

ISSN 0370-274X

Том 120, Выпуск 9–10

Ноябрь 2024



Письма  
в  
ЖУРНАЛ  
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ  
и  
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ  
ФИЗИКИ



**Р О С С И Й С К А Я А К А Д Е М И Я Н А У К**

**П И С Ъ М А  
В  
ЖУРНАЛ  
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ  
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ**

**том 120**

Выпуск 9

10 ноября 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 *I. B. Подынглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

Web-страница <http://www.jetletters.ru>

*Devoted to memory of Alexei Alexandrovich Starobinsky*  
**Schwinger vs Unruh**

G. E. Volovik<sup>1)</sup>

*Low Temperature Laboratory, Aalto University, P.O. Box 15100, FI-00076 Aalto, Finland*

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

Submitted 3 September 2024

Resubmitted 5 September 2024

Accepted 23 September 2024

It is shown that the temperatures which characterise the Unruh effect, the Gibbons–Hawking radiation from the de Sitter cosmological horizon and the Hawking radiation from the black hole horizon acquire the extra factor 2 compared with their traditional values. The reason for that is the coherence of different processes. The combination of the coherent processes also allows us to make the connection between the Schwinger pair production and the Unruh effect.

DOI: 10.31857/S0370274X24110014, EDN: PBFIOH

There were many discussions concerning the problem with a factor 2 in the temperature of Hawking radiation, see, e.g., [1, 2]. The doubling of the Gibbons–Hawking temperature was also discussed for the de Sitter expansion [3]. Since the Schwinger pair creation bears some features of the thermal radiation, one may also expect the factor 2 problem.

The Schwinger pair creation [4, 5] of particles with mass  $M$  and charges  $\pm q$  in electric field  $\mathcal{E}$  per unit volume per unit time is given by:

$$\Gamma^{\text{Schw}}(M) = \frac{dW^{\text{Schw}}}{dt} = \frac{q^2 \mathcal{E}^2}{(2\pi)^3} \exp\left(-\frac{\pi M^2}{q\mathcal{E}}\right). \quad (1)$$

Since  $a = q\mathcal{E}/M$  corresponds to the acceleration of a charged particle, there were attempts to connect the Schwinger mechanism with the Unruh effect [6], see [7–10] and references therein.

If one tries to make the direct analogy between these processes, this is already problematic. The original state is the vacuum in the constant electric field. Being the vacuum it does not provide any physical acceleration. Acceleration in electric field appears only in the presence of a charged particle. That is why one can try to find the situation, when the two effects are physically connected. The connection may arise if we split the pair creation in several steps. In the first step the pair of particles with masses  $M$  are created by Schwinger mechanism. Then the created particles with positive and negative charges are accelerated by electric fields and they play the role of two Unruh–deWitt detectors. If due to the acceler-

ation the mass of each detector is increased by  $m$ , the total process is equivalent to the pure Schwinger effect of creation of particles with masses  $M + m$ :

$$\Gamma^{\text{Schw}}(M + m) = \Gamma^{\text{Schw}}(M) \Gamma_+^{\text{Unruh}}(m) \Gamma_-^{\text{Unruh}}(m). \quad (2)$$

Each of the two Unruh processes is governed by the temperature  $\tilde{T}_U$ , which is twice the Unruh temperature:

$$\Gamma_{\pm}^{\text{Unruh}}(m) = \exp\left(-\frac{m}{\tilde{T}_U}\right), \quad \tilde{T}_U = \frac{a}{\pi} = 2T_U. \quad (3)$$

The coherence of processes (or co-tunneling) plays an important role in temperature doubling. A similar temperature doubling occurs in the de Sitter Universe. According to [3] the comoving observer perceives the de Sitter environment as the thermal bath with temperature  $T = H/\pi$ . It is twice larger than the Gibbons–Hawking temperature [11] of the cosmological horizon,  $T_{\text{GH}} = H/2\pi$ . The temperature  $T = H/\pi$  determines in particular the process of ionization of an atom in the de Sitter environment. Here the atom plays the role of the local Unruh–deWitt detector, which is excited in the de Sitter environment. The temperature  $T = H/\pi$  determines the thermodynamics of the de Sitter state [3] and the local entropy density of this state  $s_{\text{dS}} = (3\pi/4G)T$ . The entropy density is linear in temperature, which demonstrates that de Sitter thermal state experiences the analog of the Sommerfeld law in Fermi liquids.

The difference between the local  $T$  and  $T_{\text{GH}} = H/2\pi$  of Gibbons–Hawking process also comes from the analog of co-tunneling. In the Gibbons–Hawking process, two particles are coherently created: one particle is created inside the horizon, while its partner is simultaneously

<sup>1)</sup>e-mail: volovikgrigory@gmail.com

created outside the horizon. Since de Sitter Universe behaves as the thermal bath with temperature  $T = H/\pi$ , then the rate of the coherent creation of two particles, each with energy  $E$ , is  $w \propto \exp(-\frac{2E}{T})$ . However, the observer who uses the Unruh–DeWitt detector can detect only the particle created inside the horizon. For this observer the creation rate  $w \propto \exp(-\frac{2E}{T})$  is perceived as  $\exp(-\frac{E}{T/2}) = \exp(-\frac{E}{T_{\text{GH}}})$ , and thus the Hawking radiation looks as the thermal process with the Gibbons–Hawking temperature, while the real temperature of the de Sitter environment is twice larger.

The doubling of the Unruh and de Sitter temperatures may also have connection with the 't Hooft proposal of the doubling of the temperature of the Hawking radiation from the black hole [12, 13]. In this scenario the coherence is supported by the partner (the clone) of the black hole – the mirror image of the black hole space-time. Instead of the clone, the coherence can be provided by the simultaneous creation of two particles in the tunneling process [14, 15]: the particle outside the black hole horizon and its partner – the hole created inside the horizon. Due to coherence of these two processes the physical temperature is twice the Hawking temperature. However, the external observer has no information about the physics inside the horizon and perceives the radiation as thermal with the Hawking temperature.

The double Hawking temperature may arise also from the Brown–York approach [16]. According to [17] the only way to reconcile the Brown–York black hole energy  $E = 2M$  with the relation  $dE = TdS$  is by introducing the Brown–York temperature  $T_{\text{BY}} = 2T_H$ .

In conclusion, due to coherence of different processes, all three effects (Unruh effect, Gibbons–Hawking radiation from the cosmological horizon and Hawking radiation from the black hole horizon) acquire the extra factor 2 compared with their traditional values.

In the case of de Sitter, the double Gibbons–Hawking temperature  $T = 2T_{\text{GH}} = H/\pi$  coincides with the thermodynamic temperature of the de Sitter state, which in particular responsible for the ionization rate of an atom in the de Sitter environment. This temperature also determines the local entropy  $s_{\text{dS}}$  of the de Sitter, which being integrated over the Hubble volume  $V_H$  reproduces the entropy of the cosmological horizon,  $s_{\text{dS}}V_H = A/4G$ , where  $A$  is the horizon area.

In the case of the Unruh effect, the double Unruh temperature is supported by the analog of the Unruh effect in the accelerated superfluid liquid such as  $^3\text{He}-\text{B}$ . In the Unruh process, two Bogoliubov fermions (quasi-particle and quasi-hole, each with energy  $E$ ), are created simultaneously. Since the two fermions are created in unison, such coherent process looks as thermal but with

the factor 2 in the exponent,  $e^{-2E/T}$ . This is the reason why the temperature  $T$  corresponding to this coherent process is twice the Unruh temperature,  $T = 2T_U$ , where  $T_U = \hbar a/2\pi$  and  $a$  is the acceleration of the liquid.

In case of the black hole Hawking radiation, the double Hawking temperature emerges also due to the combination of the coherent processes. Such coherence is similar to that in the scenario suggested by 't Hooft, where the black hole interior is considered as a quantum clone of the exterior region, which leads to the doubling of the Hawking temperature.

The coherence of the processes is also used for the consideration of the back reaction of the black hole to the Hawking radiation and the detector recoil to the Unruh effect [7, 8, 15, 18, 19].

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

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

1. V. Akhmedova, T. Pilling, A. de Gill, and D. Singleton, Phys. Lett. B **673**, 227 (2009).
2. A. de Gill, Am. J. Phys. **78**, 685 (2010).
3. G. E. Volovik, Symmetry **16**, 763 (2024).
4. J. Schwinger, Phys. Rev. **82**, 664 (1951).
5. J. Schwinger, Phys. Rev. **93**, 616 (1953).
6. W. G. Unruh, Phys. Rev. D **14**, 870 (1976).
7. R. Parentani and S. Massar, Phys. Rev. D **55**, 3603 (1997).
8. D. Kharzeev and K. Tuchin, Nucl. Phys. A **753**, 316 (2005).
9. V. Sudhir, N. Stritzelberger, and A. Kempf, Phys. Rev. D **103**, 105023 (2021).
10. M. Teslyk, O. Teslyk, L. Zadorozhna, L. Bravina, and E. Zabrodin, Particles **5**, 157 (2022).
11. G. W. Gibbons and S. W. Hawking, Phys. Rev. D **15**, 2738 (1977).
12. G. 't Hooft, Universe **8**, 537 (2022).
13. G. 't Hooft, J. Phys.: Conf. Ser. **2533**, 012015 (2023).
14. G. E. Volovik, JETP Lett. **69**, 705 (1999).
15. M. K. Parikh and F. Wilczek, Phys. Rev. Lett. **85**, 5042 (2000).
16. J. D. Brown and J. W. York, Jr., Phys. Rev. D **47**, 1407 (1993).
17. S. Nojiri, S. D. Odintsov, and V. Faraoni, Phys. Rev. D **104**, 084030 (2021).
18. B. Reznik, Phys. Rev. B **57**, 2403 (1998).
19. R. Casadio and G. Venturi, Phys. Lett. A **252**, 109 (1999).

# Формула Марбургера для эллиптически поляризованных световых пучков в нелинейной нелокальной среде

Н. Ю. Кузнецов, К. С. Григорьев, В. А. Макаров<sup>1)</sup>

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

Поступила в редакцию 10 сентября 2024 г.

После переработки 10 сентября 2024 г.

Принята к публикации 19 сентября 2024 г.

Численно исследована возможность применения формулы Марбургера для нахождения связи между мощностью пучка и расстоянием, на котором происходит нелинейный коллапс пучка с начальным гауссовым профилем интенсивности и однородной эллиптической поляризацией. Показано, что адекватного описания этой зависимости удается достичь путем подстройки параметров, входящих в эту формулу, в зависимости от степени эллиптичности эллипса поляризации падающего излучения и от механизма нелинейного оптического отклика.

DOI: 10.31857/S0370274X24110027, EDN: PHVEFA

**1. Введение.** Немногим более шестидесяти лет назад была предсказана [1] самофокусировка светового пучка, являющаяся причиной возникновения множества нелинейных оптических эффектов, связанных с лавинообразным увеличением энергии электромагнитного поля в малой области, окружающей определенную точку пространства. Описанные в обзорах [2–9] успехи в исследовании самофокусировки линейно или циркулярно поляризованных пучков с различным плавным распределением интенсивности, а впоследствии и импульсов с длительностью, большей или меньшей времени релаксации нелинейности среды, и создание мощных фемтосекундных лазерных систем обеспечили стремительное изучение филаментации лазерных импульсов в различных средах и анализ ее возможных применений (см. обзоры [8–15]).

Самофокусировка света – пороговый эффект, возникающий, если мощность светового пучка  $P$  превышает критическое значение  $P_c$ . Последнее не только зависит от поперечного пространственного распределения интенсивности и поляризации света на границе среды, но и по-разному (с точностью до числового коэффициента) определяется авторами в зависимости от различных способов аналитического решения уравнений распространения или от методов, используемых при их численном решении. В последнем случае порог самофокусировки определяется из условия одновременного достижения бесконечного сжатия пучка и неограниченного возрастания его интенсивности и становится возможным связать введен-

ное в [16] расстояние  $z_c$  от границы среды, на котором это происходит, с  $P/P_c$ . Впервые такая формула, полученная в приближении неизменности линейной поляризации света в процессе распространения, была получена в [17]

$$\frac{z_c}{z_R} = \frac{A}{\left( (\sqrt{P/P_c} - B)^2 - C \right)^{1/2}}. \quad (1)$$

Здесь  $z_R$  – длина Рэлея для пучка, распространяющегося в линейной среде, и  $A = 0.366$ ,  $B = 0.825$ ,  $C = 0.03$ . Увеличение точности расчетов позднее привело к немного другим значениям входящих в (1) констант:  $A = 0.367$ ,  $B = 0.852$  и  $C = 0.0219$ . Равенство (1) с этими значениями  $A$ ,  $B$  и  $C$  получило название формулы Марбургера [18]. Ее значение трудно переоценить, так как она позволяет быстро оценить возможность возникновения самофокусировки, нежелательной во многих практических приложениях. Усиление строгости в описании распространения света, связанное с учетом его поляризационного самовоздействия (Мейкер–Терхьюновское вращение, нелинейная оптическая активность), продольной “диффузии” комплексной амплитуды электрического поля и, наконец, малой продольной составляющей поляризации электрического поля  $\mathbf{E}(x, y, z, t)$ , возникающей благодаря уравнению  $\operatorname{div} \mathbf{D} = 0$  в системе уравнений Максвелла, ограничивают минимальный радиус пучка и ограничивают интенсивность в фокусе. Это приводит к необходимости корректировки формулы (1).

Как правило, самофокусировка и филаментация света исследуются в приближении неизменности ли-

<sup>1)</sup>e-mail: vamakarov@phys.msu.ru

нейной или циркулярной поляризации света в процессе распространения. В этом же приближении получена формула Марбургера и ее немногочисленные модификации [19, 20]. Критические мощности, определяющие режимы самофокусировки эллиптически поляризованного света в изотропной среде с пространственной дисперсией кубической нелинейности, в которой при распространении света распределение его интенсивности теряет задаваемую на входе в среду гауссову форму, а поляризация становится неоднородной в плоскости поперечного сечения, в безаберрационном приближении определены в [21]. В среде, где компоненты тензора кубической нелинейности имеют разные знаки, в поперечном распределении распространяющегося пучка возможно появление кольцеобразных областей с чередующимся правым или левым вращением вектора напряженности электрического поля [22]. В случае аномальной частотной дисперсии импульсное излучение распадается на фрагменты с противоположными направлениями вращения вектора напряженности электрического поля [23]. В [24, 25] показано, что при самофокусировке изначально эллиптически поляризованного гауссова пучка в изотропной среде с различными механизмами кубической нелинейности возникают замкнутые линии сингулярности круговой поляризации (*C*-линии). Они появляются как в допороговых, так и в сверхпороговых режимах самовоздействия света и имеют в общем случае вид трехмерных кривых, форма которых близка к окружностям, лежащим в плоскости поперечного сечения пучка, центры которых находятся на его оси. При самофокусировке света в изотропной фазе жидких кристаллов в предпереходной области температур резко возрастает нелокальность нелинейного оптического отклика на внешнее световое поле. В этом случае образуется сложная система *C*-линий с правой и левой циркулярной поляризацией в его сечениях, близких к локальным экстремумам пиковых интенсивностей, соответствующих циркулярно поляризованных компонент электрического поля. Некоторые аспекты коллапса оптического пучка с определенным неоднородным распределением поляризации обсуждались в [19, 26].

В настоящей работе исследуется возможность использования соотношения близкого к формуле (1) в случае самофокусировки световых пучков гауссова профиля в изотропной гиротропной среде (класс симметрии  $\infty\infty$ ), демонстрирующей пространственную дисперсию кубической нелинейности.

**2. Постановка задачи.** Пусть неоднородно поляризованный монохроматический световой пучок с

частотой  $\omega$  распространяется вдоль оси  $z$  цилиндрической системы координат  $(\mathbf{r}, z)$  в изотропной гиротропной непоглощающей среде, обладающей пространственной дисперсией кубической нелинейности. Вектор напряженности его электрического поля  $\mathbf{E}$  может быть выражен через медленно меняющуюся комплексную амплитуду  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, z)$ :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, z, t) = \operatorname{Re} [\mathbf{E}(\mathbf{r}, z) \exp(i(kz - \omega t))]. \quad (2)$$

Здесь  $\mathbf{r} = (x, y)$ ,  $k = n\omega/c$  – волновое число,  $n$  – линейный действительный показатель преломления среды,  $c$  – скорость света в вакууме. Возникающая при этом нелинейная поляризация среды  $\mathbf{P}^{\text{NL}} = \mathbf{P}_{\text{loc}}^{\text{NL}} + \mathbf{P}_{\text{nloc}}^{\text{NL}}$ , где

$$\mathbf{P}_{\text{loc},i}^{\text{NL}}(\omega) = \chi_{ijlm}^{(3)}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_j^* E_l E_m, \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{\text{nloc},i}^{\text{NL}}(\omega) = & \gamma_{ijlmk}^{(3)}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_j^* E_l \partial_k E_m + \\ & + \gamma_{ijlmk}^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega) E_j E_l \partial_k E_m^*. \end{aligned} \quad (4)$$

В (3) и (4) индексы  $i, j, k, l$  и  $m$  принимают значения  $x, y$  и  $z$ . Ненулевые компоненты симметричного по перестановке последних двух индексов тензора локальной кубической восприимчивости  $\hat{\chi}^{(3)}$  задаются двумя константами  $\chi_{1,2}$  [2, 27, 28]:  $\chi_{ijlm}^{(3)} = \chi_1(\delta_{il}\delta_{jm} + \delta_{im}\delta_{jl}) + \chi_2\delta_{ij}\delta_{lm}$ . Здесь  $\delta_{ij}$  – символ Кронекера. Тензоры нелокальной кубической восприимчивости  $\hat{\gamma}^{(3)}(\omega; -\omega, \omega, \omega)$  и  $\hat{\gamma}^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega)$  характеризуют пространственную дисперсию нелинейной среды. В отсутствие поглощения второй из них тождественно равен нулю [29], а первый симметричен по перестановке индексов  $i$  и  $j$  [29]. Использование далее метода медленно меняющихся амплитуд [3] для описания распространения пучка позволяет упростить формулу (4)

$$\mathbf{P}_{\text{nloc},i}^{\text{NL}} = ik\gamma_{ijlmz}^{(3)} E_j^* E_l E_m, \quad (5)$$

и делает тензор  $\gamma_{ijlmz}^{(3)}$  в (5) дополнительно симметричным по перестановке индексов  $l$  и  $m$ . Все ненулевые компоненты такого тензора определяются единственной константой  $\gamma_1$  [27, 28, 30]:

$$\begin{aligned} \gamma_{ijlmz}^{(3)}(\omega; -\omega, \omega, \omega) = & \gamma_1(e_{izl}\delta_{jm} + e_{izm}\delta_{jl} + \\ & + e_{jzl}\delta_{im} + e_{jzm}\delta_{il}), \end{aligned} \quad (6)$$

где  $e_{ijk}$  – символ Леви–Чивиты. В этом случае волновое уравнение сводится к системе двух связанных уравнений параболического типа для медленно меняющихся амплитуд  $E_{\pm} = (E_x \pm iE_y)/\sqrt{2}$  циркулярно

поляризованных компонент напряженности электрического поля:

$$\frac{\partial E_{\pm}}{\partial z} - \frac{i}{2k} \left( \frac{\partial^2 E_{\pm}}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial E_{\pm}}{\partial r} \right) = \pm i\kappa_0 E_{\pm} + \frac{4ik\chi_1}{n^2} [(1 \pm \delta)|E_{\pm}|^2 + (1 + \beta)|E_{\mp}|^2] E_{\pm}. \quad (7)$$

Здесь  $\delta = 2k\gamma_1/\chi_1$ ,  $\beta = \chi_2/\chi_1$ ,  $\kappa_0 = 2\pi k^2\gamma_0/n^2$ ,  $n$  – линейный показатель преломления,  $\gamma_0$  – константа, задающая все ненулевые компоненты тензора линейной гирации. От связанного с ней слагаемого в правой части (7) легко избавиться подстановкой  $E_{\pm} = F_{\pm} \exp(\pm i\kappa_0 z)$ . Решение получившейся системы уравнений для  $F_{\pm}$ , совпадающей с (7) при  $\kappa_0 = 0$ , позволяет найти нормированную интенсивность  $I = |E_+|^2 + |E_-|^2 = |F_+|^2 + |F_-|^2$ , зависимость которой от пространственных координат представляет интерес при исследовании самофокусировки лазерного излучения. Константа  $\kappa_0$  также не влияет на изменение степени эллиптичности эллипса поляризации  $M = (|E_+|^2 - |E_-|^2)/I$ , связанной с параметром  $R = (1 - \sqrt{1 - M^2})/M$  при  $M \neq 0$ ; и равным нулю при  $M = 0$ . Модуль  $R$  равен отношению длин малой и большой полуосей эллипса поляризации, а его знак совпадает со знаком  $M$ . Линейно поляризованному излучению соответствует  $M = R = 0$ , а циркулярно поляризованному –  $M = R = \pm 1$  (в зависимости от направления вращения вектора напряженности электрического поля). Использование этого параметра полезно, поскольку изменение  $z_c$  от  $M$ , описанное далее, практически полностью сосредоточено в узких областях  $0.9 < |M| < 1$ , в то время как зависимости  $z_c$  от  $R$  значительно равномернее. Константа  $\kappa_0$  дает только пропорциональный  $z$  вклад в угол поворота  $\Phi$  главной оси эллипса поляризации в процессе распространения:  $\Phi = \text{Arg}(E_+ E_-^*)/2 = \kappa_0 z + \text{Arg}(F_+ F_-)$ .

