации квазиуровень понижается, и, следовательно, высота барьера, преодоление которого необходимо для рекомбинации, будет расти.

Ввиду отсутствия убедительных доказательств существования ВЗП в TiS_3 , мы пока не рассматриваем специфические для этого коллективного состояния механизмы логарифмической релаксации. Возможно, исследования релаксации фотопроводимости вблизи температур 50 и 17 K, при которых в TiS_3 наблюдаются признаки фазовых переходов, в том числе, в $\delta\sigma(T)$ [6], дадут основания для поиска новых механизмов релаксации при низких температурах.

В заключение, нами наблюдались медленные процессы в фотопроводимости как после включения, так и после выключения излучения. Характер роста проводимости после включения света качественно изменяется с уменьшением длины волны: затягивание переходного процесса становится заметным при освещении синим светом ($\lambda = 470 \text{ нм}$), а при включении УФ излучения ($\lambda = 405 \text{ нм}$) рост проводимости наблюдается в течение нескольких минут, как минимум, и, возможно, имеет необратимый характер. Мы предполагаем, что рост проводимости можно объяснить воздействием коротковолнового излучения на межатомные связи или на генерацию вакансий серы.

Мы не наблюдали явной зависимости скорости релаксации фотопроводимости после выключения света от длины волны. Детальные исследования спада проводимости после выключения света с $\lambda = 525$ нм показали, что его можно описать логарифмическим законом в широком диапазоне времен, от 10^{-3} до 10^2 с, при температурах 78–180 К. Релаксация имеет преимущественно последовательный характер, т.е. по мере реализации быстрых процессов открывается возможность более медленных, характеризующихся более высокими барьерами для рекомбинации электронов и дырок. Время рекомбинации в TiS_3 , полупроводнике n -типа, определяется временем жизни дырок, которое экспоненциально растет с понижением их концентрации. Это может происходить, например, из-за захвата дырок на ловушки, энергия освобождения которых падает по мере их заполнения вследствие кулоновского взаимодействия.

Финансирование работы. Экспериментальные исследования TiS_3 выполнены С. Г. Зыбцевым, И. Г. Горловой, В. Я. Покровским и С. А. Никоновым при поддержке Российского научного фонда, проект #22-12-00319. Анализ результатов проводился С. В. Зайцевым-Зотовым в рамках Госзадания.

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

1. N. Tripathi, V. Pavelyev, P. Sharma, S. Kumar, A. Rymzhina, and P. Mishra, *Materials Science in Semiconductor Processing* **127**, 105699 (2021).
2. J. O. Island, A. J. Molina-Mendoza, M. Barawi, R. Biele, E. Flores, J. M. Clamagirand, J. R. Ares, C. Sanchez, H. S. J. van der Zant, R. D'Agosta, I. J. Ferrer, and A. Castellanos-Gomez, *2D Mater.* **4**, 022003 (2017).
3. S. Zhao, B. Dong, H. Wang, H. Wang, Y. Zhang, Z. V. Han, and H. Zhang, *Nanoscale Adv.* **2**, 109 (2020).
4. M. D. Randle, A. Lipatov, I. Mansaray, J. E. Han, A. Sinitskii, and J. P. Bird, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 210502 (2021).
5. M. Abdel-Hafez, L. F. Shi, J. Cheng, I. G. Gorlova, S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, L. Ao, J. Huang, H. Yuan, A. N. Titov, O. Eriksson, and Ch. Sh. Ong, *Nano Lett.* **18**, 5562 (2024).
6. I. G. Gorlova, S. A. Nikonov, S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, and A. N. Titov, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 153102 (2022).
7. I. G. Gorlova, S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, N. B. Bolotina, I. A. Verin, and A. N. Titov, *Physica B* **407**, 1707 (2012).
8. E. Torun, H. Sahin, A. Chaves, L. Wirtz, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **98**, 075419 (2018).
9. A. Khatibi, R. H. Godiksen, S. B. Basuvalingam, D. Pellegrino, A. A. Bol, B. Shokri, and A. G. Curto, *2D Mater.* **7**, 015022 (2020).
10. O. Gorochov, A. Katty, N. Le Nagard, C. Levy-Clement, and D. M. Schleich, *Mater. Res. Bull.* **18**, 111 (1983).
11. S. Hou, Z. Guo, J. Yang, Y.-Y. Liu, W. Shen, C. Hu, S. Liu, H. Gu, and Z. Wei, *Small* **17**, 2100457 (2021).
12. H. Yi, T. Komesu, S. Gilbert, G. Hao, A. J. Yost, A. Lipatov, A. Sinitskii, J. Avila, C. Chen, M. C. Asensio, and P. A. Dowben, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 052102 (2018).
13. E. Finkman and B. Fisher, *Solid State Commun.* **50**, 25 (1984).
14. I. G. Gorlova, S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, N. B. Bolotina, S. Yu. Gavrilkin, A. Yu. Tsvetkov, and A. N. Titov, *Physica B* **460**, 11 (2015).
15. H. G. Grimmeis, A. Rabenau, H. Hann, and P. Neiss, *Z. Electrochem.* **65**, 776 (1961) (на немецком).
16. A. S. Shkvarin, Yu. M. Yarmoshenko, M. V. Yablonskikh, A. I. Merentsov, and A. N. Titov, *Journal of Structural Chemistry* **55**, 1039 (2014).
17. S. J. Gilbert, H. Yi, T. Paudel, A. Lipatov, A. J. Yost, A. Sinitskii, E. Y. Tsymbal, J. Avila, M. C. Asensio, and P. A. Dowben, *J. Phys. Chem. C* **126**, 17647 (2022).
18. Б. А. Волков, Л. И. Рябова, Д. Р. Хохлов, *УФН* **172**, 876 (2002).
19. A. Y. Polyakov, N. B. Smirnov, A. V. Govorkov, E. A. Kozhukhova, S. J. Pearton, D. P. Norton, A. Osinsky, and A. Dabiran, *J. Electron. Mater.* **35**, 663 (2006).
20. Sh. Mondal and A. K. Raychaudhuri, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 023501 (2011).
21. S. V. Zaitsev-Zotov, V. E. Minakova, V. F. Nasretdinova, and S. G. Zybtssev, *Physica B* **407**, 1868 (2012).
22. И. Г. Горлова, С. Г. Зыбцев, В. Я. Покровский, *Письма в ЖЭТФ* **100**, 281 (2014).
23. F. Ghasemi, R. Frisenda, E. Flores, N. Papadopoulos, R. Biele, D. P. de Lara, H. S. J. van der Zant, K. Watanabe, T. Taniguchi, R. D'Agosta, J. R. Ares, C. Sánchez, I. J. Ferrer, and A. Castellanos-Gomez, *Nanomaterials* **10**, 711 (2020).
24. J. Bao, I. Shalish, Z. Su, R. Gurwitz, F. Capasso, X. Wang, and Z. Ren, *Nanoscale Res. Lett.* **6**, 404 (2011).
25. C. N. Guy, *J. Phys. F: Met. Phys.* **8**, 1309 (1978).
26. И. М. Коран, *УФН* **145**, 285 (1985).
27. R. G. Palmer, D. L. Stein, E. Abrahams, and P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 958 (1984); Erratum: *Phys. Rev. Lett.* **54**, 1965 (1985).
28. Y. Sun, M. B. Salamon, K. Garnier, and R. S. Averback, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 167206 (2003).
29. S. V. Zaitsev-Zotov, *Synth. Metals* **41–43**, 3923 (1991).
30. J. C. Gill, *J. Phys. C* **19**, 6589 (1986).

31. V. Ya. Pokrovskii, A. V. Golovnya, and S. V. Zaitsev-Zotov, Phys. Rev. B **70**, 113106 (2004).
32. R. Kohlrausch, Ann. Phys. (Leipzig) **12**, 393 (1847).
33. S. V. Zaitsev-Zotov and V. E. Minakova, Phys. Rev. Lett. **97**, 266404 (2006).
34. A. Kushwaha and M. Aslam, J. Appl. Phys. **112**, 054316 (2012).
35. 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).
36. И. Г. Горлова, С. Г. Зыбцев, В. Я. Покровский, *Аномальное поведение термоЭДС в слоистом квазидвумерном полупроводнике TiS_3* , XVI Конференция Сильно коррелированные электронные системы и квантовые критические явления 7 июня 2018 г., г. Троицк, г. Москва, Институт физики высоких давления им. Л. Ф. Верещагина Российской академии наук. Тезисы, с. 15; (<http://www.hppi.troitsk.ru/meetings/Workshop/work18/%D1%82%D0%B5%D0%B7%D0%B8%D1%81%D1%8B2018-%D0%BA%D0%BE%D1%80.pdf>).
37. I. G. Gorlova, V. Ya. Pokrovskii, A. V. Frolov, and A. P. Orlov, ACS Nano **13**, 8495 (2019).

Каскад фазовых переходов под давлением в BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2

Н. С. Павлов^{+*1)}, И. Р. Шеин[×], И. А. Некрасов⁺⁺

⁺Институт электрофизики Уральского отделения РАН, 620016 Екатеринбург, Россия

^{*}Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

[×]Институт химии твердого тела Уральского отделения РАН, 620108 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.

После переработки 14 июня 2024 г.

Принята к публикации 14 июня 2024 г.

В рамках DFT + U метода изучено изменение кристаллической структуры, электронных, термодинамических и магнитных свойств при приложении гидростатического давления от 0 до 140 ГПа в соединениях BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2 – структурных аналогах сверхпроводников на основе железа. Фазовый переход второго рода от антиферромагнитного изолятора к антиферромагнитному металлу наблюдается при давлении 6.4 ГПа для BaMn_2P_2 и 8.3 ГПа для BaMn_2As_2 . Возможно, при допировании BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2 могут оказаться сверхпроводниками выше 6–8 ГПа с критической температурой, которая растет под давлением. Более того, дальнейшее увеличение давления приводит к серии магнитоструктурных фазовых переходов первого рода между различными антиферромагнитными фазами, после которых происходит переход в состояние ферромагнитного металла и, наконец, немагнитного металла.

DOI: 10.31857/S1234567824140106, EDN: WXXJZY

Введение. Интерес к семейству высокотемпературных сверхпроводящих пниктидов и халькогенидов на основе железа (см. обзоры [1–3]) привел к поиску новых семейств химических и/или структурных аналогов данных систем (см., например, [4, 5]). Одним из таких семейств являются материалы с полным замещением атомов Fe другими химическими элементами, например, марганцем. Таким образом, важно изучить возможность возникновения сверхпроводимости в данных системах.

Первое наблюдение сверхпроводимости в системе на основе Mn было сделано в 2021 г., для соединения MnSe была зафиксирована $T_c \sim 9$ К при 35 ГПа [6]. Для другого соединения BaMn_2As_2 , структурного аналога BaFe_2As_2 , наблюдался экспериментально переход в металлическое состояние с резким падением сопротивления при температуре ниже 17 К и давлении 5.8 ГПа (см. работу [7]). Магнитные измерения в работе [7] не проводились. Таким образом, возможность сверхпроводимости в BaMn_2As_2 до сих пор детально не изучена. При атмосферном давлении электронные свойства системы BaMn_2As_2 довольно хорошо изучены (см., например, [8–11]), однако, нам не известно об исследованиях электронных свойств под давлением. Кроме того, изоструктурное и изовалентное соединение BaMn_2P_2 под давлени-

ем также еще не исследовано ни теоретически, ни экспериментально.

В данной работе в рамках DFT + U подхода исследованы электронные, термодинамические, магнитные и структурные свойства соединений BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2 при внешних гидростатических давлениях до 140 ГПа. Фазовый переход второго рода из антиферромагнитного (antiferromagnetic – AFM) изолятора в AFM-металлическое состояние наблюдается при давлении 6.4 ГПа для BaMn_2P_2 и 8.3 ГПа для BaMn_2As_2 . При дальнейшем повышении давления обнаружена серия магнитоструктурных фазовых переходов первого рода между несколькими АФМ металлическими фазами, затем переход в ферромагнитный металл и, наконец, в немагнитный металл. Легированные АФМ фазы потенциально могут быть сверхпроводящими под давлением (свыше 6–8 ГПа), причем критическая температура растет с давлением, возможно, вплоть до типичных значений, соответствующих пниктидам железа.

Методы. Расчеты проводились в рамках DFT + U метода с использованием программного пакета VASP [12]. Обменно-корреляционный функционал был выбран в виде Пердью–Берк–Эрнцерхоф (Perdew–Burke–Ernzerhof – PBE) [13] с учетом обобщенной градиентной поправки (generalized gradient approximations – GGA). Сильное локальное кулоновское взаимодействие Mn-3d электронов было

¹⁾e-mail: pavlov@iep.uran.ru

учтено в рамках подхода Дударева [14]. Значения величин кулоновского взаимодействия U были взяты: $U = 1.4$ эВ для BaMn_2As_2 и $U = 1.2$ эВ для BaMn_2P_2 . Приложение гидростатического давления моделировалось уменьшением объема элементарной ячейки. Положения ионов и параметры решетки для фиксированного объема элементарной ячейки получены в ходе DFT-оптимизации. Программный пакет Gibbs2 [15] использовался для получения параметров уравнения состояния Берча–Мурнагана [16].

Результаты и обсуждение. В данной работе рассмотрены наиболее типичные коллинеарные магнитные структуры для пространственной группы симметрии $I4/mmm$: немагнитные (non-magnetic – NM), ферромагнитные (ferromagnetic – FM) и антиферромагнитные (antiferromagnetic – AFM-A, AFM-C, AFM-G типы, в которых чередующиеся ферромагнитные плоскости перпендикулярны 001, 110 и 111 направлениям соответственно, например, см. [17]). Основной задачей было определить, какая из упомянутых выше фаз является основным состоянием при заданном давлении P (т.е. найти минимум полной энергии $E(P)$).

С точки зрения зонного расчета объем элементарной ячейки V является четко определенным параметром, тогда как соответствующее значение давления P необходимо каким-то образом определить. Первое, что можно сделать, – это вычислить зависимость полной энергии E как функции V в окрестности минимума $E(V)$, положение которого было получено при полной GGA + U оптимизации решетки. Соответствующие результаты представлены на рис. 1 для всех рассматриваемых фаз. Сплошные линии получены как интерполяция GGA + U данных с помощью уравнения состояния Берча–Мурнагана [16]. Теперь, зная уравнение состояния, можно получить величину полной энергии E как функции давления P .

На рисунке 2 для всех рассмотренных фаз представлены значения $E(P)$ относительно полной энергии AFM-G фазы, которая является основным состоянием при $P = 0$. Интервалы устойчивости различных фаз разделены вертикальными линиями. В дальнейшем для построения зависимостей различных параметров от давления мы будем использовать значения P , полученные из уравнения состояния Берча–Мурнагана.

Первый фазовый переход из AFM-G изолятора в AFM-G металл происходит при давлении 6.4 ГПа для BaMn_2P_2 и при 8.3 ГПа для BaMn_2As_2 . Закрывание энергетической щели можно увидеть на рис. 3 (нижняя панель). Поскольку для обеих систем щель закрывается непрерывно и магнитный порядок при

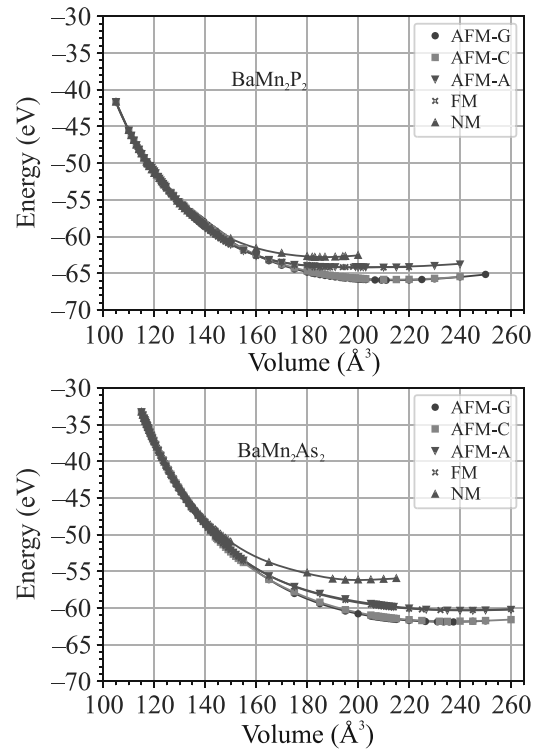


Рис. 1. (Цветной онлайн) Полная энергия E в зависимости от объема элементарной ячейки V для BaMn_2P_2 (вверху) и BaMn_2As_2 (внизу), полученная из GGA+U расчета. Символами обозначены данные для всех рассматриваемых фаз. Сплошные линии – интерполяция GGA + U данных с помощью уравнения состояния Берча–Мурнагана

этом не меняется, то можно предположить, что это фазовые переходы второго рода (сценарий Слейтера).

При повышении давления BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2 начинают вести себя по-разному. При давлении 36 ГПа металлическая AFM-A фаза становится основным состоянием для BaMn_2P_2 . Далее, в диапазоне давлений от 72 до 83 ГПа BaMn_2P_2 оказывается ферромагнитным металлом. Выше 83 ГПа магнитный момент Mn в FM-фазе зануляется (см. рис. 3 верхняя панель слева) и BaMn_2P_2 переходит в парамагнитное металлическое основное состояние.

Для BaMn_2As_2 металлическая AFM-G фаза переходит в металлическую AFM-C фазу при давлении 54 ГПа. Затем, AFM-A фаза оказывается основным состоянием при давлениях 90–127 ГПа. Дальше антиферромагнетизм подавляется при 127 ГПа, когда происходит фазовый переход от металлической AFM-A фазы к металлической FM фазе. Наконец, при давлении выше 134 ГПа магнитный момент иона Mn в FM-фазе исчезает (см. рис. 3, верхняя панель справа) и соединение BaMn_2As_2 превращается в па-

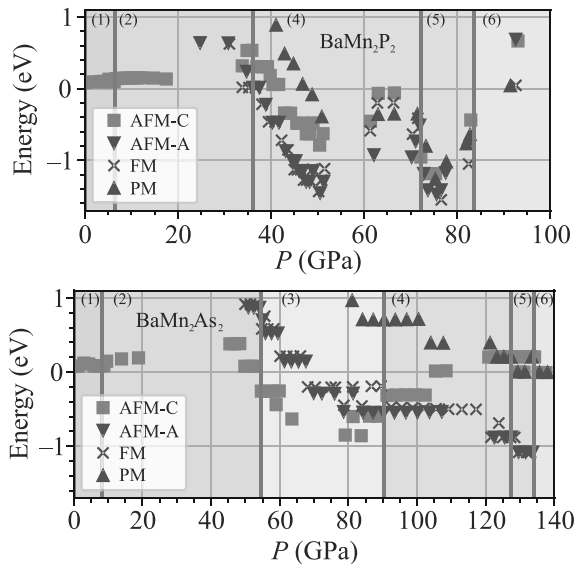


Рис. 2. (Цветной онлайн) Полученные в GGA + U расчете значения полной энергии E в зависимости от давления P для BaMn_2P_2 (вверху) и BaMn_2As_2 (внизу). Энергии представлены относительно фазы AFM-G. (1) – AFM-G изолятор, (2) – AFM-G металл, (3) – AFM-C металл, (4) – металл AFM-A, (5) – FM металл, (6) – немагнитный металл. Вертикальные линии соответствуют точкам фазового перехода

рамагнитный металл. Отметим, что для соединения BaMn_2P_2 AFM-G фазы вообще не существует выше 43 ГПа, тогда как для соединения BaMn_2As_2 AFM-G решение существует вплоть до перехода к немагнитному основному состоянию.

На рисунке 3 отчетливо видны скачки магнитного момента Mn в точках фазового перехода (см. верхние панели). Величины этих скачков больше для фосфорной системы, чем для мышьяковой. Изменение магнитного порядка и наличие скачков магнитного момента в точках фазового перехода позволяют предположить, что происходят магнитные фазовые переходы первого рода.

Для более детального изучения природы данных фазовых переходов проанализируем структурные параметры исследуемых материалов под давлением. На рисунке 4 показаны зависимости структурных параметров от давления, полученные в GGA + U расчетах: постоянных кристаллической решетки a и c , угла связи As-Fe-As и высоты аниона относительно плоскости Mn Δz . Было обнаружено, что все наблюдаемые магнитные фазовые переходы сопровождаются скачками параметров решетки (см. рис. 4). На основании этих скачков можно сделать вывод о наличии магнитоструктурных фазовых переходов первого рода.

Рассматривая BaMn_2P_2 с точки зрения потенциального существования сверхпроводимости, отметим, что полная плотность состояний на уровне Ферми $N(E_F)$ для металлической AFM-G фазы лежит в пределах 0.2–2 состояний/эВ/ячейку, а для металлической AFM-A фазы – от 2 до 3 состояний/эВ/ячейку (см. рис. 4). Как известно для сверхпроводников на основе железа $N(E_F)$ имеет значение от 2 до 5 состояний/эВ/ячейку для парамагнитного случая [18]. В случае BaMn_2As_2 значение $N(E_F)$ для металлической AFM-G фазы практически равно нулю, но для металлических AFM-C и AFM-A фаз достаточно велико: 2–3 состояний/эВ/ячейку. Отчетливо виден тренд роста $N(E_F)$ под давлением для обоих материалов, BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2 . Поэтому, в принципе, можно ожидать, что под давлением (к сожалению, весьма большим) величины температуры сверхпроводящего перехода T_c для AFM пниктидов марганца могут быть сравнимы с пниктидами железа, хотя и меньше.

Поведение величины $N(E_F)$ с ростом давления и значений угла связи $\angle\text{As-Fe-As}$ и высоты аниона относительно плоскости Mn Δz (рис. 4) совершенно отличается от такового для пниктидов железа без давления [18]. Под давлением $N(E_F)$ имеет максимумы при $\angle\text{As-Fe-As}$ и Δz вдали от идеальных значений 109.5° и $1.37 \text{ \AA}$, при которых достигается максимум T_c для пниктидов железа [18]. Тем не менее, общая зависимость $\angle\text{As-Fe-As}$ и Δz от давления качественно довольно хорошо согласуется с аналогичной зависимостью для сверхпроводников на основе железа под давлением (см., например, [19]).

Также, для пниктидов железа вполне типично немотонное поведение T_c от давления: сперва происходит некоторый рост T_c до определенного давления, а затем T_c снижается (см. [20]). Такого же поведения можно было бы ожидать и от рассматриваемых марганцевых материалов из-за аналогичного немонотонного поведения $N(E_F)$ (см. рис. 4).

Для полноты картины на рис. 5 показана зависимость различных межатомных расстояний от давления для BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2 . Эти данные качественно довольно хорошо согласуются с данными для материалов на основе железа под давлением (см. например, [19]).

Заключение. В данной работе в рамках DFT + U подхода исследованы термодинамические, структурные и магнитные свойства соединений BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2 при давлениях от нуля до 140 ГПа.