Пусть на границу среды  $z = 0$  падает осесимметричный эллиптически поляризованный лазерный пучок с гауссовым профилем амплитуды:

$$E_{\pm}(x, y, 0) = E_0 \sqrt{(1 \pm M_0)/2} \exp(-r^2/w^2), \quad (8)$$

где  $E_0$  – напряженность электрического поля в его центре, а  $M_0 = M(r, z = 0)$ . Для численного решения (7) с начальными условиями (8) использовалась схема ETD-CN [31] с конечно-разностной аппроксимацией производных по координате  $r$ . Координата распространения нормировалась на длину Рэлея  $z_R = kw^2/2$ , а  $F_{\pm}$  на  $E_0$ . В итоге падающее излучение полностью задается двумя безразмерными параметрами:  $P = 2\pi\chi_1 E_0^2 k^2 w_0^2 / n^2$  и  $M_0$ , а среда – параметрами  $\delta$  и  $\beta$ . Нашей задачей являлся подбор при различных фиксированных значениях  $M_0$ ,  $\delta$  и  $\beta$  таких тро-

ек независимых параметров  $A(M_0, \delta, \beta)$ ,  $B(M_0, \delta, \beta)$  и  $P_c(M_0, \delta, \beta)$ , при которых формула (1) наилучшим образом аппроксимирует зависимость  $\zeta_c = z_c/z_R$  от  $P$ , полученную при численном решении уравнений (7).

**3. Методика определения параметров формулы Марбургера.** Прежде всего заметим, что  $B$  и  $C$  в формуле (1) не являются независимыми величинами. При стремлении  $P$  к  $P_c$  расстояние  $z_c$ , на котором происходит коллапс пучка, должно стремиться к бесконечности, а это возможно только если  $C = (1 - B)^2$ . В наших расчетах для каждой комбинации параметров падающего излучения и нелинейной среды значение  $\zeta_c$  определялось как координата слоя численной схемы, на котором величина  $|E_+|^2 + |E_-|^2$  превышала  $E_0^2$  более, чем в 1000 раз. Аппроксимация зависимости  $\zeta_c(P)$  производилась по  $N = 30$  значениям начальной безразмерной мощности  $P_i$  ( $i = 1, 2, \dots, N$ ), специальным образом выбранных в диапазоне от  $P_0$  до  $5P_0$ , где  $P_0(\beta, M) = [0.5 + \beta(1 - M^2)/4]^{-1}$  – максимально возможное значение пороговой мощности самофокусировки гауссова пучка в негиротропной среде с керровской нелинейностью [25]. Оптимальные значения  $A$ ,  $B$  и  $P_c$  определялись в результате минимизации суммы

$$\sigma^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |\zeta'_{ci} - \zeta''_{ci}|^2, \quad (9)$$

где  $\zeta'_{ci}$  – значение координаты коллапса пучка с начальной мощностью  $P_i$ , полученное при помощи численного моделирования его распространения, а  $\zeta''_{ci}$  – соответствующее значение мощности, получаемое с помощью формулы (1). Для этого нами использовался метод дифференциальной эволюции [32], в котором в качестве начальных значений для параметров  $A$  и  $B$  выбирались величины, выполняющие эту роль в формуле Марбургера для линейно поляризованного излучения, т.е.  $A = 0.367$  и  $B = 0.852$ , а для начальной безразмерной мощности  $P_c$  использовалось значение  $0.9P_0$ . Такой выбор обусловлен тем, что минимальное значение  $P_i$ , используемое в численных расчетах, было  $P_0$ . Поэтому его использование для получения зависимости (1) невозможно, так как при такой мощности искомая зависимость  $\zeta_c(P)$  имеет сингулярность. Подчеркнем, что результаты поиска  $A$ ,  $B$  и  $P_c$  практически не зависели от их начальных значений, если только они случайно не совпадали с теми, при которых искомая функция  $\zeta_c(P)$  демонстрирует сингулярность.

Зависимость  $\zeta_c(P)$ , задаваемая формулой (1), асимптотически резко возрастает вблизи  $P = P_c$  и

плавно убывает при  $P \rightarrow \infty$ . Поэтому используемые для численного моделирования  $P_i$  ( $i = 1, 2, \dots, N$ ) выбирались так, чтобы значения  $\sqrt{\ln(P_i/P_0)}$  были равномерно распределены в диапазоне от 0 до  $\sqrt{\ln 5}$ . Это обеспечивало большую плотность точек в области низких мощностей падающего излучения, необходимую для надлежащей аппроксимации зависимости  $\zeta_c(P)$ . Пример полученной таким методом зависимости  $\zeta_c(P)$  в случае самофокусировки лазерного пучка со степенью эллиптичности  $M_0 = 0.8$  (отношение осей  $R = 0.5$ ) в среде, демонстрирующей ориентационный механизм нелинейного оптического отклика ( $\beta = 6$ ) изображен на рис. 1. Полученная в результате численного решения уравнений распространения зависимость  $\zeta_c(P)$  и аналогичная кривая, построенная с помощью формулы (1) с найденными в результате аппроксимации значениями  $A = 0.293$ ,  $B = 0.744$  и  $P_c = 0.857$ , идеально совпадают. Среднеквадратичная ошибка  $\sigma \approx 0.0047$ .

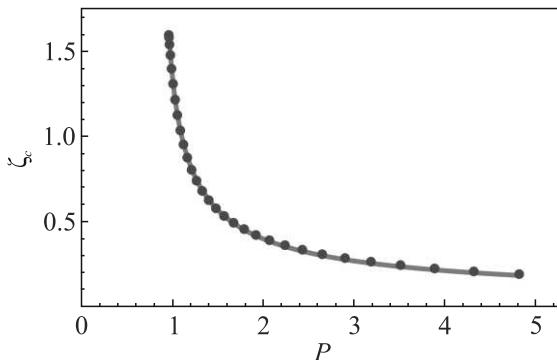


Рис. 1. (Цветной онлайн) Полученные в результате численного решения уравнений распространения зависимость  $\zeta_c(P)$  (красные маркеры) и аналогичная кривая, построенная с помощью формулы (1) с найденными в результате аппроксимации  $A = 0.293$ ,  $B = 0.744$  и  $P_c = 0.857$  (синяя линия) при  $M_0 = 0.8$  ( $R = 0.5$ ),  $\delta = 0$  и  $\beta = 6$

**4. Самофокусировка в среде без пространственной дисперсии.** В негиротропной среде ( $\kappa_0 = 0$  и  $\delta = 0$ ) уравнения (7) для амплитуд  $E_{\pm}$  становятся одинаковыми, а зависимости  $A(M_0)$ ,  $B(M_0)$  и  $P_c(M_0)$  являются четными функциями  $M_0$ .

Для электрострикционного механизма нелинейности ( $\beta = 0$ ) зависимость параметров  $A$ ,  $B$  и  $P_c$  от степени эллиптичности падающего излучения полностью отсутствует. В этом случае при любых  $M_0$  используемый алгоритм давал практически одинаковые значения  $A(M_0) = 0.355$  и  $B(M_0) = 0.801$ , отличающиеся от входящих в формулу Марбургера соответственно на 3.5 и 6 %. При этом величина  $P_c = 1.89$ , что на 5.3 % ниже  $P_0(M_0) = 2$ . Среднеквадратичная

ошибка всех данных аппроксимаций составляла менее  $\sigma = 0.006$ .

В случае электронного механизма нелинейности ( $\beta = 1$ ) появляются незначительные зависимости  $A$  и  $B$  от  $M_0$ , изображенные на рис. 2а соответствующе красными и синими маркерами. Для наглядности здесь и далее показаны не только зависимости  $A$  и  $B$  от  $M_0$  (верхняя горизонтальная ось), но и  $A$  и  $B$  от  $R$  (нижняя горизонтальная ось). Из-за нелинейной связи  $M_0$  и  $R$  возникает неравномерное масштабирование вдоль одной из осей. Для строго линейной ( $M_0 = 0$ ) и строго циркулярной ( $M_0 = \pm 1$ ) поляризаций  $A(M_0) = 0.355$  и  $B(M_0) = 0.801$ . Эти значения отличаются от  $A(0) = 0.367$  и  $B(0) = 0.825$  соответственно на 3.5 и 6 %. Максимальное значение  $A$  ( $B$ ), равное 0.359 (0.803), достигается при  $M_0 \approx 0.62$  ( $M_0 \approx 0.98$ ), а минимальное значение, равное 0.344 (0.748), – при  $M_0 \approx 0.88$  ( $M_0 \approx 0.55$ ). Амплитуды изменения  $A(M_0)$  и  $B(M_0)$  соответственно равны  $0.02A(0)$  и  $0.07B(0)$ , что соизмеримо с величиной их отличия от значений  $A$  и  $B$  в формуле Марбургера. Критическая мощность самофокусировки монотонно возрастает с увеличением степени эллиптичности (синие маркеры на рис. 2c) и составляет при разных  $M_0$  от 94.1 % до 94.7 % от  $P_0(\beta = 1, M_0) = [0.5 + (1 - M_0^2)/4]^{-1}$  (красные маркеры на рис. 2c). Максимальная сред-

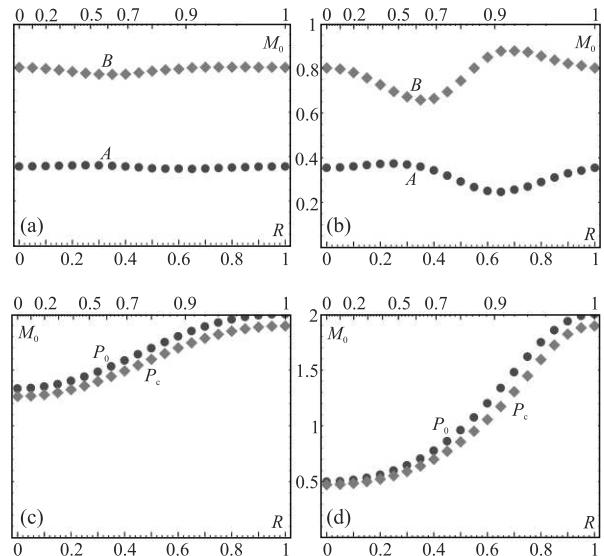


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости параметров  $A(M_0)$  и  $B(M_0)$  (соответственно красные и синие маркеры на рис. (а) и (б)) и критической мощности самофокусировки  $P_0 = [0.5 + \beta(1 - M^2)/4]^{-1}$  (соответственно синие и красные маркеры на рис. (с) и (д)) от отношения длин осей эллипса поляризации падающего излучения при  $\beta = 1$  ((а) и (с)) и  $\beta = 6$  ((б) и (д))

неквадратичная ошибка данных аппроксимаций составляла  $\sigma = 0.006$ .

При ориентационном механизме нелинейности ( $\beta = 6$ ) численное значение  $A(M_0)$  при  $M_0 = 0$ , равное  $= 0.354$ , отличается от  $A$ , входящего в формулу Марбургера, на  $3.5\%$ . С ростом степени эллиптичности функция  $A(M_0)$  постепенно возрастает, достигая максимального значения  $0.387$  при  $M_0 \approx 0.38$ , после чего убывает вплоть до  $0.247$  при  $M_0 \approx 0.91$  и далее возвращается к значению  $0.354$  при строго циркулярной поляризации падающего излучения (красные маркеры на рис. 2b). Параметр  $B(M_0)$  изменяется практически точно в “противофазе” (синие маркеры на рис. 2b). Начиная от  $B = 0.801$  при линейной поляризации, отличающейся от входящего в формулу Марбургера значения  $B$  на  $6\%$ , функция  $B(M_0)$  убывает до минимального значения  $0.658$ , достигаемого при  $M_0 \approx 0.62$ , а затем возрастает и при  $M_0 \approx 0.94$  достигает максимального значения, равного  $0.880$ , а затем вновь убывает и достигает минимума  $0.801$  при строго циркулярной поляризации. При  $\beta = 6$  амплитуды изменения  $A(M_0)$  и  $B(M_0)$  достаточно большие. Они составляют соответственно  $39$  и  $27\%$  от  $A(0)$  и  $B(0)$ . Критическая мощность самофокусировки монотонно возрастает с ростом  $M_0$  (синие маркеры на рис. 2d), меняясь в пределах от  $88\%$  до  $95\%$  от  $P_0(\beta = 6, M_0) = [0.5 + 3(1 - M_0^2)/2]^{-1}$  (красные маркеры на рис. 2d). Максимальная среднеквадратичная ошибка данных аппроксимаций составила  $\sigma = 0.01$ .

**5. Самофокусировка в среде с пространственной дисперсией.** В случае изотропной гиротропной среды с нелокальностью нелинейного оптического отклика ( $\beta = 6, \delta \neq 0$ ) зависимости  $A(M_0)$ ,  $B(M_0)$  и  $P_c(M_0)$ , построенные при разных  $\delta$ , становятся быть четными функциями  $M_0$ . Проведенные численные расчеты показали, что рост  $\delta$  практически не оказывается на характере зависимости  $A(M_0)$  и не смешает график этой функции, но увеличивает разность между абсолютными максимальным и минимальным значениями функции  $B(M_0)$ , а также сдвигает точки достижения ее локальных экстремумов в сторону положительных значений  $M_0$  (рис. 3a). При этом с ростом  $\delta$  усиливается небольшая несимметричность графиков  $A(M_0)$  и  $B(M_0)$  относительно оси  $M_0 = 0$ . Увеличение разности между максимальным и минимальным значениями функций  $A(M_0)$  и  $B(M_0)$  с ростом  $\delta$  в случае положительных и отрицательных  $M_0$  иллюстрирует табл. 1. В ней приведены абсолютные минимумы и максимумы функций  $A(M_0)$  и  $B(M_0)$  на отрезках  $-1 \leq M_0 \leq 0$  и  $0 \leq M_0 \leq 1$ .

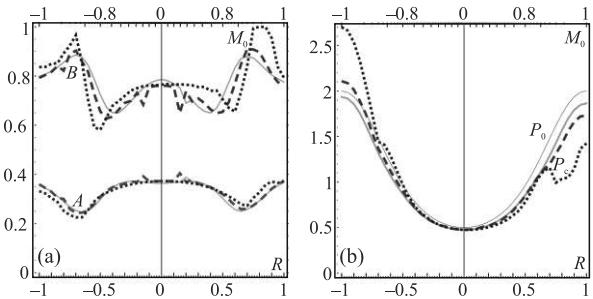


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Зависимости  $A(M_0)$  (линии в теплых оттенках) и  $B(M_0)$  (линии в холодных оттенках) от отношения длин осей эллипса поляризации падающего излучения при  $\delta = 0.02$  (тонкие сплошные оранжевые и голубые линии),  $\delta = 0.1$  (редкий красный и синий пунктир) и  $\delta = 0.3$  (частый темно-красный и темно-синий частый пунктир). (b): Зависимости  $P_c(M_0)$  при  $\delta = 0.02$  (сплошная голубая линия),  $0.1$  (синий редкий пунктир),  $0.3$  (темно-синий частый пунктир). Тонкая красная линия –  $P_0(M_0) = [0.5 + 3(1 - M^2)/2]^{-1}$

**Таблица 1.** Диапазоны изменения параметров  $A(M_0)$  и  $B(M_0)$  обобщенной формулы Марбургера для правой ( $M_0 > 0$ ) и левой ( $M_0 < 0$ ) эллиптических поляризаций излучения, падающего на изотропную гиротропную среду с ориентационной нелинейностью керровского типа

$\delta$	$A$		$B$	
	$M \leq 0$	$M \geq 0$	$M \leq 0$	$M \geq 0$
0	$0.247 \div 0.387$		$0.658 \div 0.880$	
0.02	$0.246 \div 0.372$	$0.250 \div 0.389$	$0.650 \div 0.885$	$0.650 \div 0.879$
0.1	$0.243 \div 0.392$	$0.259 \div 0.404$	$0.627 \div 0.903$	$0.648 \div 0.909$
0.3	$0.225 \div 0.372$	$0.272 \div 0.373$	$0.582 \div 0.966$	$0.655 \div 1.000$

Рост  $\delta$  приводит также к значительному увеличению  $P_c$  для падающего на среду эллиптически поляризованного пучка с  $M_0 \approx -1$  (рис. 3b), которое настолько велико, что превышает  $P_0(\beta = 6, M_0) = [0.5 + 3(1 - M_0^2)/2]^{-1}$ , использованное для первоначальной оценки при нахождении  $A(M_0)$ ,  $B(M_0)$  и  $P_c(M_0)$ . При  $\delta = 0.3$  наибольший рост пороговой мощности составляет  $42.5\%$  при  $M = -1$ . Увеличение  $\delta$  также существенно снижает  $P_c$  при  $M_0 \approx 1$ . При  $\delta = 0.3$  наибольшее уменьшение пороговой мощности составляет  $39.1\%$  при  $M = 1$ . Для  $\delta \approx 0.01$  аналогичные изменения при  $M_0 \approx -1$  и  $M_0 \approx 1$  составляют менее  $2\%$ .

**6. Заключение.** Основным и немного неожиданным результатом работы является утверждение о том, что превышение мощности  $P$  однородно эллиптически поляризованного лазерного пучка гауссова профиля над критическим значением  $P_c$  и расстояние  $z_c$ , на котором достигается одновременное его бесконечное сжатие и неограниченное возраста-

ние его интенсивности, оказываются связанными соотношением, форма которого совпадает со знаменитой формулой Марбургера, изначально полученной в приближении неизменности линейной поляризации излучения, распространяющегося в среде с кубической нелинейностью. В то же время параметры  $A$ ,  $B$  и  $C = (1 - B)^2$  этого соотношения отличаются от аналогичных величин в формуле Марбургера и зависят от степени эллиптичности эллипса поляризации  $M_0$  падающего излучения, от параметра  $\beta$ , определяющего механизм нелинейного оптического отклика (электроstrictionный, электронный или ориентационный) и от параметра, характеризующего пространственную дисперсию кубической нелинейности. Их зависимость от  $M_0$  всегда немонотонна и увеличение  $A$  в ней при изменении  $M_0$  сопровождается одновременным уменьшением  $B$  и наоборот. Их отличие от аналогичных величин в формуле Марбургера тем сильнее, чем больше величина  $\beta$ . При этом для большинства практически важных ситуаций упомянутое отличие составляет несколько процентов. Можно осторожно утверждать, что вид связи между  $P/P_c$  и  $z_c$  скорее всего обусловлен начальным гауссовым поперечным пространственным распределением интенсивности на границе среды, а не состоянием его поляризации в случае, если она изначально одинакова в точках его поперечного сечения.

**Финансирование работы.** Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

**Конфликт интересов.** Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. Г. А. Аскарьян, ЖЭТФ **42**, 1567 (1962).
2. Y. R. Shen, *The principles of nonlinear optics*, J. Wiley, N.Y. (1984).
3. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, Р. В. Хохлов, Успехи физических наук **93**, 19 (1967).
4. R. W. Boyd, S. G. Lukishova, and Y. R. Shen, *Self-focusing: Past and present: Fundamentals and prospects*, Springer, N.Y. (2009).
5. Г. А. Аскарьян, Успехи физических наук **111**, 249 (1973).
6. В. Н. Луговой, А. М. Прохоров, Успехи физических наук **111**, 203 (1973).
7. А. П. Сухоруков, Успехи физических наук **101**, 81 (1970).
8. С. В. Чекалин, В. О. Компанец, А. Е. Дормидонов, В. П. Кандидов, Успехи физических наук **189**, 299 (2019).
9. С. В. Чекалин, В. П. Кандидов, Успехи физических наук **183**, 133 (2013).
10. S. L. Chin. *Femtosecond laser filamentation*, Springer, N.Y. (2010).
11. S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbek, A. Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and H. Schroeder, Can. J. Phys. **83**, 863 (2019).
12. A. Couairon and A. Mysyrowicz. Phys. Rep. **441**, 47 (2007).
13. L. Berge, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian, and J.-P. Wolf, Rep. Prog. Phys. **70**, 1633 (2007).
14. J. Kasparian and J.-P. Wolf, Opt. Express **16**, 466 (2008).
15. В. П. Кандидов, С. А. Шленов, О. Г. Косарева, Квантовая электроника **39**, 205 (2009).
16. P. L. Kelley, Phys. Rev. Lett. **15**, 1005 (1965).
17. В. Н. Гольдберг, В. И. Таланов, Р. Э. Эрм, Известия Вузов. Радиофизика **10**, 674 (1967).
18. J. H. Marburger, Progress in Quantum Electronics **4**, 35 (1975).
19. L. Lu, Zh. Wang, and Y. Cai, Opt. Express **30**, 15905 (2022).
20. В. П. Кандидов, В. Ю. Федоров, Квантовая электроника **34**, 1163 (2004).
21. А. А. Голубков, В. А. Макаров, Известия Вузов. Радиофизика **31**, 1042 (1988).
22. А. А. Голубков, В. А. Макаров, И. А. Пережогин, Вестник Московского Университета **1**, 52 (2009).
23. В. А. Макаров, И. А. Пережогин, Н. Н. Потравкин, Оптика и спектроскопия **109**, 839 (2010).
24. N. A. Panov, V. A. Makarov, K. S. Grigoriev, M. S. Yatskevitch, and O. G. Kosareva, Physica D: Nonlinear Phenomena **332**, 73 (2016).
25. K. S. Grigoriev and V. A. Makarov, J. Opt. Soc. Am. B **36**, 1690 (2019).
26. R.-P. Chen, L.-Xi. Zhong, Kh.-H. Chew, T.-Y. Zhao, and X. Zhang, Laser Phys. **25**, 075401 (2015).
27. Ю. И. Сиротин, М. П. Шаскольская, Основы кристаллофизики, Наука, М. (1979).
28. G. F. Smith, Ann. N. Y. Acad. Sci. **172**, 59 (1970).
29. P. S. Ryzhikov and V. A. Makarov, Laser Phys. Lett. **20**, 105401 (2023).
30. S. V. Popov, Yu. P. Svirko, and N. I. Zheludev, *Susceptibility tensor for nonlinear optics. 1995, Optics and optoelectronics series*, Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, Bristol (1995).
31. B. Kleefeld, A. Q. M. Khalil, and B. A. Wade, Numerical Methods for Partial Differential Equations **28**, 1309 (2012).
32. M. F. Ahmad, N. A. M. Isa, W. H. Lim, and K. M. Ang, Alexandria Engineering Journal **61**, 3831 (2022).