Фазовый переход второго рода из AFM-G изолятора в металлическое AFM-G состояние наблюда-

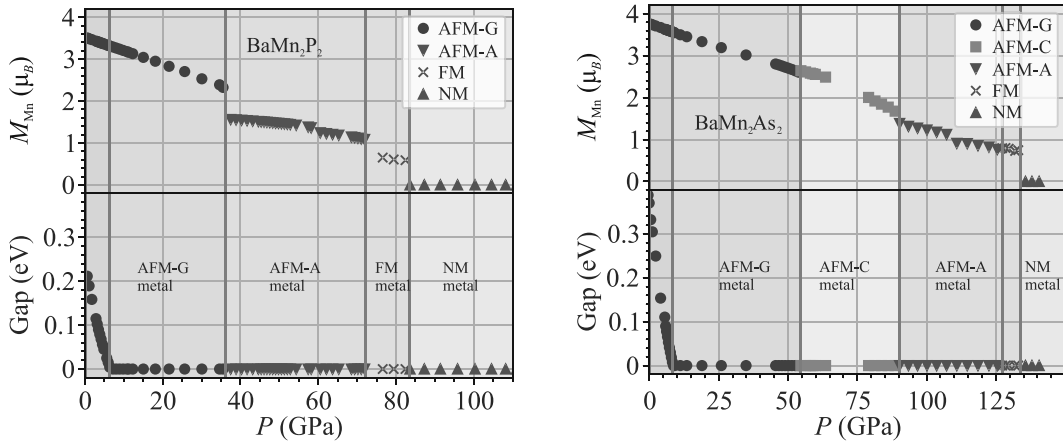


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость магнитного момента иона Mn M_{Mn} и величины энергетической щели для BaMn_2P_2 (слева) и BaMn_2As_2 (справа) от давления P , полученная на основе GGA + U расчетов. Здесь приведены данные только для тех фаз, которые являются основными состояниями при данных давлениях

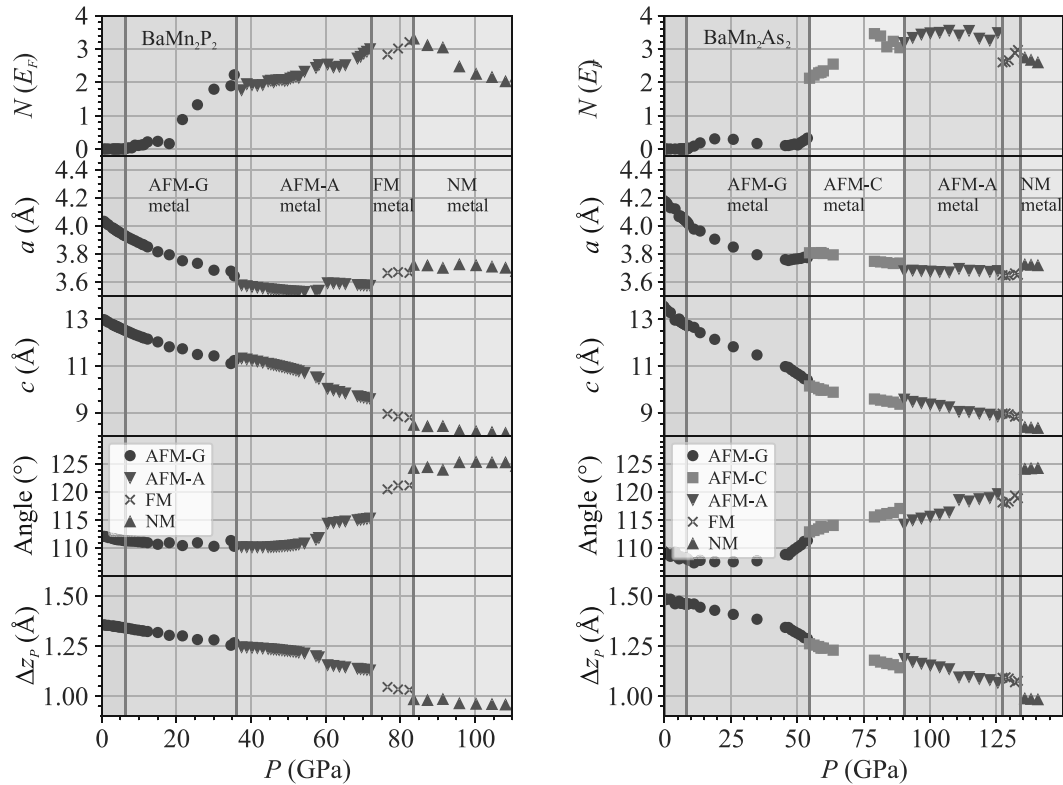


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость величин полной плотности состояний на уровне Ферми $N(E_F)$, постоянных решетки a и c , угла связи As-Fe-As и высоты аниона относительно плоскости Mn Δz от давления P для BaMn_2P_2 (слева) и BaMn_2As_2 (справа). Здесь приведены данные только для тех фаз, которые являются основными состояниями

ется при давлении 6.4 ГПа для BaMn_2P_2 и 8.3 ГПа для BaMn_2As_2 . Результаты наших расчетов для BaMn_2As_2 позволяют предположить, что экспериментально наблюдаемое в работе [7] металлическое состояние ниже 17 К при давлении 5.8 ГПа может быть АФМ.

При более высоких давлениях обнаружен каскад магнитоструктурных фазовых переходов первого рода в: АФМ-Г металлическая фаза, АФМ-А металлическая фаза, FM металлическая фаза и, наконец, немагнитная металлическая фаза для BaMn_2P_2 , происходящих при 36, 72 и 83 ГПа соответственно.

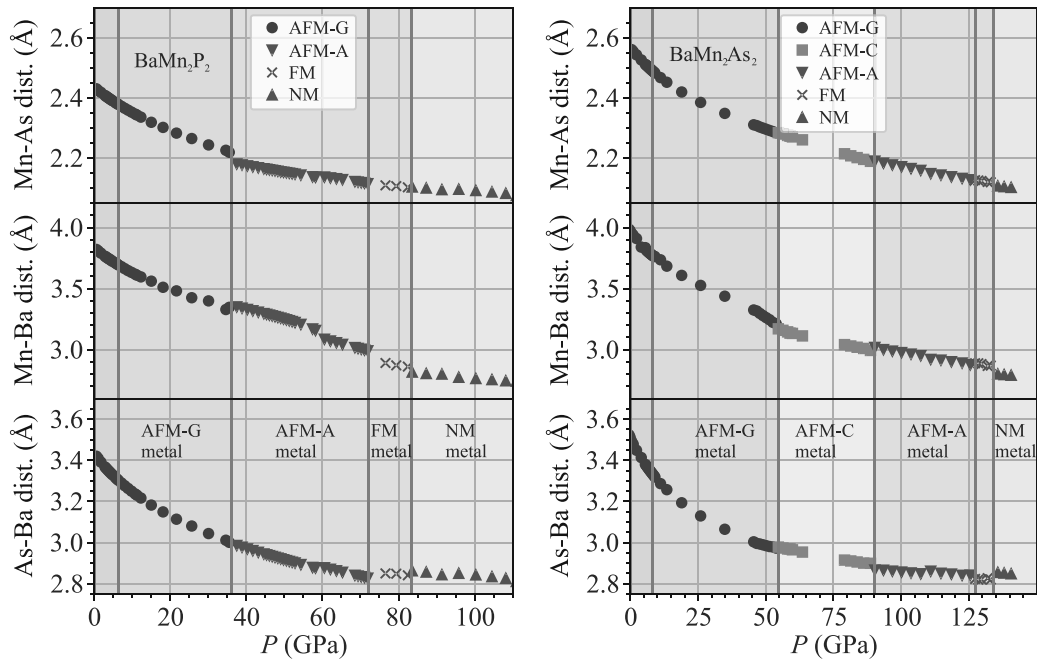


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость различных межатомных расстояний от давления для BaMn_2P_2 (слева) и BaMn_2As_2 (справа), полученные в GGA + U расчетах. Здесь приведены данные только для тех фаз, которые являются основными состояниями

Каскад фазовых переходов для BaMn_2As_2 под давлением немного отличается: AFM-G металл, AFM-C металл, AFM-A металл, FM металл и немагнитный металл происходят при 54, 90, 127 и 134 ГПа соответственно.

Также для рассматриваемых марганцевых материалов получено немонотонное поведение $N(E_F)$ под давлением: сперва наблюдается некоторый рост до определенного давления, а затем $N(E_F)$ уменьшается. Если предположить, что T_c и $N(E_F)$ связаны между собой в рамках теории Бардина–Купера–Шриффера (БКШ), то можно ожидать такого же немонотонного поведения T_c от давления для марганцевых систем, аналогичного пиктидам железа (см., например, [20]). Поскольку значения $N(E_F)$ для рассматриваемых марганцевых материалов и типичных пиктидов железа в принципе практически одинаковы, можно ожидать, что под давлением (к сожалению, довольно большим) температура сверхпроводящего перехода T_c для легированных пиктидов марганца может быть по порядку величины сопоставима с пиктидами железа, хотя и вероятнее всего меньше из-за нормального AFM-состояния марганцевых систем.

Работа выполнена в рамках государственных заданий #124022200005-2 Института электрофизики Уральского отделения Российской академии наук и #124020600024-5 Института химии твердого

тела Уральского отделения Российской академии наук. Авторы благодарны Е. З. Кучинскому и П. А. Игошеву за полезные обсуждения.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Института электрофизики Уральского отделения Российской академии наук и Института химии твердого тела Уральского отделения Российской академии наук. 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. М. В. Садовский, Успехи физических наук **178**, 1243 (2008).
2. G. R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **83**, 1589 (2011).
3. K. Ishida, Y. Nakai, and H. Hosono, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 062001 (2009).
4. M. Neupane, Ch. Liu, S.-Y. Xu, Y.-J. Wang, N. Ni, J. M. Allred, L. A. Wray, N. Alidoust, H. Lin, R. S. Markiewicz, A. Bansil, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, Phys. Rev. B **85**, 094510 (2012).
5. И. А. Некрасов, М. В. Садовский, Письма в ЖЭТФ **10**, 687 (2014).
6. T. L. Hung, C. H. Huang, L. Z. Deng, M. N. Ou, Y. Y. Chen, M. K. Wu, S. Y. Huyan, C. W. Chu, P. J. Chen, and T. K. Lee, Nat. Commun. **12**, 5436 (2021).

7. A. T. Satya, Awadhesh Mani, A. Arulraj, N. V. Chandra Shekar, K. Vinod, C. S. Sundar, and A. Bharathi, *Phys. Rev. B* **84**, 180515 (2011).
8. Y. Singh, A. Ellern, and D. C. Johnston, *Phys. Rev. B* **79**, 094519 (2009).
9. A. Pandey, V. K. Anand, and D. C. Johnston, *Phys. Rev. B* **84**, 014405 (2011).
10. A. Antal, T. Knoblauch, Y. Singh, P. Gegenwart, D. Wu, and M. Dressel, *Phys. Rev. B* **86**, 014506 (2012).
11. W. L. Zhang, P. Richard, A. van Roekeghem et al. (Collaboration), *Phys. Rev. B* **94**, 155155 (2016).
12. G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
13. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
14. S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys, and A. P. Sutton, *Phys. Rev. B* **57**, 1505 (1998).
15. A. Otero-de-la Roza and V. Luana, *Comput. Phys. Commun.* **182**, 1708 (2011).
16. F. Birch, *Phys. Rev.* **71**, 809 (1947).
17. W. Hai-Ping, D. Kai-Ming, T. Wei-Shi, X. Chuan-Yun, H. Feng-Lan, and L. Qun-Xiang, *Chinese Physics B* **18**, 5008 (2009).
18. E. Z. Kuchinskii, I. A. Nekrasov, and M. V. Sadovskii, *Письма в ЖЭТФ* **91**, 567 (2010).
19. K. Kobayashi, J.-i. Yamaura, S. Iimura, S. Maki, H. Sagayama, R. Kumai, Y. Murakami, H. Takahashi, S. Matsuishi, and H. Hosono, *Sci. Rep.* **6**, 39646 (2016).
20. A. S Sefat, *Rep. Prog. Phys.* **74**, 124502 (2011).

Экспериментальная демонстрация микрообработки поверхности полистирола с использованием фотонного крючка

О. В. Минин⁺, И. В. Минин⁺⁺¹⁾

⁺Национальный исследовательский Томский политехнический университет, 634050 Томск, Россия

⁺⁺Филиала Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова Сибирского отделения РАН
“Конструкторско-технологический институт прикладной микроэлектроники”, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 17 мая 2024 г.

После переработки 7 июня 2024 г.

Принята к публикации 10 июня 2024 г.

При лазерной микроперфорации диэлектрических материалов получение кратеров, которые имеют изменяющиеся в продольном и поперечном направлениях характеристики, наталкивается на существенные проблемы. В этой работе мы предлагаем метод микроструктурирования полимерных материалов на примере полистирола на основе лазерных фотонных крючков с использованием маломощного и недорогого лазера непрерывного действия. Для формирования фотонного крючка было использовано оптическое волокно с коническим окончанием с нарушенной симметрией. Результаты экспериментов демонстрируют возможность получения криволинейных микрократеров, форма которых в полимерной подложке зависит от мощности лазерного излучения.

DOI: 10.31857/S1234567824140118, EDN: XBVMUU

1. Введение. Современная фотоника, наряду с традиционными лазерными технологиями обработки материалов включает в себя и новые подходы для создания материалов с требуемыми приповерхностной структурой и/или составом с новыми функциональными и конструктивными характеристиками. При этом прямая лазерная обработка материалов в части нано- (и микро-) перфорации, из-за простоты ее реализации, не требующей химической производственной среды [1–3], претерпела важные изменения с появлением структурированных лазерных пучков. Появляется потенциальная возможность создания управляемой топологии в приповерхностном слое твердого тела, что определяет физико-химические свойства модифицированных таким образом материалов и пленок. Растущая потребность в лазерно модифицированных материалах требует повышения потенциала существующего арсенала методов и их функциональных возможностей для максимально полного контроля над новыми и модифицированными материалами путем использования структурированных локализованных полей.

Для наноструктурирования диэлектриков с использованием популярной технологии нано- и микроперфорации часто используются сверхкороткие лазерные импульсы [4–8]. В [9, 10] была продемонстрирована резка листов стекла на основе структуриро-

ванных пучков Бесселя–Гаусса. Используя фемтосекундный лазер, облучающий пленку оксид-металл-оксид, на которой была выгравирована субволновая кольцевая апертура, авторы [11] генерировали Бессель пучки для получения кратеров в кремнии. Получение отверстий в материале на основе использования пространственно-временной интерференции двух вихревых пучков Бесселя с разными топологическими зарядами и разными несущими частотами было недавно продемонстрировано в [12].

Однако особой проблемой при лазерной нано- и микроперфорации материалов является обработка структур внутри образца, которые имеют изменяющиеся в продольном и поперечном направлениях характеристики. Это становится особенно трудным, когда желаемые пространственные характеристики кратера имеют микронный или даже субволновой (субмикронный) масштаб. Получить изогнутый кратер при абляции материала возможно путем смещения образца во время воздействия лазерного излучения, однако такой метод достаточно трудоемкий [13]. Для получения образцов с закругленной кромкой были применены пучки Эйри [14, 15]. Для формирования пучка Эйри на расстояниях, на несколько порядков превышающих расстояние Гаусса–Рэлея, использовалась 2f-оптическая система, располагаемая после кубической фазовой маски. В этих исследованиях вследствие абляции [16, 17] удалось добиться изогнутого профиля кратера в алмазе, кремнии и

¹⁾e-mail: prof.minin@gmail.com

боросиликатном стекле [18]. Использование лазеров непрерывного излучения совместно с оптикой, формирующей структурированные пучки (Бессель пучки), также позволило формировать цилиндрические кратеры в кварцевом стекле [19].

Однако генерация структурированных самоускоряющихся пучков семейства Эйри применительно к микроструктурированию поверхности образцов обычно достигается с помощью достаточно сложных, громоздких и дорогих технологий [20–22]. А использование фемтосекундных лазерных установок зачастую проблематично ввиду их относительной дороговизны. Более того, структурированным пучкам семейства Эйри и Бесселя присущ недостаток, связанный с умеренным повреждением структурируемой поверхности в области боковых лепестков [14, 23]. Поэтому существует потребность в реализации микро- наноструктурирования материалов с использованием обычного лазера непрерывного действия. Поскольку пространственное разрешение обрабатываемых структур зависит от плотности мощности и распределения интенсивности лазерного пучка, остро сфокусированный лазерный луч обеспечивает более прецизионную обработку поверхности структур.

Попытки создать криволинейные кратеры под действием лазерного излучения были предприняты в [24, 25]. Для этого использовалось механическое смещение сфокусированного пятна лазера на дне кратера для контроля пространственного положения локальной области абляции стекла. Однако кривизна кратера ограничена и определяется как соотношением геометрических параметров самого кратера (глубина, диаметр), так и диаметром сфокусированного лазерного пучка. В то же время, вследствие фундаментального дифракционного предела, наноразмерное структурирование образцов с использованием обычной лазерной системы непрерывного действия остается труднореализуемой обычными средствами. С другой стороны, субдифракционный размер пятна лазера непрерывного излучения и высокую плотность мощности в нем можно создать за счет генерации лазерных фотонных наноструй (ФНС). В мезотронике [26] наноструктурирование поверхности кремнезема на основе структурированных локализованных пучков с полушириной порядка 0.3 длины волны, формируемой сферическими диэлектрическими частицами размером 0.5 мкм, облучаемых эксимерным KrF -лазером с длиной волны 248 нм, было продемонстрировано в [27]. Позднее такой распространяющийся луч, формируемый в теневой части сферической мезоразмерной частицы, в котором вся

падающая мощность сосредоточена в локализованном пучке с диаметром, меньшем половины длины волны, получил название фотонной струи [28]. Экспериментальные исследования показали, что применение фотонных струй для микро- наноструктурирования материалов может значительно улучшить разрешение литографии [29–33]. Однако поскольку микросферы находятся в непосредственном контакте с подложкой, последняя загрязняется, при этом диэлектрическими микрочастицами трудно манипулировать. Поэтому важно разработать и исследовать простой и гибкий метод (желательно без микросфер – мезоразмерных частиц) для генерации локализованных структурированных полей в виде фотонных наноструй, включая фотонный крючок, и прямой лазерной микрообработки на их основе.

В [34] было продемонстрировано, что микролинза различного профиля, размещенная на торце оптического волокна, позволяет обеспечить лазерное субмикронное перфорирование образца. В [35] была продемонстрирована возможность генерации фотонной струи вблизи оптического волокна с интегрированными диэлектрическими сферическими частицами. Позднее, были исследованы различные типы наконечников оптических волокон для получения фотонных струй, в том числе, для лазерного наноструктурирования различных материалов [36]. Однако все указанные выше методы не позволяли реализовать криволинейную форму кратеров в материале. С другой стороны, в отличие от классических самоускоряющихся пучков семейства Эйри, фотонный крючок может быть создан с помощью простой компактной мезоразмерной диэлектрической оптической частицы. А поле фотонного крючка сочетает в себе черты как фотонной струи, так и различного типа самоускоряющихся пучков, включая пучки семейства Эйри [37–39]. Более того, в пучках типа фотонный крючок отсутствуют боковые лепестки, присущие пучкам типа Бессель и Эйри [37], что практически исключит повреждение структурируемой поверхности вне области основного лепестка. В [40] мы впервые продемонстрировали новую концепцию лазерного скальпеля с оптическим крючком на основе оптоволокна. Субволновой фотонный крючок был сформирован вблизи профилированного оптического волокна с асимметричным облучением. Для этого использовался экран внутри оптического волокна со стороны облучения сферической частицы. Однако такой подход встречает определенные технологические трудности в практической реализации.

В то же время, насколько нам известно, до сих пор не было предложено ни одного исследования, де-

монстрирующего возможность использования структурированного пучка типа фотонный крючок для получения криволинейных кратеров в оптически прозрачных диэлектриках.

В этой работе мы экспериментально демонстрируем прямое [3] лазерное микро-структурирование полистироловой пленки с использованием волоконно-оптического зонда с усеченным конусом с непараллельными основаниями [41], отличающееся простотой и дешевизной реализации и позволяющим формировать криволинейные кратеры. Эффект наноструктурирования поверхности материала в виде криволинейного кратера на основе структурированных полей типа фотонный крючок, включающего в себя свойства ФНС и самоускоряющихся пучков, был получен впервые без использования микросфер (мезоразмерных частиц), ранее никогда не изучался, и в этом отношении наши исследования являются абсолютно новыми.

2. Формирование фотонного крючка. Одномодовое кварцевое волокно диаметром 125 мкм сначала растягивалось до диаметра около 50 мкм аналогично [42]. Изготовление волоконно-оптического зонда с коническим окончанием с нарушенной симметрией (так называемый усеченный конус с непараллельными основаниями – рис. 1) состояло из двух этапов – изготовление осесимметричного конического окончания и формирование скошенного окончания на вершине конуса.

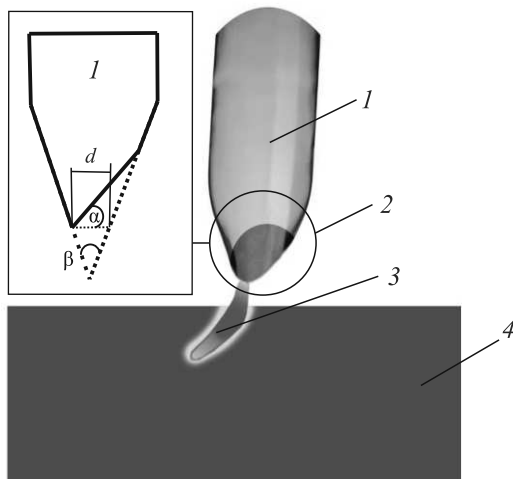


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема эксперимента и геометрия задачи. 1 – оптическое волокно; 2 – коническое окончание с нарушенной симметрией; 3 – фотонный крючок; 4 – полистирол. На вставке слева показана геометрия конического окончания оптического волокна: α – угол усечения конического окончания, β – угол конуса и d – диаметр усеченного конического зонда

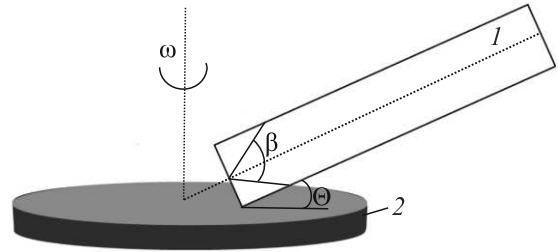


Рис. 2. Формирование конического окончания оптического волокна: 1 – оптическое волокно; 2 – шлифовальный диск; Θ – угол полировки; β – угол конического окончания; $\beta = 2\Theta$

Для изготовления окончания волокна в виде осесимметричного конуса использовалась механическая обработка с помощью вращающегося шлифовального диска (рис. 2). В нашем случае скорость вращения шлифовального диска составляла около $\omega \sim 50$ оборотов в минуту, поверхность которого периодически смачивалась. Как показали эксперименты, увеличение скорости вращения шлифовального диска приводит к более шероховатой поверхности конического окончания. Более подробно аналогичная технология механического изготовления конического окончания волокна описана в [43, 44]. После изготовления конического окончания волокна на нем по такой же технологии формировался асимметричный скос (вставка на рис. 1) для получения усеченного конуса с непараллельными основаниями. Одномодовое оптическое волокно соединялось с коническим окончанием с нарушенной симметрией. Диаметр, угол усечения и угол раствора конического зонда составляют около $d = 22$ мкм, $\alpha = 33^\circ$, и $\beta = 11^\circ$. Заметим, что при указанных углах конического окончания стоячих волн в оптическом волокне согласно [45] не образуется.

В качестве источника излучения использовался термостабилизированный лазер красного спектра на длину волны 0.671 микрон. В качестве образца, как уже указывалось, был выбран полистирол (показатель преломления 1.5847, коэффициент поглощения $\sim 0.12530 \text{ см}^{-1}$ [46]) толщиной 150 микрон, для которого лазерная абляция происходит при температурах, значительно ниже температуры разложения [47]. Измеренная шероховатость поверхности полированного полистирола составляла менее 30 нм.