# Трансформация геодезической акустической моды в присутствии низкочастотного зонального течения в плазме токамака

Е. А. Сорокина<sup>1)</sup>

Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 августа 2024 г.

После переработки 2 октября 2024 г.

Принята к публикации 3 октября 2024 г.

Предложен механизм нелинейного взаимодействия геодезической акустической моды (ГАМ) и низкочастотного зонального течения (ЗТ), объясняющий наблюдаемое в экспериментах на токамаках появление сателлитов ГАМ. Взаимодействие собственных мод существенно различных частот приводит к модуляции амплитуды колебаний ГАМ на частоте колебаний ЗТ, что проявляется в спектре колебаний в виде двух боковых гармоник вблизи частоты ГАМ. Частоты указанных гармоник отвечают сумме и разности частот ГАМ и ЗТ. Триггером эффекта служит стационарное тороидальное вращение плазмы.

DOI: 10.31857/S0370274X24110039, EDN: IICDOQ

Геодезические акустические моды (ГАМ) относятся к числу наиболее активно исследуемых явлений современной физики плазмы [1]. ГАМ регистрируются практически на всех ведущих токамаках в виде полоидально и тороидально симметричных ( $m = 0, n = 0$ ) колебаний электрического потенциала плазмы на частоте  $\sim 20$  кГц, сопровождаемых полоидально асимметричными ( $m = 1$ ) колебаниями плотности плазмы. При этом движение плазмы происходит вдоль магнитных поверхностей токамака, что относит ГАМ к высокочастотной ветви зональных течений<sup>2)</sup>. Тем не менее считается, что такие колебания играют существенную роль в физике турбулентного переноса [2]. В плазме зачастую присутствуют и относительно низкочастотные зональные течения, которые представляют собой довольно универсальный физический процесс, наблюдаемый, в том числе, в атмосферах планет солнечной системы [3].

Наиболее универсальным методом диагностики ГАМ является зондирование плазмы пучком тяжелых ионов [4–8]. Этой диагностикой ГАМ регистрируется как согласованные колебания электрического потенциала и концентрации электронов, наряду с которыми могут обнаруживаться также и магнитные флуктуации плазмы [9]. В ряде экспериментов для

регистрации ГАМ используются и другие средства, такие как корреляционная и допплеровская рефлектометрия, обратное рассеяние, ленгмюровские зонды [10–14]. Магнитная компонента ГАМ может быть обнаружена посредством использования магнитных зондов [15].

Отметим, что хотя ГАМ как магнитогидродинамическое (МГД) колебание затрагивает возмущения целого набора физических величин, его отличительной чертой является доминирующее колебание электрического потенциала. Поэтому в настоящей работе мы, следуя теории классических ГАМ, ограничиваемся электростатическим приближением.

Систематические исследования с использованием диагностики пучком тяжелых ионов на токамаке Т-10 [12, 16–18] позволили установить, что в ряде разрядов в спектре колебаний потенциала плазмы вблизи теоретически рассчитанной частоты ГАМ наблюдаются два амплитудных пика, разделенные интервалом  $\sim 5$  кГц; для более высокочастотного пика авторы использовали термин сателлит.

Базовая теория сплошного спектра ГАМ [19] не объясняет данный эффект, предсказывая наличие лишь одной моды с частотой  $\omega_{\text{GAM}} = \omega_s \sqrt{2 + 1/q^2}$ , где  $\omega_s$  – частота звука,  $q$  – коэффициент запаса устойчивости.

Стационарное вращение плазмы оказывает существенное влияние на ее параметры. Даже чисто тороидальное вращение приводит к тому, что в равновесии давление плазмы не является функцией магнитной поверхности  $p \neq p(\Psi)$ , т. е. плазма оказывается стратифицирована по полоидальному углу. В

<sup>1)</sup>e-mail: Sorokina\_EA@nrcki.ru

<sup>2)</sup>Здесь и ниже под зональными течениями понимаем колебательное движение плазмы вдоль магнитных поверхностей (компоненты смещения и макроскопической скорости плазмы в нормальном к поверхностям направлении отсутствуют), отделяя его от стационарного (в том числе дифференциального) вращения.

в этом случае возмущение скорости в полоидальном направлении приводит к появлению колебаний конечной частоты [20, 21] – так называемому низкочастотному зональному течению (ниже, для краткости, ЗТ). В результате в спектре колебаний вращающейся плазмы присутствуют две собственные моды: высокочастотная (ВЧ) ГАМ и низкочастотное (НЧ) ЗТ. Частота ЗТ связана со скоростью стационарного вращения плазмы и обращается в нуль при его отсутствии.

К формированию ЗТ могут приводить и иные эффекты, в том числе дрейфовые [22], анизотропия давления плазмы [23, 24] и др.

На существование ЗТ имеются прямые указания в экспериментах [25], хотя их экстремально низкая частота существенно затрудняет возможность достоверной идентификации моды по сравнению с той же ГАМ. На токамаке Т-10 систематические исследования ЗТ не проводились, однако опубликованные спектрограммы колебаний электрического потенциала плазмы в ряде разрядов [26] отчетливо демонстрируют наличие амплитудного пика колебаний в районе  $\sim 2$  кГц, который естественно ассоциировать с ЗТ. Присутствие ЗТ в плазме Т-10 также обнаруживают средства корреляционной рефлектометрии [12].

В настоящей работе показано, что наблюдаемая экспериментально “двугорбость” спектра ГАМ (наличие сателлита) является естественным следствием нелинейного взаимодействия собственных мод потенциальных колебаний плазмы, ГАМ и ЗТ. Для такого взаимодействия существенными факторами оказываются кривизна магнитного поля и наличие стационарного тороидального вращения плазмы. Первый приводит к зацеплению колебаний электрического потенциала и давления плазмы, формируя ГАМ, а второй обеспечивает ненулевую частоту ЗТ.

Рассматриваемые колебания традиционно описываются стандартной системой МГД-уравнений (используется система единиц СГС,  $c$  – скорость света):

$$\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla p + \frac{1}{c} [\mathbf{j} \times \mathbf{B}], \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{v}) = 0, \quad (2)$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} + \gamma p \text{div} \mathbf{v} + \mathbf{v} \cdot \nabla p = 0, \quad (3)$$

$$\text{div} \mathbf{j} = 0, \quad (4)$$

$$[\mathbf{v} \times \mathbf{B}] = c \nabla \phi. \quad (5)$$

Уравнение (1) есть уравнение движения плазмы, уравнения (2), (3) – уравнения непрерывности и адиабаты с показателем  $\gamma$ , (4) – условие квазинейтральности. Последнее уравнение (5) отражает элек-

тростатический характер рассматриваемых возмущений. Используются стандартные обозначения:  $\rho$  – плотность плазмы,  $p$  – давление,  $\phi$  – потенциал электрического поля,  $\mathbf{v}$  – скорость,  $\mathbf{j}$  – плотность тока,  $\mathbf{B}$  – магнитное поле, возмущениями которого пренебрегается.

Любую величину  $f(\mathbf{r}, t) = \{p, \rho, \phi, \mathbf{v}, \mathbf{j}\}$  в уравнениях (1)–(5) представим в виде комбинации ее стационарной (равновесной) части и возмущенной части, зависящей от времени:  $f(\mathbf{r}, t) = f_0(\mathbf{r}) + f'(\mathbf{r}, t)$ . Интересующие нас возмущения в дальнейшем будем представлять в виде суперпозиции колебаний ГАМ и ЗТ:

$$f' = f'_{\text{GAM}} + f'_{\text{ZF}}. \quad (6)$$

Независящая от времени часть уравнений (1)–(5) описывает равновесие плазмы. В дальнейшем, следуя классическому подходу В. Д. Шаффранова [27], будем использовать смешанное представление магнитного поля  $\mathbf{B} = F(\Psi) \nabla \varphi + [\nabla \Psi \times \nabla \varphi]$ , где  $\Psi$  – метка магнитной поверхности,  $F$  – функция полоидального тока. Поле скоростей тороидально вращающейся плазмы представляем в стандартном виде  $\mathbf{v}_0 = R^2 \Omega(\Psi) \nabla \varphi$ , где  $\Omega$  – угловая частота вращения. Полоидальная неоднородность давления плазмы, вызванная вращением, описывается уравнением [28–31]:

$$\left( \frac{\partial p_0}{\partial R} \right)_\Psi - \rho_0 \Omega^2 R = 0. \quad (7)$$

Здесь и далее используются цилиндрическая система координат  $\{R, \varphi, z\}$  ( $\varphi$  – тороидальный угол), связанная с геометрическим центром тора, и полярные координаты  $\{r, \theta\}$  ( $\theta$  – полоидальный угол) в сечении  $\varphi = \text{const}$ , связанные с магнитной осью.

Ориентируясь, главным образом, на измерения, проведенные на установке Т-10, рассмотрим магнитную конфигурацию с круглыми концентрическими магнитными поверхностями

$$\Psi = \Psi(r) = \frac{B_a r^2}{2q(r)},$$

где  $B_a$  – поле на магнитной оси токамака, считая параметр  $r/R_0$  ( $R_0$  – большой радиус токамака) малым.

Решение уравнения (7) удобно искать в виде

$$p_0 = \rho_0^\alpha \Pi(\Psi),$$

где  $\Pi(\Psi)$  – некая функция магнитной поверхности, а  $\alpha$  – параметр, определяющий тип динамического равновесия плазмы [31, 32]. Значение  $\alpha = \gamma$  соответствует равновесию с изоэнтропными магнитными

поверхностями, при  $\alpha \rightarrow \infty$  функцией магнитной поверхности является плотность, а при  $\alpha = 1$  – температура плазмы.

Тогда из уравнения (7) следуют выражения, описывающие зависимость давления и плотности плазмы от полоидального угла, которые в первом порядке разложения по  $r/R_0$  имеют вид:

$$\begin{aligned} p_0 &= \bar{p}_0(r) \left( 1 + \frac{r}{R_0} \gamma M^2 \cos \theta \right), \\ \rho_0 &= \bar{\rho}_0(r) \left( 1 + \frac{r}{R_0} \frac{\gamma}{\alpha} M^2 \cos \theta \right). \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь  $\bar{p}_0$  и  $\bar{\rho}_0$  – средние на магнитной поверхности величины давления и массовой плотности плазмы, соответственно;  $\omega_s = \sqrt{\gamma \bar{p}_0 / \bar{\rho}_0} / R_0$  – рассчитанная по ним частота звука,  $M = \Omega / \omega_s$  – тороидальное число Маха.

Неоднородность магнитного поля в том же приближении дается выражением

$$B = B_a \left( 1 - \frac{r}{R_0} \cos \theta \right). \quad (9)$$

Нестационарная часть уравнений (1)–(5) описывает динамику ГАМ и ЗТ. Из уравнения (5) следует, что потенциал электрического поля постоянен на магнитной поверхности токамака,  $\phi' = \phi'(\Psi)$ , а возмущение скорости имеет вид

$$\mathbf{v}' = \frac{\mathbf{B}}{B^2} (B v'_\parallel - c F A) + c R^2 A \nabla \varphi, \quad (10)$$

где  $A(\Psi) \equiv d\phi'/d\Psi$  обозначает величину, пропорциональную амплитуде колебаний электрического поля,  $v'_\parallel$  – возмущение продольной скорости плазмы.

Уравнения, описывающие динамику плотности, давления и продольной скорости ГАМ и ЗТ, после подстановки выражения для возмущенной скорости (10) в уравнения (2), (3) и в продольную проекцию уравнения движения (1) имеют вид:

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \frac{\rho_0}{B} \mathbf{B} \cdot \nabla v'_\parallel - c F A \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{\rho_0}{B^2} = \frac{c F A}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla \rho', \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial p'}{\partial t} + \frac{\gamma p_0}{B} \mathbf{B} \cdot \nabla v'_\parallel - c F A \times \\ \times \left( \gamma p_0 \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{1}{B^2} + \frac{1}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla p_0 \right) = \frac{c F A}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla \rho', \end{aligned} \quad (12)$$

$$\frac{\partial v'_\parallel}{\partial t} + \frac{\mathbf{B} \cdot \nabla p'}{B \rho_0} - \frac{c \Omega A}{B} \mathbf{B} \cdot \nabla R^2 = \frac{c F A}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla v'_\parallel. \quad (13)$$

Левые части уравнений (11)–(13) содержат линейные по амплитуде возмущений слагаемые, а правые

части – квадратичную нелинейность, рассмотрением которой мы ограничиваемся в настоящей работе.

Для анализа уравнения квазинейтральности представим возмущенную плотность тока в виде суммы поперечной и продольной к магнитному полю компонент:  $\mathbf{j}' = \mathbf{j}'_\perp + \mathbf{B} j'_\parallel / B$ . Тогда уравнение (4) принимает вид:

$$\operatorname{div} \mathbf{j}'_\perp + \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{j'_\parallel}{B} = 0. \quad (14)$$

Для произвольной функции координат и времени  $f(\mathbf{r}, t)$  введем операцию усреднения по магнитной поверхности,

$$\langle f \rangle = \frac{\oint J f d\theta d\varphi}{\oint J d\theta d\varphi},$$

где  $J = ([\nabla \Psi \times \nabla \varphi] \cdot \nabla \theta)^{-1}$  – якобиан перехода от координат  $\{R, \varphi, z\}$  к координатам  $\{\Psi, \varphi, \theta\}$ .

Тогда с использованием известных тождеств:  $\langle \mathbf{B} \cdot \nabla f \rangle = 0$  и  $\langle \operatorname{div} \mathbf{a} \rangle = d \langle \mathbf{a} \cdot \nabla \Psi \rangle / d\Psi$  ( $\mathbf{a}$  – произвольный вектор) – уравнение (14) приводит к условию  $d(\oint J (\mathbf{j}' \cdot \nabla \Psi) d\theta) / d\Psi = 0$ .

Для описания локализованных мод сплошного спектра потребуем равенство нулю самого интеграла, стоящего под производной  $d/d\Psi$ . Выражая поперечную компоненту плотности тока из  $[\mathbf{B} \times \nabla \Psi]$ -проекции уравнения (1), имеем

$$\begin{aligned} \oint \left[ p' \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{1}{B^2} + \frac{c \rho_0 |\nabla \Psi|^2}{FB^2} \frac{\partial A}{\partial t} + \right. \\ \left. + \frac{\Omega}{B^2} (\mathbf{B} \cdot \nabla R^2) \left( \frac{\Omega \rho'}{2} + \frac{\rho_0 v'_\parallel}{R} \right) \right] d\theta = 0. \end{aligned} \quad (15)$$

Уравнения (11)–(13) и (15) составляют замкнутую систему для описания ГАМ и ЗТ.

В дальнейшем удобно исключить возмущения  $v'_\parallel$  и  $\rho'$  и свести систему уравнений (11)–(13), (15) к двум связанным уравнениям, описывающим зацепление возмущений давления и электрического поля:

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 p'}{\partial t^2} - \frac{\omega_s^2 R^2}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla (\mathbf{B} \cdot \nabla p') + \frac{\gamma p_0 c \Omega A}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla (\mathbf{B} \cdot \nabla R^2) - \\ - c F \frac{\partial A}{\partial t} \left( \gamma p_0 \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{1}{B^2} + \frac{1}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla p_0 \right) = \\ = \frac{c F}{B^2} \left( 2 A \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{\partial p'}{\partial t} + \frac{\partial A}{\partial t} \mathbf{B} \cdot \nabla p' \right) - c^2 R^2 A^2 \times \\ \times \left( \gamma p_0 \mathbf{B} \cdot \nabla (\mathbf{B} \cdot \nabla \frac{1}{B^2}) + \frac{1}{B^2} \mathbf{B} \cdot \nabla (\mathbf{B} \cdot \nabla p_0) \right), \end{aligned} \quad (16)$$

$$\oint \left[ \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} + \frac{\Omega^2 R^2}{2|\nabla\Psi|^2} A(\mathbf{B} \cdot \nabla R^2) \times \right. \\
\times \left( \frac{\mathbf{B} \cdot \nabla \rho_0}{\rho_0} - \frac{\mathbf{B} \cdot \nabla p_0}{\gamma p_0} + \frac{2\mathbf{B} \cdot \nabla R^2}{R^2} \right) + \frac{1}{c\rho_0 |\nabla\Psi|^2} \times \\
\times \left( FB^2 \frac{\partial p'}{\partial t} \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{1}{B^2} + (\mathbf{B} \cdot \nabla R^2) \times \right. \\
\times \left( \frac{F\Omega^2}{2R^2\omega_s^2} \frac{\partial p'}{\partial t} - \Omega \mathbf{B} \cdot \nabla p' \right) \Big) - \\
- \frac{\Omega F}{\gamma p_0} \frac{(\mathbf{B} \cdot \nabla R^2)}{|\nabla\Psi|^2} \left( A \frac{\partial p'}{\partial t} - \right. \\
\left. \left. - \frac{cFA^2}{B^2} \left( \mathbf{B} \cdot \nabla p_0 + \gamma p_0 B^2 \mathbf{B} \cdot \nabla \frac{1}{B^2} \right) \right) \right] d\theta = 0. \quad (17)$$

В линейном приближении совместное решение уравнений (16), (17) определяет частоты двух независимых ветвей колебаний, амплитуды которых в рамках данного приближения, разумеется, не определены.

Поскольку частота ЗТ существенно ниже частоты ГАМ, будем полагать, что наличие ЗТ в силу нелинейности приведет к медленному изменению амплитуды ГАМ. Таким образом, будем искать решение уравнений (16), (17) в виде

$$p' = P(t) \exp(-i\omega t), \quad A = \bar{A}(t) \exp(-i\omega t),$$

где  $\omega$  – частота моды,  $P$  и  $\bar{A}$  – амплитуды колебаний давления и электрического поля соответственно, причем

$$\frac{\partial P}{\partial t} \ll \omega P, \quad \frac{\partial \bar{A}}{\partial t} \ll \omega \bar{A}. \quad (18)$$

Тогда исходные уравнения разбиваются на “быстрые” и “медленные” части; при этом “быстрые” уравнения определяют частоты собственных мод, а “медленные” – изменение амплитуд мод под влиянием нелинейных слагаемых.

“Быстрые” уравнения совпадают с уравнениями линейной теории. Условие их совместности приводит к известному дисперсионному уравнению

$$\omega^4 - \omega_s^2 \omega^2 \left( 2 + \frac{1}{q^2} + 4M^2 + \frac{\gamma M^4}{2\alpha} \right) + \omega_s^4 \frac{\gamma - \alpha}{\alpha} \frac{M^4}{2q^2} = 0, \quad (19)$$

впервые полученному в аналогичном виде в работе [32] и впоследствии верифицированному при анализе глобальных мод ГАМ и ЗТ в [33, 34].

Дисперсионное уравнение (19) имеет два корня, больший из которых соответствует ГАМ, а меньший – ЗТ:

$$\omega_{\text{ZF}}^2 = \frac{\omega_s^2}{2} \left\{ 2 + \frac{1}{q^2} + 4M^2 + \frac{\gamma M^4}{2\alpha} \pm \right. \\
\left. \pm \sqrt{\left( 2 + \frac{1}{q^2} + 4M^2 + \frac{\gamma M^4}{2\alpha} \right)^2 - \frac{\gamma - \alpha}{\alpha} \frac{2M^4}{q^2}} \right\}. \quad (20)$$

В линейном приближении ГАМ устойчива. Наличие стационарного тороидального вращения плазмы приводит к модификации частоты ГАМ; при  $M = 0$  выражение (20) переходит в стандартный закон дисперсии  $\omega_{\text{GAM}} = \omega_s \sqrt{2 + 1/q^2}$ .