3. Экспериментальные результаты и обсуждения. Из-за наличия окончания оптического волокна с нарушенной симметрией выходной лазерный луч имеет сильно локализованную криволинейную форму (фотонный крючок – рис. 3а). Визуализация фотонного крючка осуществлялась с помощью

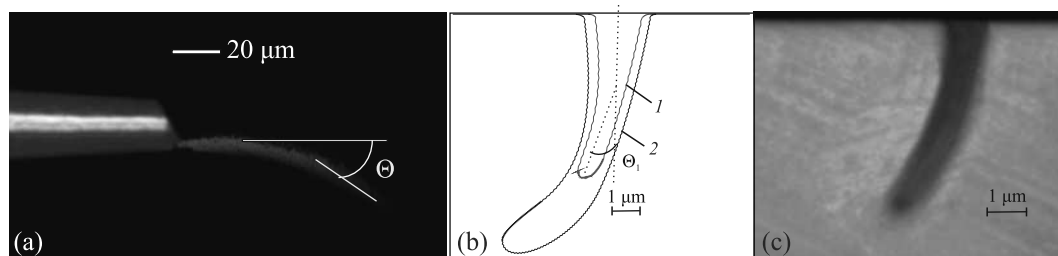


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Оптическое волокно с нарушенной симметрией окончания (рис. 1) и формируемый фотонный крючок. (б) – Профили поперечного сечения микрократеров для двух различных мощностей лазера: 1 – 40 и 2 – 80 мВт, соответственно. (с) – Фотография микрократера при мощности лазера 40 мВт

оптического сканирующего микроскопа аналогично [48], при этом все системы визуализации были расположены в темной комнате с контролируемым освещением. В данном случае эффект формирования фотонного крючка аналогичен дифракции на краю прямоугольной фазовой пластинке при освещении линейно поляризованной плоской волной [37]. Профиль области локализации лазерного излучения, формируемого окончанием конического зонда с нарушенной симметрией, измерялся с помощью сканирующего щелевого оптического профилометра [49]. Измеренные значения ключевых [37] параметров фотонного крючка составили: фокусное расстояние (расстояние от плоскости окончания оптического волокна до области с максимальной интенсивностью поля) около 15.5 мкм при угле усечения конического зонда около $\alpha = 33^\circ$, угол отклонения сфокусированного пучка $\theta = 14.8^\circ$, ширина пучка в области максимальной интенсивности поля на полувысоте составила примерно 1.6 мкм.

Связь между глубиной и формой абляционного криволинейного кратера и мощностью лазера была исследована экспериментально. Коническая часть волокна была расположена вертикально над поверхностью мишени. Полистироловая пленка была расположена на трехосном коммерчески доступном моторизованном столике, который контролируемо перемещался в трех направлениях с разрешением около 100 нм [48]. На рис. 3б показаны профили поперечного сечения микрократеров при различных мощностях лазера. Глубина и ширина кратера увеличивается при увеличении мощности лазера от 40 мВт до 80 мВт (пороговое значение мощности для получения кратера в полистироле составляет немного менее 10 мВт [50]). Время воздействия структурированного фотонного крючка, формируемого непрерывным лазерным излучением, на преграду составляло 6–8 с.

Для определения границ полученного кратера, показанного на рис. 3б, использовалась методика Канни [51]. Видно, что в разрезе кратер имеет криво-

линейную форму, причем ширина кратера и его глубина увеличиваются при увеличении мощности лазера. Так, общая глубина кратера увеличивается с 6.1 до 8.9 мкм при увеличении мощности лазера с 40 до 80 мВт. Отношения глубины кратера к входной ширине отверстия при мощности лазера 40 и 80 мВт оцениваются в 3.2 и 3.6 раза соответственно. Угол отклонения оси кратера (рис. 3б) составляет примерно $\theta_1 = 13.7^\circ$ при мощности лазера 40 мВт и $\theta_1 = 15^\circ$ при мощности лазера 80 мВт.

4. Заключение. В этой работе мы показали, как структурированные пучки типа фотонный крючок можно использовать для лазерной обработки диэлектрических материалов для получения криволинейных микрократеров. Представленный выше подход к нано- и микро- структурированию диэлектрических материалов применим при условии, что зона термического воздействия меньше кривизны кратера (пучка), поскольку за абляцию ответственно напряжение, вызванное тепловым расширением материала полимера [52]. Предложенный метод имеет большой потенциал в производстве новых материалов на полимерной основе благодаря простоте его реализации с помощью обычной лазерной системы непрерывного действия. Мы полагаем, что область применения рассмотренного эффекта будет представлять интерес в различных технологических областях, таких как обработка материалов и прецизионных фотонных компонентов.

Исследование поддержано программой развития Томского политехнического университета.

Финансирование работы. Никаких грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

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

1. Z. Lin and M. Hong, *Ultrafast Science*, Article ID **9783514**, 22 (2021).
2. Y. Jia and F. Chen, *APL Photonics* **8**, 090901 (2023).

3. И. Н. Завестовская, Квантовая электроника **40**(11), 942 (2010).
4. R. Gattass and E. Mazur, Nat. Photonics **2**, 219 (2008).
5. А. М. Шахов, А. А. Астафьев, В. А. Надточенко, Письма в ЖЭТФ **109**(5), 294 (2019).
6. K. Xu, L. Huang, and S. Xu, Optica **10**, 97 (2023).
7. A. Ghosal, O. J. Allegre, Z. Liu, and G. Jones, Results in Optics **5**, 100179 (2021).
8. I. Mirza, N. Bulgakova, J. Tomášťík, V. Michalek, O. Haderka, L. Fekete, and T. Mocek, Sci. Rep. **6**, 39133 (2016).
9. M. Jenne, D. Flamm, K. Chen, M. Schafer, M. Kumkar, and S. Nolte, Opt. Express **28**, 6552 (2020).
10. M. Sakakura, Y. Lei, L. Wang, and P. Kazansky, Light Sci. Appl. **9**, 15 (2020).
11. Y.-Y. Yu, C.-K. Chang, M.-W. Lai, L.-S. Huang, and C.-K. Lee, Appl. Opt. **50**(34), 6384 (2011).
12. G. Kontenis, D. Gailevičius, N. Jiménez, and K. Staliunas, Phys. Rev. Applied **17**, 034059 (2022).
13. H. Hidai, Y. Kuroki, S. Matsusaka, A. Chiba, and N. Morita, Precision Engineering **46**, 96 (2016).
14. A. Mathis, F. Courvoisier, L. Froehly, L. Furfaro, M. Jacquot, P. A. Lacourt, and J. M. Dudley, App. Phys. Lett. **101**, 071110 (2012).
15. F. Courvoisier, R. Stoian, and A. Couairon, Optics and Laser Technology **80**, 125 (2016).
16. F. V. Bunkin, N. A. Kirichenko, B. S. Luk'yanchuk, Phys.-Uspekhi **25**, 662 (1982).
17. С. А. Ромашевский, С. И. Ашитков, М. Б. Агранат, ТВТ **56**(4), 609 (2018).
18. D. Sohr, J. U. Thomas, and S. Skupin, Opt. Lett. **46**, 2529 (2021).
19. H. Hidai, N. Saito, S. Matsusaka, A. Chiba, and N. Morita, Appl. Phys. A **122**, 277 (2016).
20. P. Polynkin, M. Kolesik, J. V. Moloney, G. A. Siviloglou, and D. N. Christodoulides, Science **324**, 229 (2009).
21. G. A. Siviloglou, J. Broky, A. Dogariu, and D. N. Christodoulides, Phys. Rev. Lett. **99**, 213901 (2007).
22. C. Ungaro and A. Liu, Optics & Laser Technology **144**, 107398 (2021).
23. Y. Matsuoka, Y. Kizuka, and T. Inoue, Appl. Phys. A **84**, 423 (2006).
24. H. Hidai, Y. Kuroki, S. Matsusaka, A. Chiba, and N. Morita, Precision Engineering **46**, 96 (2016).
25. K. Miyakoda, K. Sunayama, K. Sakamoto, D. Tokunaga, H. Hidai, and S. Matsusaka, Precision Engineering **81**, 1 (2023).
26. I. V. Minin and O. V. Minin, Photonics **9**, 762 (2022).
27. Y. F. Lu, L. Zhang, W. D. Song, Y. W. Zheng, and B. S. Luk'yanchuk, JETP Lett. **72**(9), 457 (2000).
28. B. S. Luk'yanchuk, R. Paniagua-Dominguez, I. V. Minin, O. V. Minin, and S. Wan, Opt. Mater. Express **7**, 1820 (2017).
29. E. Mcleod and C. Arnold, Nat. Nanotechnol. **3**, 413 (2008).
30. А. А. Астафьев, А. М. Шахов, О. М. Саркисов, В. А. Надточенко, Квантовая электроника **43**(4), 361 (2013).
31. C. Qu, C. Zhu, and E. C. Kinzel, Opt. Express **28**, 39700 (2020).
32. Y. Elkarkri, X. Li, B. Zeng, Z. Lian, J. Zhou, and Y. Wang, Nanotechnology **32**, 145301 (2021).
33. S. Surdo, M. Duocastella, and A. Diaspro, Micromachines **12**, 256 (2021).
34. S. Yakunin and J. Heitz, Journal of Laser Micro/Nanoengineering **6**(3), 180 (2011).
35. L. Han, Y. Han, J. Wang, G. Gouesbet, and G. Grehan, Opt. Lett. **39**, 1585 (2014).
36. R. Pierron, J. Zelgowski, P. Pfeiffer, J. Fontaine, and S. Lecler, Opt. Lett. **42**, 2707 (2017).
37. O. V. Minin and I. V. Minin, *The Photonic Hook: From Optics to Acoustics and Plasmonics*, Springer, Cham (2021).
38. A. S. Ang, I. V. Minin, O. V. Minin, S. Sukhov, and A. S. Shalin, Sci. Rep. **8**, 2029 (2018).
39. K. Dholakia and G. D. Bruce, Nat. Photonics **13**, 229 (2019).
40. I. V. Minin, O. V. Minin, Y.-Y. Liu, V. V. Tuchin, and C.-Y. Liu, J. Biophotonics **14**(2), e202000342 (2021).
41. И. В. Минин, О. В. Минин, Патент РФ 2 803 933. Опубликовано: 22.09.2023 Бюл. # 27.
42. T. Hajj, S. Marbach, P. Pfeiffer, P. Montgomery, S. Lecler, and M. Flury, Opt. Lett. **48**, 2222 (2023).
43. H. Deng, C. Qi, X. Zhang, and L. Yuan, J. Light. Technol. **33**(12), 2486 (2015).
44. J. Petrovic, F. Lange, and D. Hohlfeld, J. Neural Eng. **20**, 036007 (2023).
45. S.-S. Wang, J. Fu, M. Qiu, K.-J. Huang, Z. Ma, and L.-M. Tong, Opt. Express **16**, 8887 (2008).
46. N. Sultanova, S. Kasarova, and I. Nikolov, Acta Phys. Pol. A **116**, 585 (2009).
47. R. S. Kappes, F. Schönfeld, C. Li, A. A. Golriz, M. Nagel, T. Lippert, H.-J. Butt, and J. S. Gutmann, SpringerPlus **3**, 489 (2014).
48. I. V. Minin, O. V. Minin, C.-Y. Liu, H.-D. Wei, and Y. Geints, Opt. Lett. **45**, 4899 (2020).
49. M. Mylonakis, S. Pandey, K. G. Mavrikakis, G. Drougakis, G. Vasilakis, D. G. Papazoglou, and W. von Klitzing, Appl. Opt. **57**, 9863 (2018).
50. K. S. Tiaw, M. H. Hong, S. H. Teoh, J. Alloys Compd. **449**(1-2), 228 (2008).
51. P. Bao, L. Zhang, and X. Wu, IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell. **27**, 1485 (2005).
52. S. Ravi-Kumar, B. Lies, H. Lyu, and H. Qin, Procedia Manufacturing **34**, 316 (2019).

Лазерный перенос апконвертирующих наночастиц

В. С. Жигарков¹⁾, В. И. Юсупов, Е. В. Хайдуков

Институт фотонных технологий, Курчатовский комплекс кристаллографии и фотоники,
Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 июня 2024 г.

После переработки 19 июня 2024 г.

Принята к публикации 20 июня 2024 г.

Предложен метод переноса апконвертирующих наночастиц (АН) вида ядро/оболочка $\text{NaYF}_4:\text{Yb}^{3+}\text{Tm}^{3+}/\text{NaYF}_4$ со средним размером 30 нм посредством лазерно-индуцированного прямого переноса. Метод обеспечивает высокое пространственное разрешение за счет создания на донорной подложке структуры “сэндвича”: для надежной фиксации наночастицы располагаются между слоями золота с толщинами 50 и 20 нм. Перенос апконвертирующих наночастиц реализован при фокусировании наносекундного лазерного излучения в пятно с диаметром ~ 30 мкм и при оптимальных энергиях в импульсе 8.5–25 мкДж. Показано, что, несмотря на высокие скачки температуры $\Delta T > 1000$ К и давления $\Delta P > 150$ МПа, апконвертирующие наночастицы полностью сохранили свои фотолюминесцентные характеристики.

DOI: 10.31857/S123456782414012X, EDN: YKYZTJ

Введение. В настоящее время лазерная печать, основанная на технологии прямого лазерно-индуцированного переноса (LIFT), находит применение в различных областях науки, техники, микробиологии и медицины. Этот подход оказался очень привлекательным для изготовления трехмерных объектов на макроуровне, аддитивного нанопроизводства, печати широкого спектра материалов, биоматериалов и функциональных микроустройств [1–3], инженерии микробных систем [4–6].

Перспективным является лазерная печать фотолюминесцентными наноматериалами, которые получили широкое распространение из-за обеспечения “обратной связи” с нанообъектом за счет фотолюминесцентного отклика [7]. Особым классом в ряду фотолюминесцентных материалов являются апконвертирующие наночастицы (АН), обладающие антистоксовой люминесценцией, благодаря нелинейному оптическому процессу преобразования света с повышением частоты испускаемых квантов [8].

Как правило, АН содержит ионы лантанидов двух типов, введенных в кристаллическую матрицу. Ион первого типа, способен эффективно поглотить инфракрасный (ИК) фотон и перейти из основного в возбужденное метастабильное состояние. Благодаря безызлучательному резонансному обмену энергией между ионом сенсibilизатором и ионом второго типа – активатором в пределах одной кристаллической наночастицы происходит последовательная ак-

кумуляция энергии фотонов накачки с последующим испусканием квантов с увеличенной частотой. Эффективность такого процесса определяется кристаллической матрицей, концентрацией ионов в матрице, перекрытием спектров испускания иона сенсibilизатора и поглощения иона активатора [8]. Одним из наиболее эффективных сенсibilизаторов в АН является ион Yb^{3+} , обладающий большим сечением поглощения в окрестности длин волн 970–980 нм, в качестве активатора выбирают ионы с “лестничной” схемой метастабильных состояний – Er^{3+} , Tm^{3+} , Ho^{3+} и Nd^{3+} [9].

Благодаря фотолюминесцентным свойствам, апконвертирующие наноматериалы находят применение в фотонике, что позволяет создавать различные устройства на их основе и развивать новые технологии, а именно: 3D-дисплеи [10, 11], наносенсоры [12, 13], низкотоксичные высоколюминесцентные бионанозонды [14], антиконтрафактные метки [15], солнечные элементы [16], 3D-печать [17, 18], многофотонная апконверсионная микроскопия сверхвысокого разрешения [19].

Для усиления фотолюминесценции АН сочетают с плазмонным наноструктурам [20, 21]. Плазмонный резонанс может влиять на три различных физических процесса в апконвертирующих материалах: поглощение света ионом сенсibilизатором, передачу энергии от сенсibilизатора к активатору и эмиссию света ионом активатором [22], что позволяет поднять эффективность фотолюминесценции АН от одного [23] до трех порядков [24].

¹⁾e-mail: vzhigarkov@gmail.com

Цель работы заключалась в изучении возможности печати АН с использованием наносекундного волоконного лазерного источника и проверки сохранения функциональных характеристик АН после их переноса.

Материалы и методы. Синтез апконвертирующих наночастиц. Для синтеза АН $\text{NaYF}_4:\text{Yb}^{3+}, \text{Tm}^{3+}$, к смеси трех оксидов Y_2O_3 , Yb_2O_3 , Tm_2O_3 при нагревании добавляли трифторуксусную кислоту и дистиллированную воду для получения $(\text{CF}_3\text{COO})_3\text{Y}$, $(\text{CF}_3\text{COO})_3\text{Yb}$ и $(\text{CF}_3\text{COO})_3\text{Tm}$. Для получения наночастиц в β -фазе, обеспечивающей наибольший квантовый выход апконверсии [9], добавляли 2 эквивалента трифторацетата натрия, а реакцию проводили в смеси высококипящих растворителей, а именно: 1-октадецен и олеиновая кислота, при температуре $\sim 320^\circ\text{C}$ в атмосфере аргона. Смесь трифторацетатов помещалась в трехгорловую колбу. Время синтеза составляло 25 минут. В результате были получены частицы, покрытые олеиновой кислотой, которые легко диспергируются в неполярных органических растворителях.

Наночастицы отделяли от реакционного раствора центрифугированием в течение 10 мин. Далее по схожей методологии покрывали наночастицы неактивной оболочкой NaYF_4 без добавления активных ионов, толщина которой составляла ~ 2.5 нм. В результате получали наночастицы со структурой ядро/оболочка $\text{NaYF}_4:\text{Yb}^{3+}\text{Tm}^{3+}/\text{NaYF}_4$ со средним размером 30 нм (см. рис. 1). Расчетная концентрация ионов в активном ядре наночастицы составляла 18 % и 0.8 % для Yb^{3+} и Tm^{3+} , соответственно.

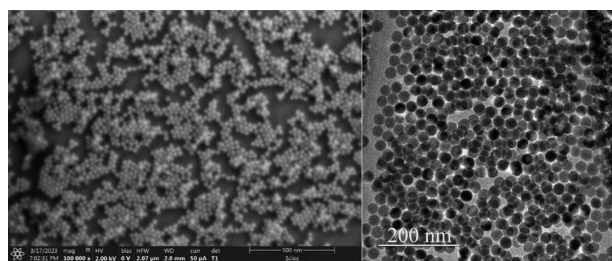


Рис. 1. SEM и TEM фотография наночастиц со структурой ядро/оболочка $\text{NaYF}_4:\text{Yb}^{3+}\text{Tm}^{3+}/\text{NaYF}_4$

Донорная подложка. В качестве донорной подложки использовались прозрачные предметные стекла размером $26 \times 76 \times 1$ мм (Menzel Glaser, Германия). С помощью высоковакуумной установки Leica EM ACE600 (Leica Mikrosysteme GmbH, Австрия) методом магнетронного распыления на поверхность стекол наносился 50 нм слой золота. Далее посредством вытягивания из дисперсии наночастиц в гек-

сане на слой золота донорной подложки наносились АН. Однако, из-за слабой адгезии золотой пленки к поверхности стеклянной подложки [25], полученная подложка становилась крайне чувствительна к любому механическому воздействию. Поэтому в ряде случаев на поверхность стекла предварительно напылялся слой титана толщиной 10 нм.

Предварительные эксперименты показали, что подготовленные по описанной выше процедуре донорные подложки плохо подходили для решения поставленной задачи. Проблема была связана со слабой адгезией АН к поверхности золотой пленки, что приводило к их постепенному осыпанию. Кроме этого, при лазерном переносе с использованием такой донорной подложки происходило беспорядочное рассеивание наночастиц с поверхности, существенно превышающей по площади сечение лазерного пятна на подложке. Можно предположить, что это происходило из-за слабой адгезии АН с золотым подслоем, приводящим к их осыпанию при распространении акустической волны из области лазерного воздействия. Поэтому для лучшего закрепления АН сразу после их нанесения на подложку поверх наносился еще один слой золота толщиной 20 нм. Таким образом, в экспериментах использовались структуры “сэндвича” на донорной подложке, а именно: $\text{Au}_{50}/\text{АН}/\text{Au}_{20}$ (рис. 2а) и $\text{Ti}_{10}/\text{Au}_{50}/\text{АН}/\text{Au}_{20}$.

Лазерный перенос апконвертирующих наночастиц. Для переноса АН с поверхности донорного стекла на акцепторную поверхность использовалась лазерная система с импульсным лазером на волокне (ООО НТО “ИРЭ-Полус”, Россия) YLPM-1-4x200-20-20, с $\lambda = 1064$ нм, $\tau = 8$ нс и параметром качества пучка $M^2 < 1.3$. Диапазон энергии в импульсе в экспериментах составлял 8.5–65 мкДж при диаметре лазерного пятна в фокусе ~ 30 мкм (рис. 2б). Управление излучением осуществлялось посредством двухзеркальной гальваносканирующей головки LscanH-10-1064 (АтекоТМ, Россия), снабженной F-theta объективом SL-1064-110-160 (Ronar-Smith, Сингапур) с фокусным расстоянием 160 мм.

В качестве акцепторных подложек использовались пластинки из кремния или покровного стекла. Они размещались на моторизованной платформе. Расстояние между акцепторной пластиной и донорной подложкой варьировалось микровинтом от 0 до 500 мкм.

Наночастицы и микроструктуры, полученные после переноса, изучались посредством эпилюминесцентного инвертированного микроскопа, реализованного на базе оптического микроскопа Motiс AE31E (Motiс, Китай), с возможностью возбуждения и ре-

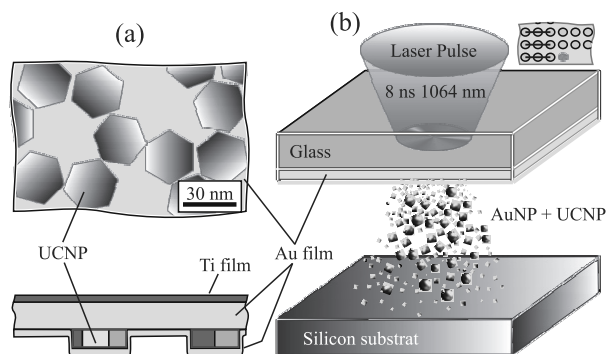


Рис. 2. (Цветной онлайн) Схема размещения АН (UCNPs) на донорной подложке (а) и схема эксперимента по лазерно-индуцированному переносу золотых наночастиц с АН на акцепторную подложку из кремния (б)

гистрации сигнала от АН, а также растрового электронного микроскопа JEOL JCM-6000 PLUS (JEOL Ltd., Япония) и растрового электронно-ионного микроскопа Helios Nanolab 600i (FEI, США). Электронные микроскопы снабжены блоками энергодисперсионного детектора (EDS), посредством которого проводился EDX-анализ.

Результаты и обсуждение. На рисунке 3 представлены РЭМ-изображения донорной подложки после лазерного воздействия. С увеличением энергии лазерного импульса размер отверстий в пленке Au постепенно увеличивается. Определенный по отверстиям донорной подложки порог абляции “сэндвич”-структуры составил 7.5 мкДж ($F = 1.0 \pm 0.1 \text{ Дж/см}^2$). На поверхности подложки повсеместно, в том числе и на самом краю сформированных отверстий в пленке Au (рис. 3с), выделяются скопления АН.

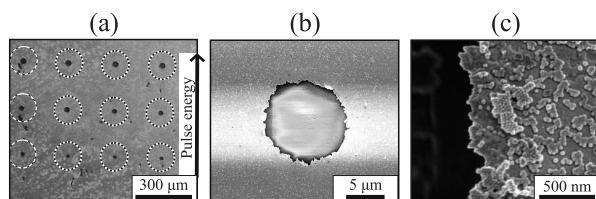


Рис. 3. РЭМ-изображение поверхности донорной подложки после прямого лазерно-индуцированного переноса при энергии импульса $E = 12, 16$ и 20 мкДж (а) и ее увеличенные фрагменты с $E = 12 \text{ мкДж}$ (б), (с). На рисунке 2а области с отверстиями в пленке Au выделены пунктирными окружностями. Везде на поверхности донорной подложки более светлым тоном выделяются скопления АН

На рисунке 4 приведено изображение поверхности акцепторной подложки после лазерного переноса

са наночастиц с энергией импульса в диапазоне от $E = 8.5\text{--}25 \text{ мкДж}$. При $E = 8.5 \text{ мкДж}$ переноса наночастиц не наблюдается. Видно, что далее с увеличением энергии импульса, количество перенесенного на поверхность кремниевой пластины материала в среднем увеличивается, при этом увеличивается также разброс переносимого материала.