ЗТ устойчиво и обладает конечной частотой, если  $\alpha < \gamma$ , и апериодически неустойчив в обратном случае [35]. При  $M \rightarrow 0$  частота ЗТ стремится к нулю  $\sim M^2$ :

$$\omega_{\text{ZF}} \approx \frac{\omega_s M^2}{q \sqrt{2 + 1/q^2}} \sqrt{\frac{\gamma - \alpha}{2\alpha}}. \quad (21)$$

В вырожденном случае изоэнтропных магнитных поверхностей ( $\alpha = \gamma$ ) частота ЗТ равна нулю, как и в стационарной плазме.

Далее исследуем влияние нелинейных эффектов на временную динамику амплитуды ГАМ, описываемую “медленными” частями уравнений (16), (17). Разделим возмущения электрического поля и давления плазмы на возмущения типа ГАМ и ЗТ согласно (6); при этом в нелинейных слагаемых учтем взаимодействие ГАМ–ЗТ, но пренебрежем самовоздействием моды, т.е. слагаемыми  $\sim \bar{A}_{\text{GAM}}^2$ . Итоговое уравнение для  $\bar{A}_{\text{GAM}}$  имеет вид

$$\frac{\partial \bar{A}_{\text{GAM}}}{\partial t} = i\nu \bar{A}_{\text{GAM}} A_{\text{ZF}}, \quad (22)$$

где  $\omega_{\text{GAM}}$ ,  $\omega_{\text{ZF}}$  – собственные частоты (20), а

$$\nu = \frac{cM}{q^2} \frac{\omega_s^3 (1 + M^2/2)}{2\omega_{\text{GAM}}^2 - \omega_s^2 (1 + M^2/2)^2} \times \\
\times \left[ \frac{4\omega_{\text{GAM}} + \omega_{\text{ZF}}}{\omega_{\text{GAM}}^2 - \omega_s^2/q^2} + \frac{3\omega_{\text{GAM}} + 2\omega_{\text{ZF}}}{\omega_{\text{ZF}}^2 - \omega_s^2/q^2} \right]$$

– коэффициент нелинейного взаимодействия ГАМ и ЗТ. Условие слабой нелинейности (18) имеет вид  $\eta = |\nu A_{\text{ZF}}/\omega_{\text{GAM}}| \ll 1$ .

Правая часть уравнения (22) пропорциональна произведению амплитуд колебаний электрического поля ГАМ и ЗТ, а также частоте стационарного вращения плазмы. Таким образом, в отсутствие стационарного вращения моды не взаимодействуют, и амплитуда ГАМ постоянна.

Рассмотрим случай устойчивого ЗТ конечной частоты, реализующийся при  $\gamma > \alpha$ . Будем решать уравнение (22) итерационно, используя в его пра-

вой части амплитуды линейных мод, не зависящие от времени:  $\bar{A}_{\text{GAM}} = A_{\text{GAM}}^0 = \text{const}$  и

$$A_{\text{ZF}}(t) = A_{\text{ZF}}^0 \cos(\omega_{\text{ZF}} t), \quad A_{\text{ZF}}^0 = \text{const}. \quad (23)$$

Постоянство амплитуды ЗТ оправдано сильным взаимодействием зональных течений с дрейфовой турбулентностью в реальных условиях эксперимента [36], что делает их огромным энергетическим резервуаром.

Итоговое выражение, описывающее колебания электрического поля ГАМ переменной амплитуды, имеет вид:

$$A_{\text{GAM}}(t) = A_{\text{GAM}}^0 (1 + k \cos(\omega_{\text{ZF}} t)) \cos(\omega_{\text{GAM}} t), \quad (24)$$

где

$$k = \frac{cqA_{\text{ZF}}^0}{\omega_s M} \sqrt{\frac{2\alpha}{\gamma - \alpha}} \frac{(2 + 1/q^2)(3 - 2/q^2)}{(3 + 2/q^2)}.$$

Для большей наглядности мы приводим упрощенное выражение для коэффициента  $k$ , справедливое для дозвуковых скоростей вращения плазмы,  $M < 1$ . Коэффициент  $k$  связан с постоянной взаимодействия  $\nu$  и параметром нелинейности  $\eta$  соотношениями:  $k = -\nu A_{\text{ZF}}^0 / \omega_{\text{ZF}}$ ,  $\eta = |k\omega_{\text{ZF}} / \omega_{\text{GAM}}|$ .

Последнее слагаемое в (24) можно переписать в виде  $0.5 (\cos(\omega_{\text{GAM}} - \omega_{\text{ZF}})t + \cos(\omega_{\text{GAM}} + \omega_{\text{ZF}})t)$ . Таким образом, амплитудно-модулированное колебание ГАМ представляет собой сумму трех колебаний с частотами  $\omega_{\text{GAM}}$ ,  $\omega_{\text{GAM}} + \omega_{\text{ZF}}$  и  $\omega_{\text{GAM}} - \omega_{\text{ZF}}$ . На языке радиотехники колебание на частоте  $\omega_{\text{GAM}}$  является несущим. Две остальные частоты называются боковыми частотами, или спутниками (сателлитами). Амплитуда каждого спутника равна  $kA_{\text{GAM}}^0/2$ . Коэффициент  $k$  определяет глубину модуляции. Он пропорционален амплитуде ЗТ, а именно, отношению возмущения тороидальной скорости  $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ -дрейфа к скорости звука и обратно пропорционален тороидальному числу Маха. Даже при слабой нелинейности, характеризуемой параметром  $\eta$ ,  $k$  может быть заметной величиной, особенно при небольших (дозвуковых) скоростях тороидального вращения. Поскольку частота ЗТ пропорциональна квадрату числа Маха, при стремлении стационарной скорости вращения к нулю эффект модуляции будет пропадать, несмотря на усиление коэффициента, характеризующего глубину модуляции. Так же сателлиты ГАМ естественным образом пропадают при стремлении к нулю амплитуды ЗТ.

Для сравнения с экспериментом удобно переписать параметр  $k$ , определяющий глубину модуляции, через отношение электрических полей, связанных с

ЗТ,  $E'_{\text{ZF}}$ , и со стационарным вращением плазмы,  $E_0$ . Для определенности далее рассмотрим равновесие, в котором магнитные поверхности являются изотермами, т. е.  $\alpha = 1$ ,  $\gamma = 5/3$ , считая при этом  $1/q^2 \ll 1$ . Тогда  $k \approx 2\sqrt{3}qE'_{\text{ZF}}/E_0$ .

На рисунке 1 приведены экспериментально измеренные спектры колебаний электрического потенциала в плазме T-10<sup>3)</sup> в омической стадии разряда (рис. 1a) и в стадии разряда с комбинированным (центральным и нецентральным) ЭЦР-нагревом плазмы (рис. 1b) [26]. В омической стадии выделяются два пика вблизи частоты ГАМ ( $f \approx 19$  кГц и  $f \approx 23$  кГц). На рисунке 1a также отчетливо виден дополнительный максимум в районе 2 кГц, который, по нашей гипотезе, соответствует ЗТ. Режим с мощным дополнительным нагревом характеризуется наличием одного пика на частоте  $f \approx 24$  кГц (рис. 1b). Конечная ширина спектров обусловлена ограниченным по времени измерением цуга сигнала ГАМ – см. [39, 40].

Простое сопоставление рис. 1a и b демонстрирует очевидную корреляцию наличия сателлита с присутствием ЗТ.

Наблюдаемая картина описывается предложененной моделью. На рисунке 2 представлен рассчитанный спектр мощности сигнала колебаний электрического поля плазмы  $A(t) = A_{\text{GAM}} + A_{\text{ZF}}$ , где  $A_{\text{GAM}}$  определяется уравнением (24), а  $A_{\text{ZF}}$  – уравнением (23). Частоты мод определены данными экспериментов: на рис. 2a  $f_{\text{GAM}} = 21$  кГц,  $f_{\text{ZF}} = 2$  кГц; на рис. 2b  $f_{\text{GAM}} = 24$  кГц,  $f_{\text{ZF}} \approx 0$ . Частота дискретизации в обоих расчетах – 200 кГц. Для сопоставления с экспериментом анализируется сигнал конечной длины в 1.5 мс с наложением окна Кайзера с параметром 22.8. Точками на рис. 2 показан спектр мощности, полученный путем Фурье-преобразования “идеального” гармонического сигнала бесконечной длины без умножения на функцию окна. Амплитуда зонального течения выбрана равной  $A_{\text{ZF}}^0 = 0.8A_{\text{GAM}}^0$ ;  $q = 2$ .

Будем полагать, что в омическом режиме величина электрического поля, связанного со стационарным вращением плазмы, превышает поле ЗТ,  $E'_{\text{ZF}}/E_0 = -0.55$ , что соответствует  $k = -3.8$  ( $\eta = 0.36$ ). Спектр мощности соответствующего сигнала, представленный на рис. 2a, помимо низкочастотного максимума, связанного с ЗТ, демонстрирует наличие двух пиков на частотах  $f_{\text{GAM}} - f_{\text{ZF}} = 19$  кГц

<sup>3)</sup>Большой радиус токамака T-10 –  $R_0 = 1.5$  м, малый радиус –  $a = 0.3$  м; представлены результаты измерений в центральной части плазменного шнура  $r/a \sim 0.3–0.4$  (см. [37, 38] о возможности диагностики центральной области плазмы в токамаке T-10 пучком тяжелых ионов)

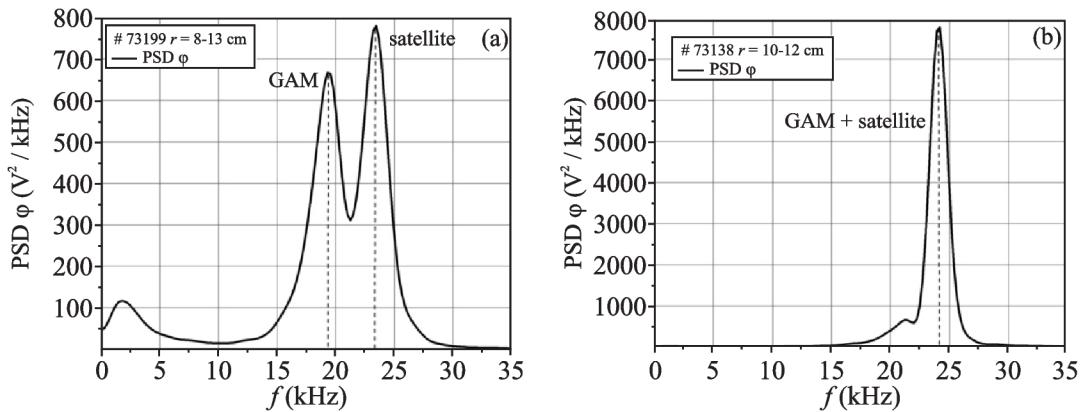


Рис. 1. Спектр мощности колебаний потенциала плазмы на токамаке Т-10 в омической стадии разряда (а) и в стадии разряда с комбинированным ЭЦР-нагревом (б). Рисунки воспроизведены с разрешения автора [26]

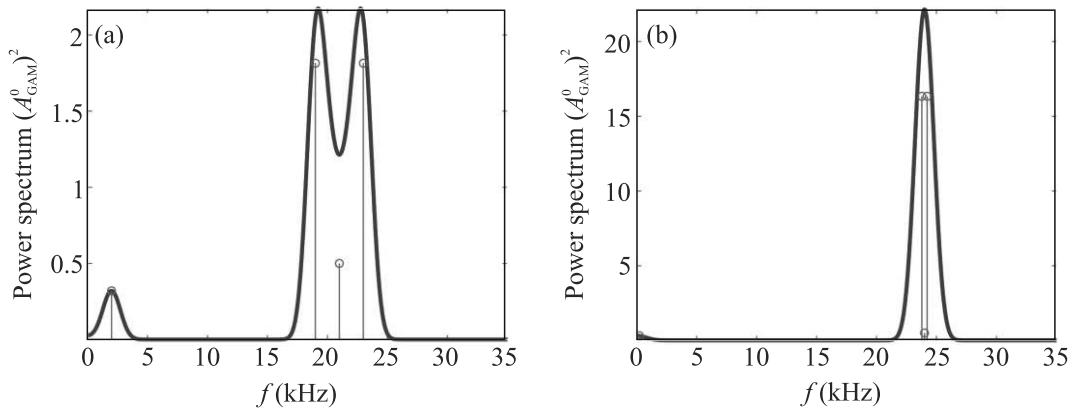


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектр мощности колебаний сигнала  $A(t) = A_{\text{GAM}} + A_{\text{ZF}}$ , рассчитанный с помощью уравнений (23) и (24) при: (а) –  $E'_{\text{ZF}}/E_0 = -0.55$ ,  $f_{\text{GAM}} = 21 \text{ кГц}$ ,  $f_{\text{ZF}} = 2 \text{ кГц}$ ; (б) –  $E'_{\text{ZF}}/E_0 = 1.65$ ,  $f_{\text{GAM}} = 24 \text{ кГц}$ ,  $f_{\text{ZF}} = 0.2 \text{ кГц}$ . Сплошная линия отвечает спектру мощности сигнала конечной длины (моделирование эксперимента), точки – спектру мощности “идеального” сигнала

и  $f_{\text{GAM}} + f_{\text{ZF}} = 23 \text{ кГц}$ . Помимо этого, в модельном спектре также присутствует несущая частота ГАМ  $f_{\text{GAM}} = 21 \text{ кГц}$ , однако за счет перекрытия сигналов конечной ширины и близких частот пик ГАМ не наблюдается. Описанная картина идентична экспериментальной – ср. рис. 1а и 2а.

По мере нагрева плазмы в токамаке Т-10 происходит существенное снижение величины стационарного электрического поля в плазме и даже изменение его направления [26, 41]. Поэтому для второго расчета будем полагать  $E'_{\text{ZF}}/E_0 = 1.65$ , что соответствует трехкратному снижению скорости стационарного вращения плазмы по сравнению с омической фазой. Соответствующие результаты расчета с  $k = 11.4$  ( $\eta = 0.1$ ) представлены на рис. 2б. Ввиду малости  $M$  частота ЗТ близка к нулю,  $f_{\text{ZF}} = 0.2 \text{ кГц}$ . В результате частоты ГАМ и сателлитов не разрешаются – вблизи частоты ГАМ наблюдается единственный пик – ср. с рис. 1б.

Резюмируем, что предложенный механизм нелинейного взаимодействия ВЧ (ГАМ) и НЧ (ЗТ) мод зональных течений в плазме токамака, приводящий к амплитудной модуляции ГАМ на частоте ЗТ, объясняет наличие двух пиков в спектре колебаний электрического потенциала плазмы, наблюдаемое посредством измерений пучком тяжелых ионов. Частотный сдвиг между пиками ГАМ равен удвоенной частоте ЗТ. При этом как сила межмодового взаимодействия, так и частота ЗТ определяются скоростью стационарного вращения плазмы.

Наблюдаемая картина спектра существенно зависит не только от глубины модуляции и частоты взаимодействующих мод, но и от разрешения сигнала. При увеличении разрешения, помимо наблюдения сателлитов, следует ожидать появление в спектре центрального пика на несущей частоте ГАМ. Кроме того, влияние на спектр колебаний способны оказывать фазовые соотношения между ГАМ, ЗТ и

направлением стационарного вращения плазмы. Так, учет синусных гармоник в (24) приводит к различию амплитуд пиков сателлитов (см. рис. 1а).

Таким образом, можно заключить, что эксперименты по наблюдению ГАМ в токамаках демонстрируют классический механизм нелинейного взаимодействия ВЧ и НЧ мод. Аналогичные явления известны в различных областях физики и свойственны, например, плазменным разрядам [42], механическим колебаниям консольных балок и пластин [43–45], оптомеханическим системам [46] и др.

Отметим, что хотя сам результат рождения сателлитов при взаимодействии собственных мод существенно различных частот хорошо известен в теории нелинейных колебаний [47], особенностью ГАМ является отсутствие дисперсии, поэтому стандартные рассуждения в терминах параметрических резонансов к ней неприменимы. Сателлиты ГАМ не являются собственными модами, поэтому возможность последовательной генерации высших гармоник, характерной для процесса параметрического возбуждения [48], требует отдельного рассмотрения.

Автор благодарит В. И. Ильгисониса за идею рассмотрения взаимодействия НЧ и ВЧ собственных мод зональных течений в качестве причины наблюдения сателлитов ГАМ.

**Финансирование работы.** Работа проведена в рамках выполнения государственного задания Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”.

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

1. G. D. Conway, A. I. Smolyakov, and T. Ido, Nucl. Fusion **62**, 013001 (2022).
2. P. H. Diamond, S.-I. Itoh, K. Itoh, and T. S. Hahm, Plasma Phys. Control. Fusion **47**, R35 (2005).
3. A. V. Melnikov, Nature Phys. **12**, 386 (2016).
4. P. M. Schoch, K. A. Connor, D. R. Demers, and X. Zhang, Rev. Sci. Instrum. **74**, 1848 (2003).
5. T. Ido, Y. Miura, K. Kamiya, Y. Hamada, K. Hoshino, A. Fujisawa, K. Itoh, S.-I. Itoh, A. Nishizawa, H. Ogawa, Y. Kusama, and JFT-2M group, Plasma Phys. Control. Fusion **48**, S41 (2006).
6. A. Fujisawa, K. Itoh, A. Shimizu et al. (Collaboration), Phys. Plasmas **15**, 055906 (2008).
7. A. V. Melnikov, L. I. Krupnik, L. G. Eliseev et al. (Collaboration), Nucl. Fusion **57**, 072004 (2017).
8. M. Sasaki, K. Itoh, T. Ido, A. Shimizu, T. Kobayashi, H. Arakawa, N. Kasuya, A. Fujisawa, and S.-I. Itoh, Plasma Fusion Res. **13**, 3403040 (2018).
9. Н. С. Сергеев, А. В. Мельников, Л. Г. Елисеев, Письма в ЖЭТФ **119**, 817 (2024).
10. V. A. Verskhov, D. A. Shelukhin, S. V. Soldatov, A. O. Urazbaev, S. A. Grashin, L. G. Eliseev, A. V. Melnikov and the T-10 team, Nucl. Fusion **45**, S203 (2005).
11. G. D. Conway, B. Scott, J. Schirmer, M. Reich and ASDEX Upgrade Team, Plasma Phys. Control. Fusion **47**, 1165 (2005).
12. A. V. Melnikov, V. A. Verskhov, L. G. Eliseev, S. A. Grashin, A. V. Gudozhnik, L. I. Krupnik, S. E. Lysenko, V. A. Mavrin, S. V. Perfilov, D. A. Shelukhin, S. V. Soldatov, M. V. Ufimtsev, A. O. Urazbaev, G. van Oost, and L. G. Zimeleva, Plasma Phys. Control. Fusion **48**, S87 (2006).
13. C. Silva, J. C. Hillesheim, C. Hidalgo, E. Belonohy, E. Delabie, L. Gil, C. F. Maggi, L. Meneses, E. Solano, M. Tsallas, and JET Contributors, Nucl. Fusion **56**, 106026 (2016).
14. D. Prisiazhniuk, G. D. Conway, A. Krämer-Flecken, U. Stroth, and ASDEX Upgrade Team, Plasma Phys. Control. Fusion **60**, 075003 (2018).
15. J. Seidl, J. Krbec, M. Hron et al. (Collaboration), Nucl. Fusion **57**, 126048 (2017).
16. A. V. Melnikov, C. Hidalgo, L. G. Eliseev et al. (Collaboration), Nucl. Fusion **51**, 083043 (2011).
17. A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, S. V. Perfilov, S. E. Lysenko, R. V. Shurygin, V. N. Zenin, S. A. Grashin, L. I. Krupnik, A. S. Kozachek, R. Yu. Solomatin, A. G. Elfimov, A. I. Smolyakov, M. V. Ufimtsev, and The HIBP Team, Nucl. Fusion **55**, 063001 (2015).
18. А. В. Мельников, В. А. Вершков, С. А. Грашин, М. А. Драбинский, Л. Г. Елисеев, И. А. Земцов, В. А. Крупин, В. П. Лахин, С. Е. Лысенко, А. Р. Немец, М. Р. Нургалиев, Н. К. Харчев, Ф. О. Хабанов, Д. А. Шелухин, Письма в ЖЭТФ **115**, 360 (2022).
19. N. Winsor, J. L. Johnson, and J. M. Dawson, Phys. Fluids **11**, 2448 (1968).
20. S. Wang, Phys. Rev. Lett. **97**, 085002 (2006); Erratum: Phys. Rev. Lett. **97**, 129902 (2006).
21. C. Wahlberg, Phys. Rev. Lett. **101**, 115003 (2008).
22. R. G. F. Sgalla, A. I. Smolyakov, A. G. Elfimov, and M. F. Bashir, Phys. Lett. A **377**, 303 (2013).
23. H. Ren, Phys. Plasmas **21**, 044505 (2014).
24. V. P. Lakhin and E. A. Sorokina, Phys. Plasmas **25**, 072111 (2018).
25. A. Fujisawa, T. Ido, A. Shimizu et al. (Collaboration), Nucl. Fusion **47**, S718 (2007).
26. М. А. Драбинский, Характеристики геодезической акустической моды и квазикогерентной моды колебаний плазмы токамака Т-10 с омическим и СВЧ-нагревом: дис. канд. физ.-мат. наук: 1.3.9., М.