На увеличенном фрагменте (рис. 4б) видно, что переносятся как наночастицы, так и достаточно крупные микрочастицы. Эти микрочастицы, как следует из EDX-анализа (рис. 4с), перед столкновением с акцепторной пластинкой были микрокаплями расплавленного золота: на EDX-спектре, помимо кремния, отчетливо выделяется линия Au и Ti.

С помощью EDX-анализа в некоторых случаях удалось установить, что на поверхности акцепторной кремниевой пластинки и перенесенных золотых микрочастиц присутствуют АН. На рисунке 4д представлено РЭМ-изображение одной такой микрочастицы диаметром $13 \pm 1 \text{ мкм}$, на выделенном участке поверхности которой массовая доля элемента Тм составила $2.10 \pm 0.17 \%$.

Также наличие АН в перенесенном материале удалось визуализировать при совмещении светлопольных, и фотолуминесцентных изображений (регистрация в диапазоне $400\text{--}850 \text{ нм}$) акцепторной подложки при возбуждении на 975 нм (рис. 5).

Светлопольное микроскопическое изображение (рис. 5а) показывает наличие микрочастиц на поверхности акцепторной подложки. Микрофотография (рис. 5б), полученная в люминесцентном свете, показывает, что в результате лазерной печати были также перенесены АН и, по крайней мере, часть перенесенных АН сохранила свои фотолуминесцентные свойства.

Для сравнения светлопольного изображения и аналогичного изображения поверхности акцепторной пластинки в люминесцентном свете была проведена цифровая обработка. Она позволила выделить микрочастицы ниже (для светлопольного изображения) и выше (для люминесцентного изображения) определенного порога яркости пикселей. Затем полученные матрицы сравнивались и на них цветом выделялись соответствующие микрочастицам пиксели, которые присутствовали только на светлопольной, только на люминесцентной и на обеих микрофотографиях. На полученном комбинированном изображении (рис. 5с) отчетливо просматриваются все три цвета. То есть некоторые микрочастицы или их участки регистрируются и в светлопольной, и в люминесцентной микроскопии одновременно. Однако, при этом есть такие, которые видны либо только

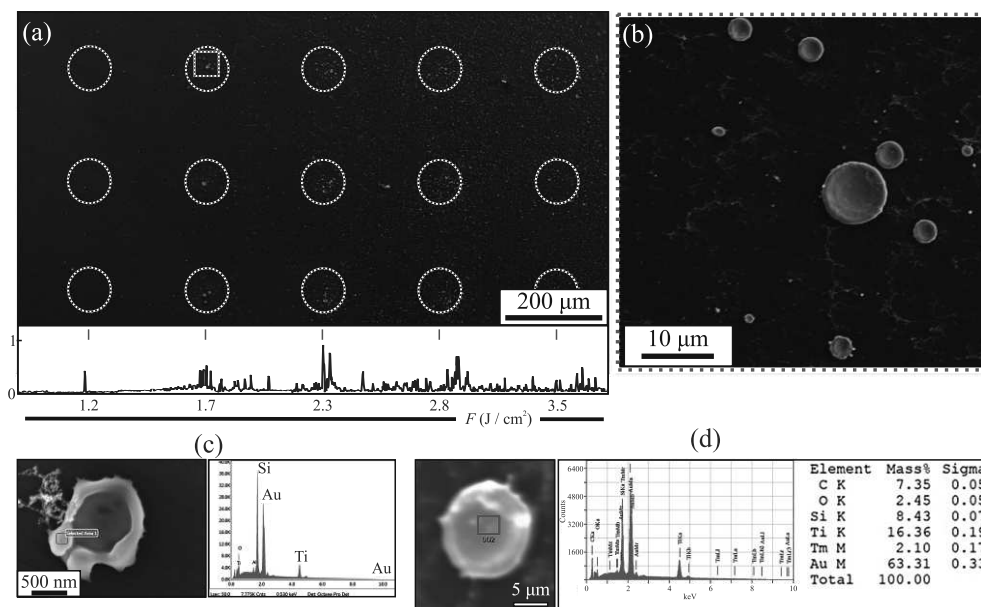


Рис. 4. (Цветной онлайн) РЭМ-изображение поверхности кремниевой пластинки после прямого лазерно-индуцированного переноса с поверхности донорной подложки со структурой $\text{Ti}_{10}/\text{Au}_{50}/\text{АН}/\text{Au}_{20}$ и результат EDX-анализа ее участков. (а) – РЭМ-изображение при энергии импульса от $E = 8.5\text{--}25\text{ мкДж}$ ($F = 1.2\text{--}3.5\text{ Дж/см}^2$). Области с перенесенными наночастицами выделены белыми пунктирными окружностями. На вставке приведен график распределения осредненных по ширине 10 мкм значений яркости пикселей (от 0 до 1) вдоль линии, проходящей через предполагаемые центры областей переноса. Красными стрелками отмечены положения центров. (б) – Увеличенный фрагмент поверхности с $E = 12\text{ мкДж}$ ($F = 1.7\text{ Дж/см}^2$), выделенный на рис. 4а зеленым пунктирным прямоугольником. (с), (д) – РЭМ-изображения микрочастиц и результаты EDX-анализа их участков, отмеченных красным прямоугольником. По EDX-спектрам на рис. 4д регистрируется наличие АН

в проходящем, либо только в люминесцентном свете. Наличие микрочастиц, видимых только при светлопольной микроскопии, может свидетельствовать о том, что АН на поверхности данных микрочастиц отсутствуют, а также что АН в этих местах утратили или сильно ухудшили свои люминесцентные свойства.

Для демонстрации сохранения функциональности АН было проведено сравнение спектров фотolumинесценции исходных наночастиц, использованных для нанесения на донорную подложку, и наночастиц на поверхности акцепторной подложки (рис. 5д). Из этого рисунка видно, что соотношение интенсивности между линиями люминесценции для исходных и перенесенных АН полностью сохранилось. Следует отметить, что соотношение в линиях люминесценции в АН крайне чувствительно к изменению морфологии и химического состава наночастиц [9]. Поскольку это соотношение сохранилось, можно говорить о конгруэнтном переносе АН лазерными импульсами при используемом методе.

Дополнительно на донорной подложке была сформирована надпись “RUS” при плотном контакте между донорной подложкой и акцепторной стеклянкой

пластинкой с целью визуализации возможности микрореперной конвертирующими наночастицами и проверки сохранения функциональных характеристик (см. рис. 5е). Диапазон энергий в этом случае был 15–65 мкДж (шаг 10 мкДж). При освещении напечатанной структуры лазерным излучением с длиной волны 975 нм, возбуждающим люминесценцию АН, визуализируется их синяя люминесценция с контурами, повторяющими форму перенесенного объекта. Стоит также отметить, что при превышении энергии в импульсе $\sim 25\text{ мкДж}$, качество напечатанного изображения резко снижалось из-за рассеивания наночастиц с поверхности донорной подложки (2 и 3 строка на рис. 5е), поэтому рабочий диапазон энергии соответствовал 8.5–25 мкДж.

При лазерном переносе АН подвергаются значительным импульсным воздействиям температуры ΔT и давления ΔP . Для оценки величины ΔT и ΔP отверстия с радиусом $R_0 = 5.3 \pm 0.3\text{ мкм}$, представленного на рис. 3б, необходимо обозначить, что отрыв золота произошел по границе его плавления. Скачок температуры на краю отверстия $\Delta T(r = R_0) = T_m - T_0$, где $T_m = 1337\text{ К}$ – температура плавления золота, $T_0 \sim 300\text{ К}$ – ком-

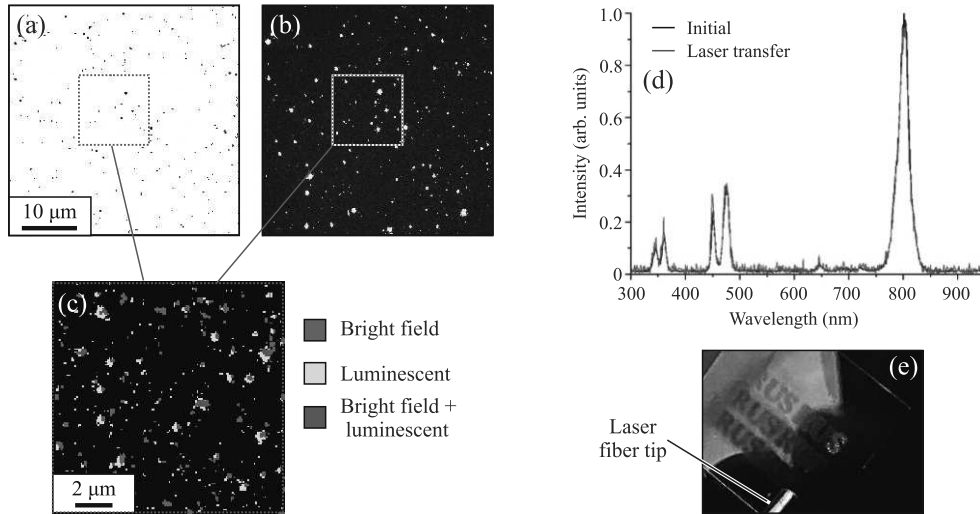


Рис. 5. (Цветной онлайн) Изображения акцепторной поверхности после лазерного переноса наночастиц с $E = 8.5$ мкДж, полученные посредством светлопольной (a) и фотолюминесцентной (b) микроскопии. (c) – наложение участка изображений (a) и (b). Цветами выделены пиксели, которые соответствуют частицам только на светлопольной (синий), только на люминесцентной (желтый) и на обеих (красный) микроскопиях. (d) – сравнение нормированных спектров фотолюминесценции АН при возбуждении 975 нм до и после лазерного переноса при энергии 25 мкДж. (e) – Фотография изображения структуры RUS, напечатанной на покровном стекле. При освещении структуры (полученной при энергии в импульсе 25 мкДж) лазерным излучением с длиной волны 975 нм визуализируется синяя линия люминесценции АН

натная температура. По этой реперной точке можно реконструировать весь профиль максимальной температуры в области лазерного пятна [26].

Величину возникшего скачка давления на краю отверстия в золотой пленке (рис. 3b) можно оценить в условиях “длинного импульса” (поскольку $ct \approx 16$ мкм $\gg d = 50$ нм, где $c \approx 2$ км/с – скорость звука в золоте, $\tau = 8$ нс – длительность импульса, d – толщина пленки золота) [27]:

$$\Delta P \approx \frac{\Gamma \cdot A \cdot F_0(r)}{ct} = \frac{\Gamma}{ct} \cdot \frac{A \cdot 2E}{\pi \omega_0^2} e^{-\frac{2R_0^2}{\omega_0^2}} \approx 150 \text{ МПа},$$

где $\Gamma \approx 3$ – параметр Грюнайзена для золота [28], $A \cdot F_0(r)$ – пиковая поверхностная плотность поглощенной энергии, $A \sim 0.03$ [29], $E = 12$ мкДж – энергия в импульсе. Полученная величина скачка давления по порядку величины соответствует и несколько превышает измеренную величину скачка давления в ударной волне при лазерной печати [30]. Использование формулы для оценки давления в этом случае вполне оправдано. Если бы в области лазерного воздействия развивались очень высокие температуры, близкие к критическим, необходимо было бы учитывать взрывное кипение материала с образованием сильно сжатого пара и жидких микрокапель (см., например, [31]). Однако, используя расчет из [26], можно получить, что для приведенного на рис. 3b

случая температура в центре пятна во время действия лазерного импульса достигает лишь ~ 1630 К, а это много меньше критической температуры для Au $T_c \sim 7400$ К.

Таким образом, перенесенные АН во время действия лазерного импульса подверглись достаточно сильным импульсным температурным ($\Delta T > 1000$ К) и динамическим нагрузкам ($\Delta P > 150$ МПа), и при этом сохранили свои функциональные характеристики. Наличие АН непосредственно на краю отверстия в пленке Au донорной подложки (рис. 3c) говорит о прочности их закрепления на поверхности подложки. Это важно, поскольку показывает, что предложенная конструкция донорной подложки со структурой в виде “сэндвича” обеспечивает локализацию переносимой области до размера пятна абляции (~ 10 мкм для $E = 12$ мкДж, как на рис. 3), что повышает пространственное разрешение метода.

Закключение. Разработан метод переноса АН, обеспечивающий высокое пространственное разрешение за счет создания на донорной подложке структуры в виде “сэндвича”, состоящей из чередования Au₅₀/АН/Au₂₀ или Ti₁₀/Au₅₀/АН/Au₂₀. Эта конструкция позволила обеспечить надежную фиксацию наночастиц на золотой пленке донорной подложки. Продемонстрирована возможность прецизи-

онного переноса АН в технологии печати с использованием сравнительно дешевых волоконных лазерных источников с наносекундной длительностью импульса. Оценены скачки температуры и давления, которые испытывали АН при лазерном переносе. Предложенный подход обеспечивает возможность осуществления лазерной печати АН с полным сохранением функциональных характеристик АН.

Финансирование работы. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации: Соглашение #075-15-2023-324 в части расширения сферы технологии ЛИМС и в рамках выполнения государственного задания НИЦ “Курчатовский институт” в части оценок физических факторов при лазерной биопечати и использования оборудования ресурсных центров.

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

1. Q. Li, D. Grojo, A.-P. Alloncle, B. Chichkov, and P. Delaporte, *Nanophotonics* **8**, 27 (2018).
2. L. Koch, M. Gruene, C. Unger, and B. Chichkov, *Curr. Pharm. Biotechnol.* **14**, 91 (2013).
3. A. Nastulyavichus, S. Kudryashov, S. Shelygina, N. Smirnov, P. Pakholchuk, I. Saraeva, D. Zayarny, E. Ulturgasheva, D. Khmelenin, O. Emelyanova, V. Pryakhina, N. Pokryshkin, E. Kuzmin, A. Gorevoy, P. H. Minh, and P. van Duong, *Photonics* **11**, 119 (2024).
4. V. I. Yusupov, M. V. Gorlenko, V. S. Cheptsov, N. V. Minaev, E. S. Churbanova, V. S. Zhigarkov, E. A. Chutko, S. A. Evlashin, B. N. Chichkov, and V. N. Bagratashvili, *Laser Phys. Lett.* **15**, (2018).
5. V. Cheptsov, V. Zhigarkov, I. Maximova, N. Minaev, and V. Yusupov, *World J. Microbiol. Biotechnol.* **39**, (2023).
6. M. V. Gorlenko, E. A. Chutko, E. S. Churbanova, N. V. Minaev, K. I. Kachesov, L. V. Lysak, S. A. Evlashin, V. S. Cheptsov, A. O. Rybaltovskiy, V. I. Yusupov, V. S. Zhigarkov, G. A. Davydova, B. N. Chichkov, and V. N. Bagratashvili, *J. Biol. Eng.* **12**, (2018).
7. А. И. Аржанов, А. О. Савостьянов, К. А. Магарян, К. Р. Каримуллин, and А. В. Наумов, *Photonics Russ.* **16**, 96 (2022).
8. A. Nadort, J. Zhao, and E. M. Goldys, *Nanoscale* **8**, 13099 (2016).
9. Д. Н. Каримов, П. А. Демина, А. В. Кошелев, В. В. Рочева, А. В. Сокоиков, А. Н. Генералова, В. П. Зубов, Е. В. Хайдуков, М. В. Ковальчук, В. Я. Панченко, *Российские нанотехнологии* **15**, 699 (2020).
10. E. Downing, L. Hesselink, J. Ralston, and R. Macfarlane, *Science* **273**, 1185 (1996).
11. R. Deng, F. Qin, R. Chen, W. Huang, M. Hong, and X. Liu, *Nat. Nanotechnol.* **10**, 237 (2015).
12. M. Kumar and P. Zhang, *Biosens. Bioelectron.* **25**, 2431 (2010).
13. K. K. Green, J. Wirth, and S. F. Lim, *Sci. Rep.* **7**, 762 (2017).
14. А. Г. Шмелев, В. Г. Никифоров, Д. К. Жарков, В. В. Андрианов, Л. Н. Муранова, А. В. Леонтьев, Х. Л. Гайнутдинов, В. С. Лобков, М. Х. Алькатани, Ф. Р. Хеммер, *Известия Российской академии наук. Серия физическая* **84**, 1696 (2020).
15. J. M. Meruga, W. M. Cross, P. Stanley May, Q. Luu, G. A. Crawford, and J. J. Kellar, *Nanotechnology* **23**, 395201 (2012).
16. S. Hao, Y. Shang, D. Li, H. Agren, C. Yang, and G. Chen, *Nanoscale* **9**, 6711 (2017).
17. V. V. Rocheva, A. V. Koroleva, A. G. Savelyev, K. V. Khaydukov, A. N. Generalova, A. V. Nechaev, A. E. Guller, V. A. Semchishen, B. N. Chichkov, and E. V. Khaydukov, *Sci. Rep.* **8**, 3663 (2018).
18. П. А. Демина, К. В. Хайдуков, В. В. Рочева, Р. А. Акасов, А. Н. Генералова, and Е. В. Хайдуков, *Photonics Russ.* **16**, 600 (2022).
19. C. Chen, F. Wang, S. Wen, Q. P. Su, M. C. L. Wu, Y. Liu, B. Wang, D. Li, X. Shan, M. Kianinia, I. Aharonovich, M. Toth, S. P. Jackson, P. Xi, and D. Jin, *Nat. Commun.* **9**, 3290 (2018).
20. W. Park, D. Lu, and S. Ahn, *Chem. Soc. Rev.* **44**, 2940 (2015).
21. W. Gao, S. Han, B. Wang, Z. Sun, Y. Lu, Q. Han, X. Yan, J. Liu, and J. Dong, *J. Alloys Compd.* **900**, 163493 (2022).
22. A. N. Generalova, B. N. Chichkov, and E. V. Khaydukov, *Adv. Colloid Interface Sci.* **245**, 1 (2017).
23. Y. Liu, J. Zhou, S. Wen, F. Wang, H. Wu, Q. Chen, C. Zuo, and D. Jin, *Nano Lett.* **23**, 5514 (2023).
24. A. Das, C. Mao, S. Cho, K. Kim, and W. Park, *Nat. Commun.* **9**, 4828 (2018).
25. V. S. Zhigarkov, N. V. Minaev, and V. I. Yusupov, *Quantum Electron.* **50**, 1134 (2020).
26. V. I. Yusupov and V. S. Zhigarkov, *Thin Solid Films* **794**, 140296 (2024).
27. D. Kim, M. Ye, and C. P. Grigoropoulos, *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **67**, 169 (1998).
28. D. Ashwini, V. S. Sharma, and K. Sunil, *Eur. Phys. J. Plus* **137**, 545 (2022).
29. V. I. Yusupov, V. S. Zhigar'kov, E. S. Churbanova, E. A. Chutko, S. A. Evlashin, M. V. Gorlenko, V. S. Cheptsov, N. V. Minaev, and V. N. Bagratashvili, *Quantum Electron.* **47**, 1158 (2017).
30. E. Mareev, N. Minaev, V. Zhigarkov, and V. Yusupov, *Photonics* **8**, 374 (2021).
31. S. I. Kudryashov and S. D. Allen, *J. Appl. Phys.* **100**, (2006).

Содержание

Том 120, выпуск 1

Поля, частицы, ядра

- Kiselev Yu.T.** First observation of universality of short range nucleon correlations in the production of strange mesons 3

Оптика, лазерная физика

- Савицкий И.В., Глек П.Б., Алиев Р.М., Степанов Е.А., Воронин А.А., Ланин А.А., Федотов А.Б.** Фазочувствительная плазменная нелинейность, управляемая предельно короткими импульсами 5
- Сафроненков Д.А., Китаева Г.Х.** Измерение корреляций в поле параметрического рассеяния света с помощью аналоговых детекторов 11
- Кулик С.П., Молотков С.Н.** Интерференция Hong-Ou-Mandel в квантовой оптике, моногамия запутанности, неортогональность, недоверенные узлы 17
- Юдин В.И., Прудников О.Н., Тайченачев А.В., Басалаев М.Ю., Пальчиков В.Г., Багаев С.Н.** Теория композитных рамсеевских последовательностей радиочастотных импульсов вне рамок резонансного приближения 26
- Цыганков Е.А., Чучелов Д.С., Васьковская М.И., Зибров С.А., Васильев В.В., Величанский В.Л.** “Асимметрия ветвления” резонанса когерентного пленения населенностей 32

Конденсированное состояние

- Мартовицкий В.П., Никитин М.В., Покровский В.Я.** Спинодальный распад висконов NbS_3 с волнами зарядовой плотности 37
- Кузьмин В.И., Коршунов М.М., Николаев С.В., Овчинникова Т.М., Овчинников С.Г.** Взаимосвязь концентрационных зависимостей спиновой восприимчивости и электронной структуры в купратах 45
- Pimentel D.P.** Structural and magnetic transformations from CuCl to $\text{Cu}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ induced by H_2O and CuCl_2 49
- Аксенов С.В.** Особенности отклика майорановских квазичастиц в сверхпроводящих проволоках (Миниобзор) 51

Методы теоретической физики

- Миронов А., Орешина А., Пополитов А.** Модели β -WLZZ напрямую из интегралов β -ансамблей 62

Биофизика

Сараева И.Н., Заярный Д.А., Настулявичус А.Н., Толордава Э.Р., Ултургашева Е.В., Крикунова П.В., Кудряшов С.И. Фотоэлектрическая природа антибактериальной активности нанокompозита ZnO/Cu	66
--	----

Содержание

Том 120, выпуск 2

Поля, частицы, ядра

Дремин И.М., Д.О.Чернышов Рождение позитронов космическими лучами	79
---	----

Астрофизика и космология

Ерошенко Ю.Н., Лукаш В.Н., Михеева Е.В., Пилипенко С.В., Ткачев М.В. Свойства центральных областей гало темной материи в модели с бампом в спектре мощности возмущений плотности	83
--	----

Оптика, лазерная физика

Тарасевич Е.А., Гладуш М.Г. Возможности спектроскопии пробного поля для определения структуры возбужденных состояний в кооперативной системе двух органических молекул	91
Рубан В.П. Стабилизация оптических пузырей вблизи оси винтового световода	104

Плазма, гидро- и газодинамика

Паркевич Е.В., Шпаков К.В., Родионов А.А., Байдин И.С., Болотов Я.К., Огинов А.В. Пространственно-временная локализация областей эмиссии рентгеновского излучения в протяженном высоковольтном разряде	111
Летунов А.Ю., Лисица В.С., Лобода П.А., Новиков А.А. Учет нестатичности ионного микрополя на основе теории марковских процессов при описании штатковского уширения спектральных линий в плазме	118

Конденсированное состояние

Темная О.С., Никитов С.А. Перекачка энергии между связанными планарными магнанными волноводами вблизи особой точки	125
Кузьмичев С.А., Морозов И.В., Шилов А.И., Рахманов Е.О., Кузьмичева Т.Е. Эволюция сверхпроводящего параметра порядка пниктидов $\text{Na}(\text{Fe}, \text{Co})\text{As}$ вдоль фазовой диаграммы допирования	130
Горлова И.Г., Зыбцев С.Г., Покровский В.Я., Никонов С.А., Зайцев-Зотов С.В., Титов А.Н. Логарифмическая релаксация фотопроводимости квазиодномерного полупроводника TiS_3 ..	138
Павлов Н.С., Шеин И.Р., Некрасов И.А. Каскад фазовых переходов под давлением в BaMn_2P_2 и BaMn_2As_2	146

Методы теоретической физики

Минин О.В., Минин И.В. Экспериментальная демонстрация микрообработки поверхности полистирола с использованием фотонного крючка	152
--	-----

Жигарьков В.С., Юсупов В.И., Хайдуков Е.В. Лазерный перенос алконвертирующих наночастиц	157
--	-----