- (2023);  
[http://nrcki.ru/files/pdf/Diss\\_DMA.pdf](http://nrcki.ru/files/pdf/Diss_DMA.pdf)
27. В. Д. Шафранов, ЖЭТФ **33**, 710 (1957).
28. E. Hameiri, Phys. Fluids **26**, 230 (1983).
29. J. P. Goedbloed and A. Lifschitz, Phys. Plasmas **4**, 3544 (1997).
30. В. И. Ильгисонис, Ю. И. Поздняков, Физика плазмы **28**, 99 (2002).
31. L. Guazzotto and R. Betti, Phys. Plasmas **12**, 056107 (2005).
32. J. W. Haverkort, H. J. de Blank, and B. Koren, J. Comput. Phys. **231**, 981 (2012).
33. В. П. Лахин, Е. А. Сорокина, В. И. Ильгисонис, Л. В. Коновалцева, Физика плазмы **41**, 1054 (2015).
34. V. I. Ilgisonis, V. P. Lakhin, N. A. Marusov, A. I. Smolyakov, and E. A. Sorokina, Nucl. Fusion **62**, 066002 (2022).
35. V. P. Lakhin, V. I. Ilgisonis, and A. I. Smolyakov, Phys. Lett. A **374**, 4872 (2010).
36. P. Manz, M. Ramisch, and U. Stroth, Phys. Rev. Lett. **103**, 165004 (2009).
37. А. Б. Мельников, Л. Г. Елисеев, С. Е. Лысенко, С. В. Перфилов, Р. В. Шурыгин, Л. И. Крупник, А. С. Козачок, А. И. Смоляков, Письма в ЖЭТФ **100**, 633 (2014).
38. A. V. Melnikov, M. A. Drabinskiy, L. G. Eliseev, P. O. Khabanov, N. K. Kharchev, L. I. Krupnik, J. L. De Pablos, A. S. Kozachek, S. E. Lysenko, A. Molinero, G. B. Igonkina, and M. M. Sokolov, Fusion Eng. Des. **146 Part A**, 850 (2019).
39. H. L. Berk, C. J. Boswell, D. Borba, A. C. A. Figueiredo, T. Johnson, M. F. F. Nave, S. D. Pinches, S. E. Sharapov, and JET EFDA contributors, Nucl. Fusion **46**, S888 (2006).
40. A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, S. E. Lysenko, S. V. Perfilov, D. A. Shelukhin, V. A. Vershkov, V. N. Zenin, L. I. Krupnik, N. K. Kharchev, and HIBP team, J. Phys. Conf. Ser. **591**, 012003 (2015).
41. A. V. Melnikov, L. G. Eliseev, S. A. Grashin, M. A. Drabinskiy, P. O. Khabanov, N. K. Kharchev, V. A. Krupin, S. E. Lysenko, A. R. Nemets, M. R. Nurgaliev, D. A. Ryzhakov, R. V. Shurygin, N. A. Soloviev, V. A. Vershkov, and T-10 TEAM, 28th IAEA Fusion Energy Conference (FEC 2020). May 10–15, 2021. Virtual Event. <https://conferences.iaea.org/event/214/contributions/17104/>.
42. R. A. Stern and N. Tzoar, Phys. Rev. Lett. **17**, 903 (1966).
43. S. A. Neyfeh and A. H. Neyfeh, International Journal of Bifurcation and Chaos **3**, 417 (1993).
44. A. H. Neyfeh and D. T. Mook, Transactions of ASME **117**, 186 (1995).
45. H. F. Hu, W. J. Staszewski, N. Q. Hu, R. B. Jenal, and G. J. Qin, Smart Mater. Struct. **19**, 065017 (2010).
46. M. Bagheri, M. Poot, M. Li, W. P. Pernice, and H. X. Tang, Nature Nanotech. **6**, 726 (2011).
47. Б. Б. Кадомцев, Коллективные явления в плазме, Наука, М. (1976).
48. A. S. Bakai, Nucl. Fusion **10**, 53 (1970).

# Кластеризация дефектов и кристаллитов в двумерной жидкости Юкавы

Б. А. Клумов<sup>1)</sup>

Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 сентября 2024 г.

После переработки 11 сентября 2024 г.

Принята к публикации 3 октября 2024 г.

Для двумерной жидкости Юкавы впервые рассматриваются различные свойства кристаллических кластеров (т.е. кластеров, состоящих из частиц с 6-ю ближайшими соседями). Свойства таких кластеров рассматриваются в широком диапазоне температур, начиная с расплава. С ростом температуры наблюдается медленное падение концентрации кристаллических частиц (которые заметно превалируют в расплаве) и рост концентрации дефектов, что приводит к образованию в рассматриваемой двумерной жидкости крупных кластеров, состоящих из дефектов и к деградации крупных кристаллических кластеров. При этом в узком температурном диапазоне резко меняется их характерный размер и форма. Проводится сравнительный анализ кристаллических кластеров с кластерами, состоящими из топологических дефектов, получены их распределения по размерам и другие структурные характеристики.

DOI: 10.31857/S0370274X24110049, EDN: LAEGVB

Поведение двумерных систем – одна из важнейших проблем физики конденсированного состояния. Двумерные и квазидвумерные системы интенсивно исследуются начиная с пионерских теоретических работ [1–6], за которые Костерлицу и Таулессу была вручена Нобелевская премия по физике за 2016 г. В подавляющем большинстве таких работ основное внимание уделяется механизму и свойствам фазового перехода “кристалл–жидкость” в разных двумерных системах и физике образования и свойствам промежуточной (между кристаллом и жидкостью) гексагональной фазы (например, [7–14]).

Свойства же двумерной жидкости, особенно жидкости вдали от кривой плавления изучены намного хуже [15]. Известно [16, 17], что в расплатах двумерных плотно упакованных систем (таких как, например, кулоновские системы, модельные системы Юкавы, мягкие и твердые сферы и др.) содержится около 80 % кристаллических частиц (т.е. частиц с 6-ю ближайшими соседями), доля которых медленно (логарифмически) падает с ростом температуры. Это является фундаментальным отличием таких систем от трехмерных систем с плотной упаковкой (в расплатах которых доля кристаллических атомов ничтожно мала). Это обстоятельство в значительной степени определяет физические свойства двумерных жидкостей [18].

В настоящей работе изучаются свойства кристаллических кластеров и кластеров, состоящих из дефектов в двумерной плотно упакованной жидкости. Отметим, что двумерные системы с плотной упаковкой имеют в твердотельном состоянии треугольную (гексагональную) решетку. Здесь, в качестве примера, используется модельная система с отталкивающим потенциалом Юкавы (Дебая–Хюккеля); такие системы часто используется для описания двумерной и трехмерной коллоидной и комплексной (пылевой) плазмы (например, [19–21]). Парное взаимодействие частиц в системе Юкавы описывается потенциалом:

$$U(r) = (Q/r) \exp(-r/\lambda), \quad (1)$$

где  $Q$  – заряд частицы (заряд и масса всех микрочастиц считаются одинаковыми), а  $\lambda$  – длина экранирования. Известно, что фазовое состояние такой системы описывается двумя параметрами – параметром неидеальности  $\Gamma = Q^2 \times \exp(-\kappa)/(TD)$  и параметром экранировки  $\kappa = D/\lambda$ , где  $D$  – среднее межчастичное расстояние в системе, а  $T$  – температура частиц. В настоящей работе основным инструментом получения жидкостных конфигураций атомов является метод классической молекулярной динамики, реализованный для канонического ансамбля (NVT) с термостатом Нозе–Хувера (Nose–Hoover) и периодическими граничными условиями [22]. Типичное число микрочастиц в исследуемой двумерной жидкости порядка  $N_p \sim 10^5$ , что заметно выше современных экспе-

<sup>1)</sup>e-mail: klumov@ihed.ras.ru

риментальных возможностей, но дает необходимую статистику для описания дефектов и кристаллических частиц в системе и кластеров, из них состоящих.

При нулевой температуре двумерная система Юкавы при всех значениях параметра экранировки  $\kappa$  представляет из себя кристалл с треугольной (гексагональной решеткой) и 6-ю ближайшими соседями у каждого атома, которые расположены в вершинах правильного шестиугольника. При конечной температуре в такой системе появляются топологические дефекты, в которых число ближайших соседей отличается от шести. Ближайшие соседи для двумерных систем легко определяются с помощью метода Вороного [23], при котором двумерное пространство, занятое частицами, разбивается на многогранники, а каждой частице системы соответствует выпуклый многоугольник, число сторон которого равно числу ближайших соседей  $n_{nb}$ . Все частицы с числом  $n_{nb} \neq 6$  считаются дефектными, а с  $n_{nb} = 6$  – кристаллическими. Концентрации таких частиц являются важной характеристикой фазового состояния двумерной системы [24, 25]. При моделировании происходило плавление двумерного кристалла, и полученный равновесный расплав (для его получения использовалось примерно  $10^7$  временных шагов) использовался в качестве начальной конфигурации жидкости [16], которая нагревалась затем до температур  $T \simeq 10 T_m$ , где  $T_m$  – температура плавления системы. Для количественного описания системы удобно использовать приведенную температуру  $T^* \equiv T/T_m$ , которая при моделировании менялась от 1 до 10. Недавно [17] было показано, что распределение дефектов по размерам и их концентрация в двумерной жидкости Юкавы не зависят от параметра экранировки  $\kappa$ , а определяются только значением приведенной температуры  $T^*$  (т.е. указанные характеристики являются универсальными при заданной  $T^*$ ). Это позволяет, исследуя кластеризацию дефектов и кристаллитов, ограничиться при моделировании одним значением  $\kappa$ . Здесь все представленные результаты моделирования относятся к случаю, когда параметр экранировки  $\kappa = 1$ .

На рисунке 1 показаны зависимости от приведенной температуры  $T^*$  таких важных характеристик двумерной жидкости, как полная концентрация  $n_d$  дефектных частиц (т.е. частиц с  $n_{nb} \neq 6$ ), концентрация дефектов, входящих в дислокации (в пары 5–7, которые состоят из двух частиц с 5-ю и 7-ю ближайшими соседями), и концентрация  $n_{cr}$  кристаллических частиц (так называемых 6-fold atoms с  $n_{nb} = 6$ ). Видно, что с ростом температуры концентрация дефектных частиц медленно (логарифмически) и мо-

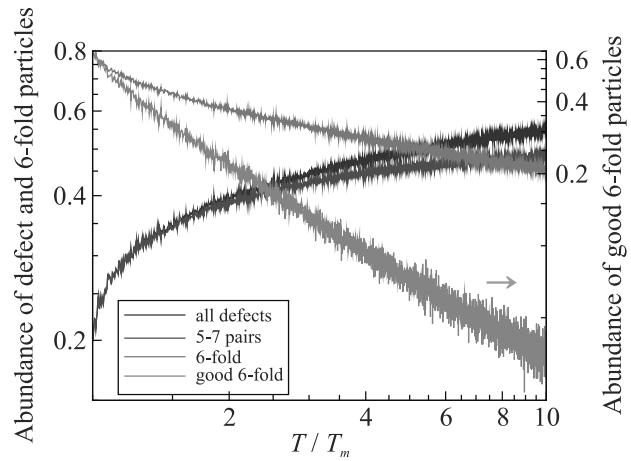


Рис. 1. (Цветной онлайн) Двумерная жидкость Юкавы на разных расстояниях от линии плавления (в единицах приведенной температуры  $T^* = T/T_m$ , где  $T_m$  – температура плавления). Представлены относительные концентрации  $n_d$  всех дефектных частиц (т.е. частиц с числом ближайших соседей  $n_{nb} \neq 6$ ) (синяя кривая), дефектных частиц, входящих в дислокации (в пары из дефектов 5–7) (красная кривая), кристаллитов – частиц с 6-ю ближайшими соседями ( $N_{nb} = 6$ ) (зеленая кривая) и “хороших” кристаллитов – частиц, у которых  $n_{nb} = 6$  и у центральной частицы и у всех 6-ти ближайших соседей (оливковая кривая, обсуждается в тексте). С ростом температуры концентрация дефектных частиц медленно (логарифмически) растет, а концентрация кристаллитов соответственно падает. Видно, что до  $T^* \sim 6$  в системе доминируют кристаллиты (а среди дефектных частиц – частицы, входящие в дислокации 5–7; можно также показать, что при  $T^* \geq 2$  появляются также точечные дефекты с  $n_{nb} = 4, 8$ , но их доля относительно мала). Представленные кривые универсальны в рассмотренном диапазоне температур  $T^*$  и не зависят от параметра экранировки  $\kappa$

нотонно растет – при изменении  $T^*$  от 1 до 10, концентрация  $n_d$  меняется относительно мало от примерно 0.2 до 0.5, что является следствием размерности системы. Концентрация же кристаллических частиц  $n_{cr}$  монотонно спадает с ростом  $T^*$ , выходя на степенной спад при  $T^* > 2$  и сравниваясь с  $n_d$  при  $T^* \simeq 6$  (а с концентрацией дефектных частиц в дислокациях при  $T^* \simeq 7$ ). При  $T^* < 2$  ключевыми дефектными частицами в такой жидкости являются частицы, входящие в дислокации, при более высоких температурах за счет диссоциации кластеров из дефектов появляются точечные дефекты (можно показать, что доминируют дефекты с  $n_{nb} = 4$  и 8).

Дополнительно к кристаллическим частицам здесь вводится важное понятие – “хороший” кристаллит, которым называется частица с 6-ю

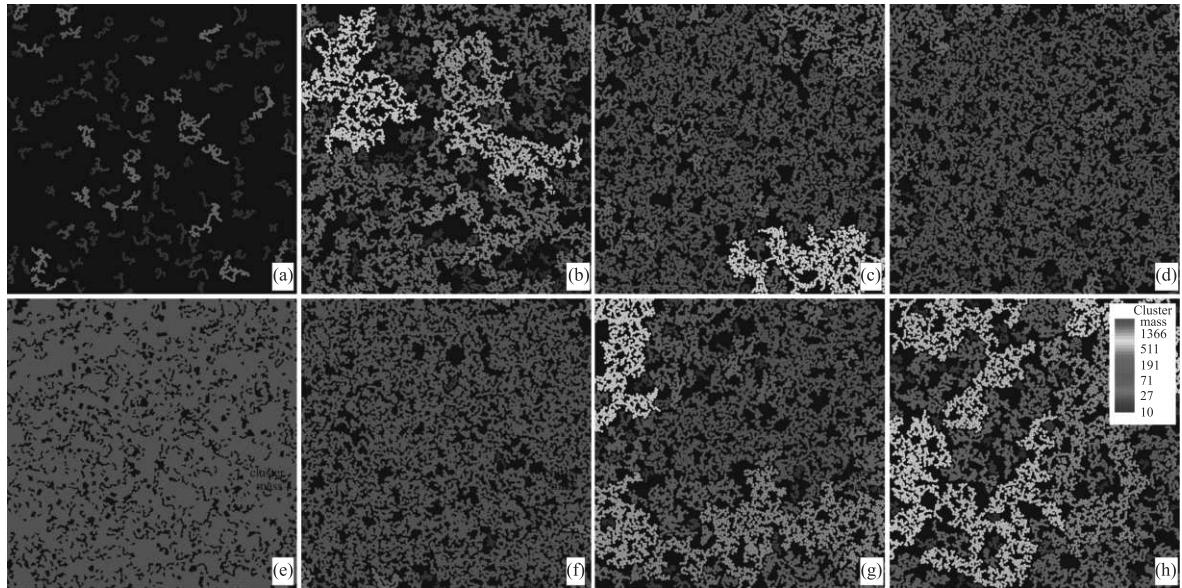


Рис. 2. (Цветной онлайн) Двумерная жидкость Юкавы при разных приведенных температурах  $T^* = T/T_m$ , где  $T_m$  – температура плавления. Показано пространственное распределение кластеров из дефектов (верхняя панель, (а)–(д)) и кристаллитов (нижняя панель, (е)–(г)) при  $T^* = 1$  ((а), (е)),  $T^* = 3$  ((б), (ф)),  $T^* = 4$  ((с), (г)) и  $T^* = 5$  ((д), (г)) соответственно. Цвет каждого кластера определяется числом  $N$  входящих в него частиц и меняется от синего к красному при увеличении  $N$ . В расплаве ( $T^* = 1$ ) кластеры из дефектов относительно небольшие (здесь показаны только кластеры с  $N > 10$ ), а кристаллический кластер один и включает практически все кристаллические частицы системы. С ростом температуры наблюдается аггломерация дефектов (в основном дислокаций) в более крупные кластеры с образованием при  $T^* \approx 5$  одного крупного кластера. Кристаллические кластеры проявляют обратную тенденцию: крупный кластер деградирует и разрушается с образованием более мелких кластеров. Отметим, что при  $T^* \approx 5$  ((д), (г)) концентрации дефектных и кристаллических частиц примерно одинаковы при качественно разном виде соответствующих кластеров

ближайшими соседями, у которой дополнительно все 6 соседних частиц также являются кристаллическими (т.е. с  $n_{\text{nb}} = 6$ ). Концентрация  $n_{\text{cr}}^g$  таких частиц показана на рис. 1 (оливковая кривая), хорошо видно, что  $n_{\text{cr}}^g$  спадает с ростом  $T^*$  гораздо сильнее, чем концентрация кристаллических частиц  $n_{\text{cr}}$ . Отметим, что в расплаве (жидкости вблизи линии плавления) большая часть (около 75 %) кристаллических частиц входит в состав “хороших” кристаллитов, поведение кластеров из таких кристаллитов будет обсуждаться ниже, а сначала обсудим свойства кластеров, состоящих из дефектных частиц и из кристаллических.

В двумерном расплаве системы Юкавы дефектных частиц примерно 20 %, среди них доминируют дислокации [17, 24], доля аггломератов (т.е. крупных кластеров) невелика, но с ростом температуры дислокации объединяются и образуют более крупные кластеры из дефектов. Алгоритм поиска всех частиц, входящих в рассматриваемый кластер, является довольно сложным [24] и здесь приводятся только результаты его применения. Отметим, указанный

метод успешно использовался при описании твердотельных кластеров, образующихся при охлаждении ряда многокомпонентных трехмерных расплавов [26, 27]. Многообразие крупных кластеров обоих рассматриваемых видов иллюстрирует рис. 2, на котором показано, как в двумерной жидкости Юкавы при разных температурах выглядят кластеры, состоящие как из дефектных частиц (верхняя панель), так и из кристаллических (нижняя панель). Частицы, принадлежащие одному и тому же кластеру, выделены отдельным цветом, который определяется числом частиц  $N$ , входящих в кластер, и меняется от синего цвета к красному при увеличении размера кластера (числа  $N$ ). Видно, что в расплаве (при  $T^* \approx 1$ ) кластеры из дефектов относительно небольшие (на рис. 2а показаны только кластеры с  $N > 10$ ), а кристаллический кластер один и включает практически все кристаллические частицы системы. С ростом температуры наблюдается объединение дефектов (которыми при рассматриваемых температурах системы в основном являются дислокации) в более крупные кластеры с образованием одного крупно-

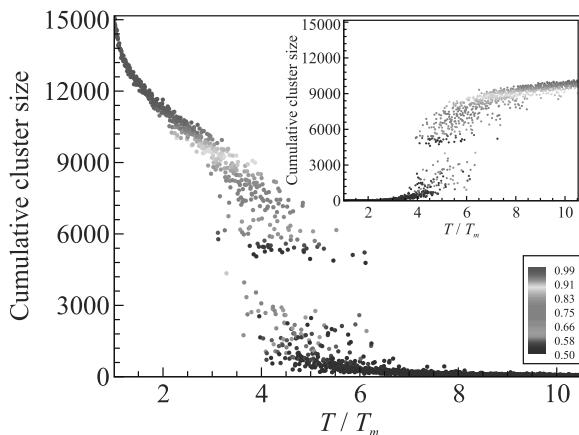


Рис. 3. (Цветной онлайн) Двумерная жидкость Юкавы. Кумулятивные характеристики кластеров, состоящих из кристаллических частиц в зависимости от приведенной температуры  $T^*$ . Показано изменение с температурой параметра  $N_{1/2}$ , который определяется из условия, что в кластерах с  $N > N_{1/2}$  содержится половина всех частиц (дефектных или кристаллических, в зависимости от рассматриваемых кластеров). Цвет частиц определяется долей кластеров, состоящих из числа частиц больше  $N$ , и меняется от синего к красному в диапазоне ( $\frac{1}{2} \div 1$ ). В случае расплава в одном крупном кластере содержатся почти все кристаллические частицы. С ростом температуры такой кластер разрушается и деградирует, так что в системе возникают кластеры разных размеров, что видно из наблюдаемого кроссовера в поведении кумулянта  $N_{1/2}$  в диапазоне температур  $T^* \simeq 4 \div 6$ , в котором величина  $N_{1/2}$  резко падает. На вставке представлены те же зависимости, но для кластеров из дефектов. Так же, как и в случае кристаллических кластеров, наблюдается резкое изменение параметра  $N_{1/2}$  в том же температурном интервале ( $4 \div 6$ )

го кластера при  $T^* \simeq 5$ . Кристаллические кластеры проявляют обратную тенденцию: крупный кластер деградирует и разрушается на более мелкие с ростом температуры. Отметим, что при  $T^* \simeq 5$  (рис. 2d, h) концентрации дефектов и кристаллических частиц примерно одинаковы, при качественно совершенно разном виде соответствующих кластеров. Дополнительно, фрактальная структура кластеров обоих типов также хорошо видна на данном рисунке и отражает переколяционный характер их формирования.

Для количественного описания данных кластеров удобно использовать кумулятивные распределения  $C(>N)$ , которые определяют долю частиц, входящих в кластеры, содержащие больше  $N$  атомов и интегральные характеристики такого распределения, например, величину  $N_{1/2}$ , которая определяется из условия  $C(< N_{1/2}) = \frac{1}{2}$ , т.е. в кластерах с  $N > N_{1/2}$  содержится половина всех частиц (дефектных или

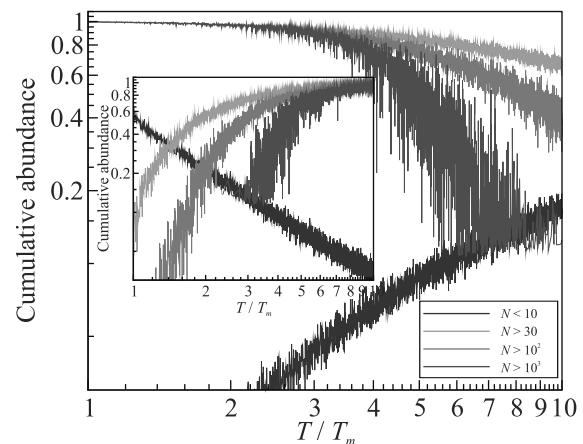


Рис. 4. (Цветной онлайн) Двумерная жидкость Юкавы. Представлены кумулянты  $C(>N)$  для ряда значений  $N$  в зависимости от приведенной температуры  $T^*$  для кластеров, состоящих из кристаллических частиц. Кумулянт  $C(>N)$  определяет долю всех кластеров в системе, число частиц в которых превышает  $N$ . Показаны распределения для  $N < 10$  (синяя кривая),  $N > 30$  (бирюзовая кривая),  $N > 10^2$  (зеленая кривая) и  $N > 10^3$  (красная кривая). На вставке показаны те же распределения, но для кластеров из дефектов

кристаллических, в зависимости от рассматриваемого кластера). Такие кумулятивные характеристики более наглядны, чем, например, спектр кластеров по размерам (особенно в случаях вырождения, когда почти все частицы входят в один кластер). На рисунке 3 показаны зависимости кумулянта  $N_{1/2}$  в зависимости от приведенной температуры  $T^*$  для обоих видов кластеров. Обе зависимости демонстрируют важный результат – резкое изменение (кроссовер) разнообразия кластеров в исследуемой двумерной жидкости при температурах  $T^* \simeq 4 \div 6$ . Красным цветом на данном рисунке показаны температурный интервал, в котором в системе существует только один крупный кластер (для кластеров обоих видов), а синим – область разнообразия, где присутствуют кластеры самых разных размеров. Кумулятивные распределения  $C(>N)$  для разных значений  $N$  показаны на рис. 4. для кластеров обоих видов (на вставке показаны зависимости  $C(>N)$ , но для кластеров, состоящих из дефектов). Хорошо видно, что с ростом температуры концентрация небольших кластеров растет среди кристаллитов и падает среди кластеров из дефектов, крупные же кластеры появляются и исчезают в одном температурном интервале, указанном выше.

В заключение рассмотрим свойства кластеров, состоящих из “хороших” кристаллических частиц, концентрация которых показана на рис. 1 (оливко-

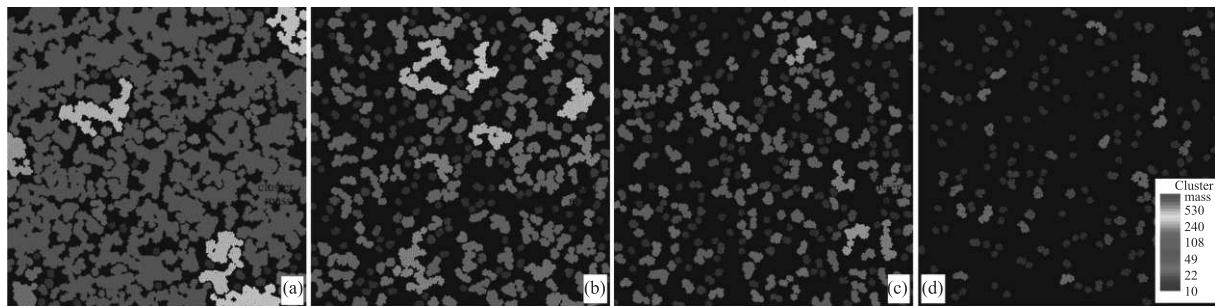


Рис. 5. (Цветной онлайн) Двумерная жидкость Юкавы. Пространственное распределение кластеров, состоящих из “хороших” кристаллитов (концентрация которых представлена на рис. 1) при разных значениях приведенной температуры системы  $T^*$ . Цвет кластера определяется числом частиц  $N$ , входящих в кластер и меняется от синего к красному при увеличении  $N$ . Рисунки соответствуют значениям  $T^* \simeq 1$  (расплав) (а),  $T^* \simeq 1.5$  (б),  $T^* \simeq 2$  (в) и  $T^* \simeq 3$  (г), соответственно. В расплаве число частиц, входящих в “хорошие” кристаллиты, близко (около 75 %) к полному числу кристаллических частиц, но уже при относительно небольшом повышении температуры, такие кластеры (в отличие от кристаллических) разрушаются и исчезают из системы, что выделяет двумерную жидкость Юкавы вблизи линии плавления в отдельный класс, с точки зрения свойств кристаллитов в ней

вая кривая). Такие кристаллиты также могут объединяться в кластеры, пространственное распределение которых при разных температурах показано на рис. 5. На рисунке 5а показаны такие кластеры в расплаве двумерной системы Юкавы (при  $T^* \simeq 1$ ). Здесь, как и выше, цвет кластера определяется числом частиц, входящих в кластер и меняется от синего к красному при его увеличении. Практически все “хорошие” кристаллиты объединены в расплаве в один большой кластер, который выделен красным цветом. Он содержит примерно половину всех кристаллических частиц системы. Можно показать, что все “хорошие” кристаллиты (центральная частица и ее 6 ближайших соседей) имеют форму, близкую к гексагональной, так что двумерный расплав системы Юкавы содержит в своем составе большие кластеры из сильноупорядоченных атомов. Однако при повышении температуры число “хороших” кристаллитов в системе быстро падает (гораздо быстрее, чем число кристаллических частиц) и характерные размер таких кластеров также заметно уменьшаются, что иллюстрируют рис. 5б, в и г, на которых они показаны при температурах  $T^* \simeq 1.5$ ,  $T^* \simeq 2$  и  $T^* \simeq 3$  соответственно. Таким образом двумерная жидкость вблизи линии плавления сильно отличается с от жидкости в остальной части фазовой диаграммы (находящейся при более высоких температурах).

В настоящей работе, на примере двумерной системы Юкавы, впервые рассмотрены свойства кластеров (как кристаллических, так и кластеров, состоящих из дефектов), образующихся в двумерной плотно упакованной жидкости в широком диапазоне температур системы. Исследованы распределения ука-

занных кластеров по размерам и изучены структурные свойства кластеров обоих видов. В диапазоне приведенных температур  $T^* \simeq (4 \div 6)$  обнаружен переход (кроссовер), в котором резко меняются свойства кластеров. Наконец, для описания кристаллических кластеров предложено использовать концепцию “хороших кристаллитов”, что позволяет выделить двумерную жидкость вблизи линии плавления в отдельный класс, с точки зрения свойств кристаллитов в ней.

**Финансирование работы.** Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (соглашение с Объединенным институтом высоких температур Российской академии наук № 075-00270-24-00.)

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

1. V. L. Berezinskii, Sov. Phys. JETP **32**, 493 (1971).
2. V. L. Berezinskii, Sov. Phys. JETP **34**, 610 (1972).
3. J. M. Kosterlitz, D. J. J. Thouless, Phys. C **6**, 1181 (1973).
4. B. I. Halperin and D. R. Nelson, Phys. Rev. Lett. **41**, 121 (1978).
5. D. R. Nelson and B. I. Halperin, Phys. Rev. B **19**, 2457 (1979).
6. A. P. Young, Phys. Rev. B **19**, 1855 (1979).
7. S. T. Chui, Phys. Rev. B **28**, 178 (1983).
8. K. J. Strandburg, Rev. Mod. Phys. **60**, 161 (1988).
9. K. Zahn, R. Lenke, and G. Maret, Phys. Rev. Lett. **82**(13), 2721 (1999).
10. U. Gasser, ChemPhysChem **11**, 963 (2010).

11. Z. Wang, A.M. Alsayed, A.G. Yodh, and Y. Han, *J. Chem. Phys.* **132**, 154501 (2010).
12. S.C. Kapfer and W. Krauth, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 035702 (2015).
13. A.L. Thorneycroft, J.L. Abbott, D.L. Aarts, and R.P. Dullens, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 158001 (2017).
14. B.H. Рыжов, Е.Е. Тареева, Ю.Д. Фомин, Е.Н. Циок, *УФН* **187**, 921 (2017).
15. P. Hartmann, G.J. Kalman, Z. Donko, and K. Kutasi, *Phys. Rev. E* **72**, 026409 (2005).
16. B.A. Klumov, *JETP Lett.* **115**(2), 108 (2022).
17. B.A. Klumov, *JETP Lett.* **116**(10), 703 (2022).
18. B.A. Klumov, *Phys.-Uspekhi* **66**, 288 (2023).
19. V.E. Fortov and G.E. Morfill, *Complex and dusty plasmas: From Laboratory to Space*, CRC Press, N.Y. (2010).
20. C.N. Likos, *Phys. Rep.* **348**, 267 (2001).
21. A.P. Hyppinen and M. Dijkstra, *Phys. Rev. E* **68**, 021407 (2003).
22. S. Plimpton, *J. Comput. Phys.* **117**(1), 1 (1995).
23. G. Voronoi, *J. Reine Angew. Math.* **134**, 198 (1908).
24. B.A. Klumov, *Phys.-Uspekhi* **53**(10), 1053 (2010).
25. W. Qi, A.P. Gantapara, and M. Dijkstra, *Soft Matter* **10**, 5449 (2014).
26. R.E. Ryltsev, B.A. Klumov, N.M. Chtchelkatchev, and K.Yu. Shunyaev, *J. Chem. Phys.* **149**, 164502 (2018).
27. B.A. Klumov, R.E. Ryltsev, and N.M. Chtchelkatchev, *J. Chem. Phys.* **149**, 134501 (2018).

# Связанные состояния и рассеяние магнонов на сверхпроводящем вихре в гетероструктурах ферромагнетик–сверхпроводник

Д. С. Катков<sup>+,\*</sup>, С. С. Апостолов<sup>+,×</sup>, И. С. Бурмистров<sup>+,×1)</sup>

<sup>+</sup>Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау, 142432 Черноголовка, Россия

<sup>\*</sup>Московский физико-технический институт, 141700 Москва, Россия

<sup>×</sup>Лаборатория физики конденсированного состояния, Национальный исследовательский университет Высшая школа экономики, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 сентября 2024 г.

После переработки 16 сентября 2024 г.

Принята к публикации 19 сентября 2024 г.

Изучен магнитный спектр в тонкой гетероструктуре ферромагнетик–сверхпроводник в присутствии сверхпроводящего вихря. Для этого используется гамильтониан типа Боголюбова–де Жена, описывающий магноны в присутствии внешнего магнитного поля и неоднородного профиля намагниченности, создаваемого этим вихрем. Показано, что на вихре образуются связанные состояния магнонов подобно тому, как заряженный центр создает связанные состояния электронов из-за экранированного кулоновского взаимодействия в двумерном электронном газе. Число этих локализованных состояний определяется только материальными параметрами ферромагнитной пленки. Также решена задача рассеяния для плоской падающей спиновой волны и вычислены полное и транспортное сечение рассеяния. Показано, что профиль намагниченности, создаваемый вихрем в пленке кирального ферромагнетика приводит к асимметричному рассеянию магнонов. Обсуждены особенности квантовой задачи рассеяния, соответствующие орбитальному обращению в классическом пределе.

DOI: 10.31857/S0370274X24110057, EDN: AGNCGO

Исследование взаимного влияния магнетизма и сверхпроводимости привлекает интерес исследователей на протяжении практически полу века [1]. Последние десятилетия фокус исследований сместился в сторону физических явлений в гетероструктурах сверхпроводник–ферромагнетик (SF) [2–9]. В таких структурах обе подсистемы могут содержать топологические объекты: вихри в сверхпроводящей и скирмионы в ферромагнитной пленках [10]. Связанные пары из скирмиона и абрикосовского вихря могут образовываться под действием спин-орбитального взаимодействия и эффекта близости [11, 12] или под действием полей рассеяния [13–19]. Недавно такое устойчивое сосуществование скирмиона и вихря было экспериментально реализовано в гетероструктурах  $[Ir_1Fe_{0.5}Co_{0.5}Pt_1]_{10}/MgO/Nb$  [20, 21] и  $[CoFeB/Ir/Ta]_7/Nb$  [22]. Дополнительной мотивацией таких исследований служит тот факт, что скирмионы [23–28] и пары скирмион–вихрь [29, 30] могут содержать майорановские моды, которые предложено использовать в качестве платформы для масштабируемых квантовых вычислений [31, 32].

Продолжительное время спиновые волны воспринимались как интересный и полезный инструмент изучения магнетизма [33]. Недавно существенный прогресс был достигнут в использовании спиновых волн как носителей информации на наномасштабах, что привело к образованию новой области исследований – магнонники [34–36]. Контроль и манипуляции спиновыми волнами осуществляются внешними (градиент намагниченности [37]) или внутренними (доменные стенки [38–41], скирмионы [42–44]) неоднородностями в профилях намагниченности.

Общеизвестно [45, 46], что флуктуации сверхпроводящего параметра порядка влияют на спиновые волны в ферромагнитном сверхпроводнике [45, 46]. Аналогичный эффект возникает в случае пространственно разделенных сверхпроводимости и магнетизма. Магнитный спектр в SF гетероструктурах испытывает влияние сверхпроводящей пленки через несколько механизмов: (i) изменение полей рассеяния (или благодаря эффекту Мейснера) [47–54], (ii) существование вихревой решетки в сверхпроводнике [55, 56] и (iii) из-за механизма спинового вращательного момента [57].

В настоящей работе, мотивированной недавними экспериментальными исследованиями [47, 48, 53, 55],

<sup>1)</sup>e-mail: burmi@itp.ac.ru

рассматривается тонкая SF гетероструктура и изучается магнитный спектр в ферромагнитной пленке в присутствии одиночного сверхпроводящего вихря. В отличие от работ [54, 56], в работе принимается во внимание, что однородный профиль намагниченности в ферромагнитной пленке изменяется [18] под действием пирловского вихря в сверхпроводнике [58]. Следуя работе [43], выводится и решается гамильтониан Боголюбова–де Жена (БдЖ), описывающий магноны в присутствии неоднородного профиля намагниченности и внешнего магнитного поля, создаваемого сверхпроводящим вихрем. Обнаруживается, что пирловский вихрь приводит к образованию связанных состояний, подобных связанным состояниям электронов на заряженном центре вследствие экранированного кулоновского взаимодействия в двумерном электронном газе [59]. Число связанных состояний ( $\approx 10$  для параметров эксперимента [20]) полностью определяется материальными параметрами ферромагнитной пленки.

Также в работе решается квантовая задача рассеяния для плоской падающей спиновой волны на возмущении магнитного порядка в магнитном поле, создаваемом вихрем. Вычисляется полное и транспортное сечения рассеяния. Обнаруживается, что создаваемая вихрем неоднородность профиля намагниченности приводит к асимметричности рассеяния в случае кирального ферромагнетика. Демонстрируется, что квантовая задача рассеяния имеет особенности, связанные с орбитальным движением в классическом пределе.

**Модель.** Рассмотрим гетероструктуру, состоящую из ферромагнитной (сверху) и сверхпроводящей (снизу) пленок. Чтобы пренебречь эффектом близости, предполагается наличие тонкого слоя изолятора между пленками (толщиной много меньше лондоновской глубины проникновения  $\lambda_L$ ). Основываясь на экспериментах, толщина сверхпроводящей пленки считается малой,  $d_S \ll \lambda_L$ . В сверхпроводящей пленке предполагается наличие пирловского вихря, при этом ферромагнитная пленка считается тоньше пирловской длины,  $\lambda = \lambda_L^2/d_S$ ,  $d_F \ll \lambda$ . Свободная энергия ферромагнитной пленки в этом случае выражается через единичный вектор направления намагниченности  $\mathbf{m}(\mathbf{r})$  и дается следующим выражением

$$\begin{aligned} \mathcal{F}[\mathbf{m}] = d_F \int d^2\mathbf{r} \{ & A(\nabla \mathbf{m})^2 + K(1-m_z^2) + \\ & + D[m_z \nabla \cdot \mathbf{m} - (\mathbf{m} \cdot \nabla)m_z] - M_s \mathbf{m} \cdot \mathbf{B}_V|_{z=+0} \}. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь константы  $A > 0$  и  $K > 0$  соответствуют обменному взаимодействию и перпендикуляр-

ной анизотропии<sup>2)</sup> соответственно. Кроме того, в свободную энергию (1) добавлено взаимодействие Дзялошинского–Мории (DMI), величина которого определяется константой  $D$ . Ось  $z$  направлена перпендикулярно плоскости пленок.  $M_s$  соответствует намагниченности насыщения. Последний член в выражении (1) описывает эффект Зеемана в магнитном поле, создаваемом пирловским вихрем, расположенным в начале координат (квант магнитного потока  $\phi_0 = hc/2e$ ) [58, 61, 62],

$$\mathbf{B}_V = \phi_0 \operatorname{sgn}(z) \nabla \int \frac{d^2\mathbf{q}}{(2\pi)^2} \frac{e^{-q|z|+i\mathbf{q}\mathbf{r}}}{q(1+2q\lambda)}. \quad (2)$$

Заметим, что свободная энергия (1) обращается в нуль для ферромагнитного состояния  $m_z = 1$  в отсутствие пирловского вихря  $\mathbf{B}_V = 0$ .

В пределе тонких пленок удобно представлять магнитное поле в ферромагнитной пленке в виде  $\mathbf{B}_V|_{z=+0} = -(\phi_0/4\pi l_w \lambda)[b_r(r)\mathbf{e}_r + b_z(r)\mathbf{e}_z]$ , где  $b_r(r)$  и  $b_z(r)$  – безразмерные функции расстояния  $r$  до центра вихря,  $\mathbf{e}_r$ ,  $\mathbf{e}_\varphi$ , и  $\mathbf{e}_z$  – ортонормированные координатные вектора в полярной системе координат и  $l_w = \sqrt{A/K}$  – толщина доменной стенки. Функции  $b_{r,z}(r)$  выражаются через функции Бесселя второго рода ( $Y_\alpha$ ) и функции Струве ( $H_\alpha$ )

$$\begin{aligned} b_r &= -\frac{\pi l_w}{4\lambda} \left[ Y_1 \left( \frac{r}{2\lambda} \right) + H_{-1} \left( \frac{r}{2\lambda} \right) \right], \\ b_z &= \frac{l_w}{r} \left\{ 1 + \frac{\pi r}{4\lambda} \left[ Y_0 \left( \frac{r}{2\lambda} \right) - H_0 \left( \frac{r}{2\lambda} \right) \right] \right\}. \end{aligned} \quad (3)$$

Эти функции имеют следующие асимптотики:  $b_r \simeq b_z \simeq l_w/r$  для  $r \ll \lambda$ , и  $b_z \simeq 2\lambda b_r/r \simeq 4\lambda^2 l_w/r^3$  для  $r \gg \lambda$ . Далее, вместо точных выражений (3) используются приближенные формулы [63], которые корректно воспроизводят не только асимптотики, но и промежуточные участки функций:

$$b_z \simeq \frac{l_w}{r[1+r/(2\lambda)]^2}, \quad b_r \simeq \frac{l_w}{r[1+r/(2\lambda)]}. \quad (4)$$

**Магнитное состояние, возмущенное пирловским вихрем.** В связи с отсутствием азимутальной компоненты магнитного поля вихря, решение для направления намагниченности ферромагнетика ищется в виде  $\mathbf{m} = \mathbf{e}_r \sin \theta(r) + \mathbf{e}_z \cos \theta(r)$ . В результате минимизации  $\mathcal{F}[\mathbf{m}]$  в ур. (1) относитель-

<sup>2)</sup> Для тонкой ферромагнитной пленки можно учесть вклад поля размагничивания в константе эффективной перпендикулярной анизотропии,  $K = K_0 - 2\pi M_s^2$  [14, 16, 60].

но угла намагнченности  $\theta(r)$ , получается уравнение Эйлера–Лагранжа [18],

$$\frac{l_w^2}{r} \partial_r [r \partial_r \theta(r)] - \frac{(l_w^2 + r^2)}{2r^2} \sin 2\theta(r) + 2\epsilon \frac{\sin^2 \theta(r)}{r/l_w} + \gamma [b_z(r) \sin \theta(r) - b_r(r) \cos \theta(r)] = 0, \quad (5)$$

которое дополняется граничными условиями  $\theta(0) = \theta(\infty) = 0$ . Сила DMI определяется безразмерным параметром  $\epsilon = D/2\sqrt{AK}$ . Влияние пирловского вихря проявляется в безразмерном параметре  $\gamma = (l_w/\lambda)(M_s \phi_0/8\pi A)$ . С учетом того, что  $\gamma \sim 0.1$  в экспериментах [20], в дальнейшем рассматривается случай  $\gamma \ll 1$ .

В режиме  $\gamma \ll 1$ , возмущение однородного магнитного состояния, соответствующего  $\theta = 0$ , слабо:  $\theta = \theta_\gamma \ll 1$ . Тогда можно линеаризовать ур. (5) и получить:

$$\theta_\gamma(r) = \frac{\pi\gamma\lambda l_w}{4\lambda^2 + l_w^2} \left[ I_1\left(\frac{r}{l_w}\right) - L_{-1}\left(\frac{r}{l_w}\right) + \frac{4\lambda}{\pi l_w} K_1\left(\frac{r}{l_w}\right) + Y_1\left(\frac{r}{2\lambda}\right) + H_{-1}\left(\frac{r}{2\lambda}\right) \right], \quad (6)$$

где  $I_\alpha$  и  $K_\alpha$  обозначают модифицированные функции Бесселя первого и второго родов соответственно, а  $L_\alpha$  – модифицированную функцию Струве. Точное решение (6) упрощается как

$$\theta_\gamma(r) = -\gamma \begin{cases} [r/(2l_w)] \ln(l_w/r), & r \ll l_w, \\ l_w/r, & l_w \ll r \ll \lambda, \\ 2\lambda l_w/r^2, & r \gg \lambda. \end{cases} \quad (7)$$

**Магноны.** Магноны соответствуют малым отклонениям  $\delta \mathbf{m} = \mathbf{m} - \mathbf{m}_\gamma$  намагнченности  $\mathbf{m}$  от стационарного состояния  $\mathbf{m}_\gamma$ , определяемого  $\theta_\gamma$ . Для описания  $\delta \mathbf{m}$ , применяется подход из работы [43]. Вводится локальный ортогональный базис  $\mathbf{e}_1 = \mathbf{e}_\varphi$ ,  $\mathbf{e}_2 = [\mathbf{m}_\gamma \times \mathbf{e}_\varphi]$ , и  $\mathbf{e}_3 = \mathbf{m}_\gamma$ , а вектор намагнченности в произвольной точке плоскости  $\mathbf{r}$  параметризуется как

$$\mathbf{m} = \mathbf{e}_3 \sqrt{1 - 2|\psi|^2} + \mathbf{e}_+ \psi + \mathbf{e}_- \psi^*, \quad (8)$$

где  $\mathbf{e}_\pm = (\mathbf{e}_1 \pm i\mathbf{e}_2)/\sqrt{2}$ , а  $\psi(\mathbf{r})$  – комплексная функция. Подстановка параметризации (8) в выражение для свободной энергии (1) и разложение до второго порядка по  $\psi$  дает энергию спиновых волн. После восстановления динамической части задачи получается следующий лагранжиан в безразмерном мнимом времени [43]:

$$\mathcal{L}^{(2)} = \frac{dFK}{2} (\Psi^\dagger \sigma^z \partial_t \Psi + \Psi^\dagger \hat{H} \Psi), \quad (9)$$

который определяет динамику магнонов. Здесь были введены спинор  $\Psi = (\psi, \psi^*)^T$ , стандартные матрицы Паули  $\sigma^{x,y,z}$  и эффективный гамильтониан типа БдЖ:

$$\hat{H} = 1 + \frac{l_w^2}{r^2} - l_w^2 \Delta + 2i\sigma^z \frac{l_w^2}{r^2} \partial_\varphi + \hat{V}, \quad (10)$$

где  $\hat{V} = V_0 + \sigma^x V_x + 2i\sigma^z V_z \partial_\varphi$  является  $2 \times 2$  матричным потенциалом, с компонентами, зависящими от  $b_{r,z}$ ,  $\theta_\gamma$  и  $r$ :

$$\begin{aligned} V_0 &= -\gamma(b_z \cos \theta_\gamma + b_r \sin \theta_\gamma) - \frac{3}{2} \frac{l_w^2 + r^2}{r^2} \sin^2 \theta_\gamma \\ &\quad - \frac{l_w^2}{2} (\partial_r \theta_\gamma)^2 - \epsilon \left[ \frac{3 \sin(2\theta_\gamma)}{2r/l_w} + l_w \partial_r \theta_\gamma \right], \\ V_x &= \frac{l_w^2 + r^2}{2r^2} \sin^2 \theta_\gamma - \frac{l_w^2}{2} (\partial_r \theta_\gamma)^2 + \epsilon \left[ \frac{\sin(2\theta_\gamma)}{2r/l_w} - l_w \partial_r \theta_\gamma \right], \\ V_z &= -2 \frac{l_w^2}{r^2} \sin^2(\theta_\gamma/2) - \epsilon \frac{l_w}{r} \sin \theta_\gamma. \end{aligned} \quad (11)$$

Гамильтониан (10) обладает симметрией частица–дырка:  $\hat{H} = \sigma^x K \hat{H} \sigma^x K$ , где  $K$  обозначает комплексное сопряжение. В таком случае удобно искать решение динамического уравнения, соответствующего лагранжиану (9) в следующей форме:  $\Psi = e^{-tE} \tilde{\Psi} + e^{tE} \sigma^x K \tilde{\Psi}$ , где  $\tilde{\Psi}$  удовлетворяет уравнению типа БдЖ:

$$\hat{H} \tilde{\Psi} = E \sigma^z \tilde{\Psi}. \quad (12)$$

Если  $\tilde{\Psi}_E$  – решение ур. (12) с энергией  $E$ , то состояние  $\tilde{\Psi}_{-E} = \sigma^x K \tilde{\Psi}_E$  также является решением этого уравнения с энергией  $-E$ .

В отсутствие пирловского вихря,  $b_{r,z} = 0$ , однородное ферромагнитное состояние соответствует  $\theta = 0$ . Тогда гамильтониан (10) сводится к

$$\hat{H}_0 = 1 + l_w^2 \left[ -\partial_r^2 - \frac{1}{r} \partial_r + \frac{1}{r^2} (-i\partial_\varphi - \sigma^z)^2 \right]. \quad (13)$$

Поскольку  $\hat{H}_0$  представляет из себя оператор Лапласа со сдвигом углового момента, нетрудно найти соответствующие собственные функции и энергии

$$\begin{aligned} E_{k,\pm} &= \pm(1 + k^2 l_w^2), & \tilde{\Psi}_{\mathbf{k},m,\pm} &= \tilde{\Psi}_\pm J_{m\pm}(kr) e^{im\varphi}, \\ \tilde{\Psi}_+ &= (1, 0)^T, & \tilde{\Psi}_- &= (0, 1)^T, & m_\pm &= m \mp 1, \end{aligned} \quad (14)$$

здесь  $J_\alpha$  обозначает функции Бесселя первого рода.

В пределе  $\gamma \ll 1$ , достаточно разложить потенциал  $\hat{V}$  до первого порядка по  $\theta_\gamma$ , оставляя только члены, пропорциональные  $\gamma$ . Таким образом получается:

$$\begin{aligned} V_0 &\simeq -\gamma b_z - \epsilon \left[ \frac{3l_w \theta_\gamma}{r} + l_w \partial_r \theta_\gamma \right], \\ V_x &\simeq \epsilon \left[ \frac{l_w \theta_\gamma}{r} - l_w \partial_r \theta_\gamma \right], & V_z &\simeq -\epsilon \frac{l_w \theta_\gamma}{r}. \end{aligned} \quad (15)$$

Интересно, что при  $r \gg l_w$  в потенциале  $\hat{V}$  главным оказывается член, пропорциональный  $b_z$ :  $\hat{V} \simeq -\gamma b_z$ . А именно, используя ур. (4) и (7), обнаруживается, что при  $l_w \ll r \ll \lambda$  члены, пропорциональные  $\theta_\gamma$  малы по параметру  $l_w/r \ll 1$ , в то время как при  $r \gg \lambda$  эти члены малы по параметру  $l_w/\lambda \ll 1$ . Лишь при  $r \sim l_w$  необходимо их учитывать как соизмеримые с ведущим приближением  $\gamma b_z$ . Поэтому исследование начинается с приближенного гамильтониана,

$$\hat{H} \simeq 1 + \frac{l_w^2}{r^2} - l_w^2 \Delta + 2i\sigma_z \frac{l_w^2}{r^2} \partial_\varphi - \gamma b_z, \quad (16)$$

а затем результаты обобщаются на гамильтониан (10) с  $\hat{V}$  из ур. (15), вычислением необходимых поправок от членов, пропорциональных  $\theta_\gamma$ .

Гамильтонианы такого типа, как в ур. (16) с точным (3) или приближенным (4) выражением для  $b_z$  активно изучались в контексте связанных состояний электронов на заряженных центрах с экранированным кулоновским взаимодействием в двумерном электронном газе [59, 63–67]. Далее используется приближенное выражение (4) для  $b_z$ .

**Локализованные магнитные состояния.** Эффективный экранированный кулоновский потенциал,  $\hat{V} \simeq -\gamma b_z$ , локализует магнитные состояния. При  $r \ll \lambda$  гамильтониан (16) соответствует задаче о двумерном атоме водорода,  $\hat{V} \simeq -\gamma l_w/r$ , для частицы с массой  $1/(2l_w^2)$  и зарядом  $\sqrt{\gamma l_w}$ . Энергии и волновые функции даются [68]

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}_{n,m,\pm} &= \tilde{\Psi}_\pm e^{im\varphi - \frac{2r}{na_\gamma}} \left( \frac{r}{na_\gamma} \right)^{|m_\pm|} L_{n_r}^{2|m_\pm|} \left( \frac{4r}{na_\gamma} \right), \\ E_{n,m,\pm} &= \pm \left( 1 - \frac{\gamma^2}{n^2} \right), \quad n = 2n_r + 2|m_\pm| + 1, \quad n_r = 0, 1, \dots \end{aligned} \quad (17)$$

Здесь  $L_n^a(x)$  обозначает полиномы Сонина–Лаггера,  $a_\gamma = 2l_w/\gamma$  – эффективный боровский радиус, а  $\tilde{\Psi}_\pm$  и  $m_\pm$  определены в ур. (14).

В первом приближении энергии связанных состояний гамильтониана (16) не зависят от DMI. Чтобы определить зависимость от параметра DMI  $\epsilon$ , необходимо принять в расчет члены, пропорциональные  $\theta_\gamma$  в ур. (15). Соответствующие поправки оказываются малыми, поскольку состояния (17) локализованы на масштабах порядка эффективного боровского радиуса  $a_\gamma \gg l_w$ . Следовательно, возможно применить теорию возмущений, для нахождения поправки

$$\delta E_{n,m,\pm}^{(\text{DMI})} \simeq \mp \frac{4\gamma^3 \epsilon}{n^3} \text{sgn}(2m_\pm - 1). \quad (18)$$

Интересно, что вклад от DMI-члена не полностью снимает вырождение спектра по отношению к угловому моменту  $m$ .

Важно, что эффективный боровский радиус  $a_\gamma$  меньше пирловской длины  $\lambda$  для экспериментальных условий. Отношение между этими длинами определяется только материальными параметрами ферромагнитной пленки,  $\zeta \equiv 2\lambda/a_\gamma = \gamma\lambda/l_w = M_s\phi_0/(8\pi A)$ . Так, например,  $\zeta \approx 8.3$  для SF гетероструктуры из работы [20]. Таким образом, далее предполагается  $\zeta \gg 1$  и, следовательно,  $a_\gamma \ll \lambda$ .

Характерный пространственный масштаб водородоподобных состояний (17) пропорционален  $n^2 a_\gamma$ . Для  $n$ , больших  $\sqrt{\zeta}$ , волновые функции водородоподобных состояний выходят за пределы  $\lambda$ , где не применима асимптотика  $1/r$  для  $\hat{V}$ . Для наблюдения влияния на собственные энергии спадания  $b_z$  по закону  $1/r^3$  на больших масштабах  $r \gg \lambda$  следует использовать квазиклассическое приближение. Для двумерной задачи (16), правило квантования Бора–Зоммерфельда с поправкой Лангера записывается как

$$\text{Re} \int_0^\infty \frac{dr}{\pi l_w} \sqrt{\frac{4\gamma l_w \lambda^2}{r(r+2\lambda)^2} - \frac{m_\pm^2}{r^2/l_w^2} - |1 \mp E_{n,m,\pm}|} = n_r + \frac{1}{2}. \quad (19)$$

Это позволяет рассчитать поправку к энергиям (17) водородоподобных состояний при  $n^2 \ll \zeta$ , которая снимает вырождение спектра относительно углового момента

$$\delta E_{n,m,\pm}^{(\text{WKB})} = \pm(\gamma^2/\zeta)[1 + 3(4m_\pm^2 - 3n^2)/(16\zeta)]. \quad (20)$$

Поправки (18) и (20) одного порядка при  $\epsilon\gamma\zeta^2 \sim n^5$ .

Для собственных состояний, близких к непрерывному спектру,  $1 - E_{n,m,\pm} \ll \gamma^2/\zeta$ , и имеющих не малый угловой момент,  $1 \ll m_\pm^2 \sim \zeta$ , энергии равны

$$E_{n,m,\pm} \simeq \pm \left[ 1 - \frac{\gamma^2}{4\zeta} \frac{(2m_\pm^2/\zeta)^{5/2}}{3 - 4m_\pm^2/\zeta} \left( 1 - \frac{n+2|m_\pm|}{2\sqrt{2\zeta}} \right) \right]. \quad (21)$$

Заметим, что радиальное квантовое число удовлетворяет неравенству  $0 \leq n_r \leq \sqrt{2\zeta} - 2|m_\pm|$ . Квазиклассический спектр (21) предполагает существование конечного числа связанных состояний. Их количество оценивается стандартно и равно  $\zeta$  [64]. Физически конечность количества состояний можно понимать следующим образом. Для неэкранированного кулоновского потенциала  $1/r$  число состояний бесконечно, и они сгущаются при приближении к непрерывному спектру. Для потенциала  $\lambda^2/r^3$  число состояний также бесконечно, но их число неограниченно растет по мере удаления от непрерывного спектра.

В результате конкуренции между  $1/r$  и  $\lambda^2/r^3$  при  $r \sim \lambda$ , выживает лишь конечное число состояний  $\sim \zeta$ .

**Рассеяние плоских спиновых волн.** Теперь обсуждается задача рассеяния спиновых волн. Будем предполагать, что на вихре налетает плоская спиновая волна с энергией  $E_{k,\pm} = \pm(1 + k^2 l_w^2)$ . В пределе  $1/\lambda$  и  $\epsilon$  к нулю, задача сводится к задаче рассеяния на двумерном кулоновском потенциале, как видно из упрощенного гамильтониана (16) при  $b_z \simeq l_w/r$ . В таком случае точно известно дифференциальное сечение рассеяния [69]:

$$\frac{d\sigma(\varphi)}{d\varphi} = \frac{\gamma \tanh[\gamma\pi/(2kl_w)]}{4k^2 l_w \sin^2(\varphi/2)}. \quad (22)$$

Следует обратить внимание, что хотя транспортное сечение рассеяния конечно, полное сечение рассеяния расходится из-за сингулярности при  $\varphi = 0$  в выражении (22). Поэтому принципиально необходимо учесть, то, что  $b_z$  спадает как  $1/r^3$  при  $r \gg \lambda$ . Тогда дифференциальное сечение рассеяния регуляризуется при малых углах  $|\varphi| \lesssim 1/(k\lambda)$ . В борновском приближении легко найти

$$\frac{d\sigma_{\pm}^{(B)}(\varphi)}{d\varphi} \simeq \frac{2\pi\zeta^2/k}{(1+2q_{\varphi}\lambda)^2} \left(1 + \frac{2\epsilon q_{\varphi} l_w}{1+q_{\varphi}^2 l_w^2}\right). \quad (23)$$

Здесь  $q_{\varphi} = 2k|\sin(\varphi/2)|$  изменение импульса магнона при рассеянии. В дополнение к гамильтониану (16), в ур. (23) учтены DMI-члены из ур. (15), которые считаются малыми,  $\epsilon \ll 1$ . Заметим, что в рассматриваемом случае большого  $\zeta$  борновское приближение (23) применимо только для относительно быстрых магнонов,  $k\lambda \gg \zeta \gg 1$  или, иначе говоря,  $kl_w \gg \gamma$ .

Интегрируя ур. (23) по  $\varphi$  получается, что при  $kl_w \gtrsim 1 \gg \gamma$  полное и транспортное сечения рассеяния равны следующим выражениям

$$\begin{aligned} \sigma^{(B)} &\simeq 2\pi\zeta^2/(k^2\lambda)\{1 + \epsilon[\ln(\lambda/l_w) - 1](l_w/\lambda)\}, \\ \sigma_{tr}^{(B)} &\simeq \pi^2\zeta^2/(2k^3\lambda^2)[1 - 2\epsilon \ln(4kl_w)/(\pi kl_w)]. \end{aligned} \quad (24)$$

Отметим, что выражение для  $\sigma_{tr}^{(B)}$  фактически не зависит от  $\lambda$ , и потому без учета DMI может быть получено непосредственно из ур. (22).

Для нахождения сечения рассеяния в других областях параметра  $k\lambda$  следует применить квазиклассическое приближение для расчета фаз рассеяния  $\delta_m$ . Вводя параметры  $g = \zeta/[2(k\lambda)^2]$  и  $\alpha_m = |m_{\pm}|/(2k\lambda)$ , фазы рассеяния записываются как [68]

$$\frac{\delta_m}{2\lambda k} = \int_{x_0}^{\infty} \left( \sqrt{1 + \frac{g}{x(1+x)^2}} - \frac{\alpha_m^2}{x^2} - 1 \right) dx - x_0 + \frac{\pi\alpha_m}{2}. \quad (25)$$

Здесь  $x_0 > 0$  обозначает наибольшую точку остановки, а также пренебрежено DMI. Заметим, что ур. (13) предполагает зависимость  $\delta_m$  от  $m_{\pm} = m \mp 1$ , независимо от  $m$ . Впрочем, физическим смыслом обладает  $\mathbf{m}$ , а не  $\psi$ , см. ур. (8). Переход от  $\psi$  к  $\mathbf{m}$  дает дополнительный множитель  $\exp(\pm i\varphi)$ , который приводит к эффективной замене  $m_{\pm}$  на  $m$ . Заметим, что  $\delta_m$  – четная функция  $m_{\pm}$ , так что амплитуда рассеяния  $f(\varphi) = \sqrt{2/(\pi k)} \sum_m \exp(im\varphi + i\delta_m) \sin \delta_m$  имеет четное по  $\varphi$  абсолютное значение. Квазиклассическое приближение для фаз рассеяния применимо при  $1/\zeta \ll k\lambda \ll \zeta$ .

Поведение интеграла в ур. (25) интересным образом зависит от  $g$ . Точка поворота  $x_0$  остается единственной при  $g < g_c = 4(316+119\sqrt{7})/27 \approx 93.5$ . В результате фаза рассеяния остается гладкой функцией  $\alpha_m$ . Для  $g > g_c$  и  $\alpha$  в интервале  $(\alpha_g, \alpha'_g)$  появляются две дополнительные точки поворота, см. вставку на рис. 1. В результате скачок  $\delta_m$  как функции  $\alpha_m$  происходит при  $\alpha_g \geq \alpha_c = \sqrt{(37+14\sqrt{7})/3} \approx 4.97$ . При  $g \gg 1$  возможна оценка  $\alpha_g \simeq \sqrt{3}[(g/2)^{1/3} - 2/3]$ . Скачок в  $\delta_m$  связан с внезапным возникновением большего корня  $x_0$  подкоренного выражения в ур. (25).

При  $g \gg 1$  фазы рассеяния в квазиклассическом приближении могут быть вычислены как

$$\frac{\delta_m}{2k\lambda} = \begin{cases} I_0(g) - \frac{\pi\alpha_m}{2} - I_1(g)\alpha_m^2 + O(\alpha_m^4), & \alpha_m \ll \alpha_g, \\ g/(2\alpha_m^2), & \alpha_m \gg \alpha_g, \end{cases} \quad (26)$$

где  $I_{0,1}(g)$  оцениваются как  $I_0 \simeq \pi g^{1/2} - 2.59g^{1/3} + 2/3$  и  $I_1 \simeq 1.40g^{-1/3} - 1.15g^{-2/3}$ . Точная асимптотика зависимости фазы рассеяния  $\delta_m$  от углового момента при различных значениях  $g \gg 1$  показана на главной части рис. 1.

Полное и транспортное сечения рассеяния могут быть найдены через стандартные выражения:  $\sigma = (4/k) \sum_m \sin^2 \delta_m$  и  $\sigma_{tr} = (2/k) \sum_m \sin^2(\delta_m - \delta_{m+1})$ . При  $g \gg 1$  сумма набирается в области  $m \sim (\zeta k\lambda)^{\nu} \gg 1$ , где  $\nu = 1/2$  и  $1/3$  для полного и транспортного сечений рассеяния соответственно. Тогда, используя асимптотическое выражение (26) для  $\alpha_m \gg \alpha_g$ , в области  $\sqrt{\zeta} \gg k\lambda \gg 1/\zeta$  получаются следующие оценки для полного и транспортного сечений рассеяния:

$$\sigma^{(WKB)} \simeq 4\lambda \sqrt{\frac{2\pi\zeta}{k\lambda}}, \quad \sigma_{tr}^{(WKB)} \sim \lambda \left[ \frac{\zeta}{(k\lambda)^2} \right]^{1/3}. \quad (27)$$

Следует отметить, что оба сечения рассеяния имеют вклады, осциллирующие с  $k\lambda$ , что детально показано на рис. 2 и 3. Тем не менее осциллирующая часть

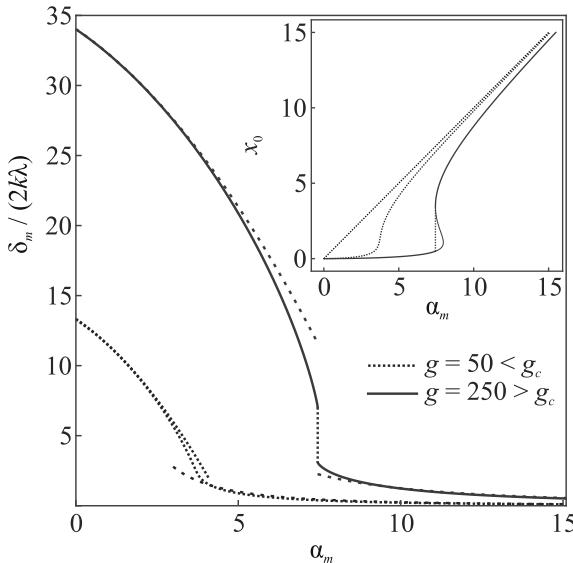


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость  $\delta_m / (2k\lambda)$  от параметра  $\alpha_m$  для  $g < g_c$  и  $g > g_c$ , изображенная сплошной и штриховой линиями для точного интегрирования в ур. (25) и пунктирными точечными линиями для асимптотик из ур. (26). Вставка: зависимость точки остановки  $x_0$  от  $\alpha_m$  для тех же величин  $g$

$\sigma^{(WKB)}$  параметрически меньше монотонной части, определяемой ур. (27). С другой стороны, осциллирующая часть  $\sigma_{tr}^{(WKB)}$  оказывается одного порядка с его монотонной частью, ур. (27), в существенном интервале параметров.

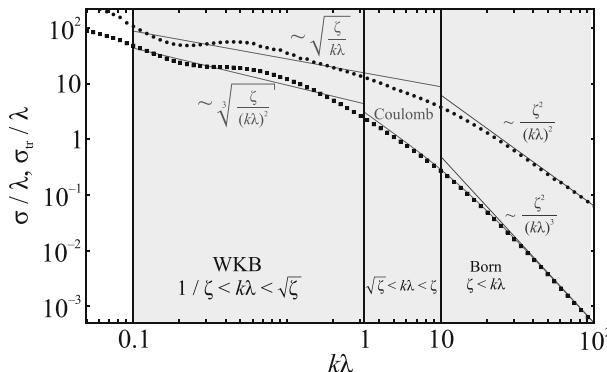


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость нормированных полного ( $\sigma/\lambda$ , круглые символы) и транспортного ( $\sigma_{tr}/\lambda$ , квадратные символы) сечений рассеяния от  $k\lambda$  при  $\zeta = 10$ . Прямые линии задаются ур. (24) и ур. (27) в борновском и квазиклассическом приближениях соответственно. Кривая соответствует  $\sigma_{tr}/\lambda$  полученному из ур. (22) результату для двумерного кулоновского потенциала

В области применимости квазиклассики  $\sqrt{\zeta} \ll k\lambda \ll \zeta$  ( $g \ll 1$ ) имеются следующие асимптотические выражения для фаз рассеяния

$$\frac{\delta_m}{2\lambda k} = \frac{g}{2} \begin{cases} \ln[4/(g + 2e\alpha_m)], & \alpha_m \ll 1, \\ 1/\alpha_m^2, & \alpha_m \gg 1. \end{cases} \quad (28)$$

Заметим, что для  $\alpha_m \gg 1$  зависимость  $\delta_m$  от  $\alpha_m$  в ур. (28) совпадает с борновским приближением. Тем не менее в обсуждаемой области параметра  $k\lambda$  фазы рассеяния  $\delta_m$  могут быть не малы. Полное сечение рассеяния дается тем же выражением, что и в ур. (27), в то время как транспортное сечение рассеяния оценивается как  $\sigma_{tr}^{(WKB)} \sim \zeta/(k^2\lambda)$ .

Полное и транспортное сечения рассеяния спадают по мере увеличения  $k$  для  $k\lambda \gtrsim \sqrt{\zeta}$ . На таких импульсах доминирует рассеяние вперед, поскольку  $\sigma_{tr}/\sigma \ll 1$  при  $k\lambda \gg \sqrt{\zeta}$ . Рисунок 2 иллюстрирует зависимость нормированного сечения рассеяния от  $k\lambda$ , найденную численно (круглые и квадратные символы) решением ур. (12) с определенным угловым моментом  $m$  и аналитически (сплошные линии) различными асимптотиками из ур. (24), (27), и (22).

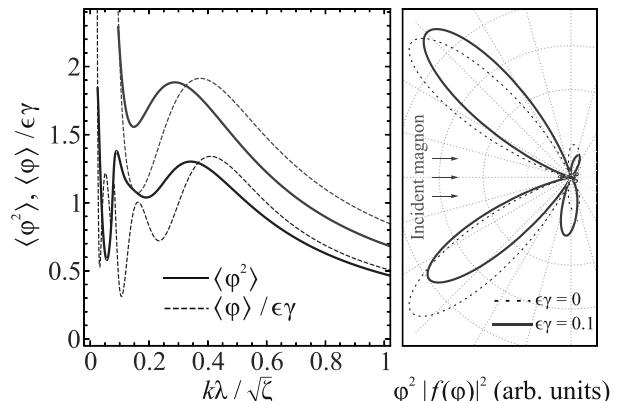


Рис. 3. (Цветной онлайн) Левая панель – зависимость  $\langle\phi^2\rangle$  и  $\langle\phi\rangle/\epsilon\gamma$  от нормированного импульса  $k\lambda/\sqrt{\zeta}$  для  $\zeta = 10$  (верхние кривые) и  $\zeta = 30$  (нижние кривые). Правая панель – диаграмма направленности  $d\sigma/d\phi = |f(\phi)|^2$  с весом  $\varphi^2$ , построенная в полярных координатах для  $\zeta = 30$ ,  $k\lambda = 0.6$ ,  $\epsilon\gamma = 0$  (штрихованная линия) и  $\epsilon\gamma = 0.1$  (сплошная линия)

В вышеописанных расчетах пренебрежено параметром DMI  $\epsilon$ . Теперь примем во внимание опущенные малые члены из ур. (15) для оценки среднего угла рассеяния магнонов  $\langle\phi\rangle = \int_{-\pi}^{\pi} \varphi d\sigma(\varphi)/\sigma$ , что характеризует асимметричность рассеяния. Главный асимметричный вклад в амплитуду рассеяния  $f(\phi)$  приходит из  $V_z$  и дает дополнительный член  $\epsilon\gamma m_{\pm}/[2(k\lambda x)^2(1+x)]$  в подкоренном выражении в ур. (25). Когда  $\epsilon\gamma \ll 1$ , средний угол рассеяния  $\langle\phi\rangle$  в главном приближении пропорционален  $\epsilon\gamma$ , тогда  $\langle\phi\rangle/\epsilon\gamma$  зависит только от  $k\lambda$  и  $\zeta$ .

На левой панели на рис. 3 иллюстрируется зависимость нормированного усредненного угла рассеяния  $\langle \varphi \rangle / \epsilon \gamma$  (штрихованные линии) и среднего квадрата угла рассеяния  $\langle \varphi^2 \rangle$  (сплошные линии) от нормированного импульса  $k\lambda/\sqrt{\zeta}$  для  $\zeta = 10$  (верхние кривые) и  $\zeta = 30$  (нижние кривые). Видно, что кривые демонстрируют осцилляции для небольших  $k\lambda \lesssim \sqrt{\zeta}$ , причем амплитуда осцилляций сравнима с величиной самих средних. Эти осцилляции обусловлены подавлением вклада рассеяния вперед при вычислении  $\langle \varphi \rangle$  и  $\langle \varphi^2 \rangle$ , за счет чего асимметричность рассеяния становится более выраженной, как видно на правой части рис. 3. Таким образом, неоднородность профиля намагниченности, создаваемая пирловским вихрем при наличии DMI создает слабую асимметрию рассеяния.

**Обсуждение.** Разрывность фазы рассеяния для  $g > g_c$  при  $\alpha_m = \alpha_g$ , могла бы предполагать наличие направлений, в которых не распространяется рассеянная волна в квазиклассическом приближении. Однако это оказывается не так. Тем не менее точка разрыва  $\alpha_g$  имеет прозрачный физический смысл. Как известно [70], физический угол рассеяния  $\chi$  как функция прицельного параметра  $\rho = |m|/k \approx 2\alpha_m \lambda$  может быть получен из выражения  $\pm \chi = 2\pi n - \vartheta$ , где  $\vartheta = 2d\delta_m/dm \approx (k\lambda)^{-1} d\delta_m/d\alpha_m$ , и  $n$  является целым. Ненулевое  $n$  предполагает феномен орбитального обращения. Для  $g < g_c$  зависимость  $\chi$  и  $\vartheta$  от  $\rho$  показана на рис. 4. Для малого прицельного параметра  $\rho/(2\lambda) \lesssim 4$ , классическая траектория обворачивается некоторое (конечное) количество раз вокруг центра рассеяния. Однако при  $g > g_c$  число оборотов классической траектории стремится к бесконечности по мере приближения прицельного параметра к  $2\alpha_g \lambda$ . Другими словами, при данном прицельном параметре должно происходить падение классической частицы на центр рассеяния. Заметим, что  $2\alpha_g \lambda$  всегда превосходит  $2\alpha_c \lambda \approx 10\lambda$ .

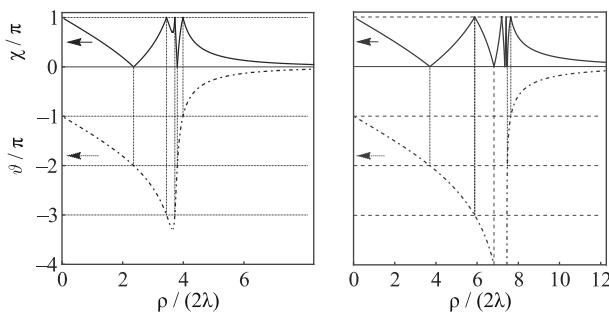


Рис. 4. (Цветной онлайн) Угол  $\vartheta$  и физическое направление рассеяния  $\chi$  как функции прицельного параметра  $\rho/(2\lambda)$  для  $g = 50 < g_c$  (слева) и для  $g = 250 > g_c$  (справа).

Заметим, что для пирловского анти-вихря, чье магнитное поле направлено в обратную сторону, потенциал (11) в гамильтониане (10) меняет знак. Это приводит к исчезновению связанных состояний. Задача рассеяния также становится менее интересной. В частности пропадает эффект орбитального обращения.

**Заключение.** В работе рассмотрена тонкая SF гетероструктура и изучен спектр магнонов в ферромагнитной пленке в присутствии в сверхпроводнике пирловского вихря. Вихрь создает внешнее магнитное поле и возмущение профиля намагниченности. В результате образуется набор связанных состояний магнонов, подобных связанным состояниям электронов на заряженном центре с экранированным кулоновским взаимодействием в двумерном электронном газе. Число этих состояний полностью определяется только материальными параметрами ферромагнитной пленки.

Решена задача рассеяния для плоской спиновой волны, падающей на пирловский вихрь. Найдены полное и транспортное сечение рассеяния. Обсуждены особенности квантовой задачи рассеяния, соответствующие эффекту орбитального обращения в классическом пределе. Обнаружено, что взаимодействие Дзялошинского–Мории и искаженный вихрь профиль намагниченности приводят к асимметрии рассеяния магнонов.

Работа может быть развита в нескольких направлениях. Во-первых, интересно было бы рассмотреть рассеяние цилиндрической спиновой волны. Во-вторых, изучения заслуживают локализованные состояния магнонов на связанных парах пирловского вихря и неелевского скирмиона.

Авторы благодарны Я. Фоминову, А. Калашниковой и М. Парfenову за полезные обсуждения. Также выражаем признательность Е. Андриахиной за сотрудничество по связанному проекту. И. С. Бурмистров и Д. С. Катков благодарят за личную поддержку Фонд развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

**Финансирование работы.** Работа поддержана грантом Российского научного фонда № 24-12-00357.

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

1. E. I. Blount and C. M. Varma, *Electromagnetic effects near the superconductor-to-ferromagnet transition*, Phys. Rev. Lett. **42**, 1079 (1979).
2. V. V. Ryazanov, V. A. Oboznov, A. S. Prokofiev, V. V. Bolginov, and A. K. Feofanov, J. Low Temp. Phys. **136**, 385 (2004).

3. I. F. Lyuksyutov and V. L. Pokrovsky, *Adv. Phys.* **54**, 67 (2005).
4. A. I. Buzdin, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 935 (2005).
5. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1321 (2005).
6. M. Eschrig, *Rep. Prog. Phys.* **78**, 104501 (2015).
7. C. Back, V. Cros, H. Ebert, K. Everschor-Sitte, A. Fert, M. Garst, T. Ma, S. Mankovsky, T. L. Monchesky, M. Mostovoy, N. Nagaosa, S. S. P. Parkin, C. Pfleiderer, N. Reyren, A. Rosch, Y. Taguchi, Y. Tokura, K. von Bergmann, and J. Zang, *J. Phys. D: Applied Phys.* **53**, 363001 (2020).
8. B. Göbel, I. Mertig, and O. A. Tretiakov, *Phys. Rep.* **895**, 1 (2021).
9. A. O. Zlotnikov, M. S. Shustin, and A. D. Fedoseev, *J. Supercond. Nov. Magn.* **34**, 3053 (2021).
10. A. N. Bogdanov and D. Yablonskii, *Sov. Phys. JETP* **68**, 101 (1989).
11. K. M. D. Hals, M. Schecter, and M. S. Rudner, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 017001 (2016).
12. J. Baumard, J. Cayssol, F. S. Bergeret, and A. Buzdin, *Phys. Rev. B* **99**, 014511 (2019).
13. S. M. Dahir, A. F. Volkov, and I. M. Eremin, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 097001 (2019).
14. R. M. Menezes, J. F. S. Neto, C. C. de Souza Silva, and M. V. Milošević, *Phys. Rev. B* **100**, 014431 (2019).
15. S. M. Dahir, A. F. Volkov, and I. M. Eremin, *Phys. Rev. B* **102**, 014503 (2020).
16. E. S. Andriyakhina and I. S. Burmistrov, *Phys. Rev. B* **103**, 174519 (2021).
17. E. S. Andriyakhina, S. Apostoloff, and I. S. Burmistrov, *JETP Lett.* **116**, 825 (2022).
18. S. S. Apostoloff, E. S. Andriyakhina, P. A. Vorobyev, O. A. Tretiakov, and I. S. Burmistrov, *Phys. Rev. B* **107**, L220409 (2023).
19. S. S. Apostoloff, E. S. Andriyakhina, and I. S. Burmistrov, *Phys. Rev. B* **109**, 104406 (2024).
20. A. P. Petrović, M. Raju, X. Y. Tee, A. Louat, I. Maggio-Aprile, R. M. Menezes, M. J. Wyszyński, N. K. Duong, M. Reznikov, Ch. Renner, M. V. Milošević, and C. Panagopoulos, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 117205 (2021).
21. P. Machain, *Skyrmion-Vortex Interactions in Chiral-Magnet/Superconducting Hybrid Systems*, Ph. D. thesis, Nanyang Technological University, Singapore (2021).
22. Y. Xie, A. Qian, B. He, Y. Wu, S. Wang, B. Xu, G. Yu, X. Han, and X. Qiu, *Phys. Rev. Lett.* **133**, 166706 (2024).
23. W. Chen and A. P. Schnyder, *Phys. Rev. B* **92**, 214502 (2015).
24. G. Yang, P. Stano, J. Klinovaja, and D. Loss, *Phys. Rev. B* **93**, 224505 (2016).
25. U. Güngörđü, S. Sandhoefer, and A. A. Kovalev, *Phys. Rev. B* **97**, 115136 (2018).
26. E. Mascot, S. Cocklin, S. Rachel, and D. K. Morr, *Phys. Rev. B* **100**, 184510 (2019).
27. M. Garnier, A. Mesaros, and P. Simon, *Commun. Phys.* **2**, 126 (2019).
28. U. Güngörđü and A. A. Kovalev, *J. Appl. Phys.* **132**, 041101 (2022).
29. S. Rex, I. V. Gornyi, and A. D. Mirlin, *Phys. Rev. B* **100**, 064504 (2019).
30. S. Rex, I. V. Gornyi, and A. D. Mirlin, *Phys. Rev. B* **102**, 224501 (2020).
31. J. Nothhelfer, S. A. Diaz, S. Kessler, T. Meng, M. Rizzi, K. M. D. Hals, and K. Everschor-Sitte, *Phys. Rev. B* **105**, 224509 (2022).
32. S. T. Konakanchi, J. I. Väyrynen, Y. P. Chen, P. Upadhyaya, and L. P. Rokhinson, *Phys. Rev. Res.* **5**, 033109 (2023).
33. A. I. Akhiezer, V. G. Bar'yakhtar, and S. V. Peletminskii, *Spin Waves*, North-Holland Pub. Co., Amsterdam (1968).
34. S. A. Nikitov, D. V. Kalyabin, I. V. Lisenkov, A. N. Slavin, Yu. N. Barabanenkov, S. A. Osokin, A. V. Sadovnikov, E. N. Beginin, M. A. Morozova, Yu. P. Sharaevsky, Yu. A. Filimonov, Yu. V. Khivintsev, S. L. Vysotsky, V. K. Sakharov, and E. S. Pavlov, *Phys.-Uspekhi* **58**, 1002 (2015).
35. A. Barman, G. Gubbiotti, S. Ladak et al. (Collaboration), *J. Phys.: Condens. Matter* **33**, 413001 (2021).
36. A. Brataas, B. van Wees, O. Klein, G. de Loubens, and M. Viret, *Phys. Rep.* **885**, 1 (2020).
37. C. Davies, A. Francis, A. Sadovnikov, S. Chertopalov, M. Bryan, S. Grishin, D. Allwood, Y. Sharaevskii, S. Nikitov, and V. Kruglyak, *Phys. Rev. B* **92**, 020408 (2015).
38. H.-B. Braun, *Phys. Rev. B* **50**, 16485 (1994).
39. R. Hertel, W. Wulfhekel, and J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 257202 (2004).
40. S. J. Hääläinen, M. Madami, H. Qin, G. Gubbiotti, and S. van Dijken, *Nat. Commun.* **9**, 4853 (2018).
41. V. Laliena, A. Athanasopoulos, and J. Campo, *Phys. Rev. B* **105**, 214429 (2022).
42. J. Iwasaki, A. J. Beekman, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. B* **89**, 064412 (2014).
43. C. Schütte and M. Garst, *Phys. Rev. B* **90**, 094423 (2014).
44. D. N. Aristov, S. S. Kravchenko, and A. O. Sorokin, *JETP Lett.* **102**, 511 (2015).
45. T. K. Ng and C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **58**, 11624 (1998).
46. V. Braude and E. B. Sonin, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 117001 (2004).
47. I. A. Golovchanskiy, N. N. Abramov, V. S. Stolyarov, V. V. Bolginov, V. V. Ryazanov, A. A. Golubov, and A. V. Ustinov, *Adv. Funct. Mater.* **28**, 1802375 (2018).

48. I. A. Golovchanskiy, N. N. Abramov, V. S. Stolyarov, V. V. Bolginov, V. V. Ryazanov, A. A. Golubov, and A. V. Ustinov, *J. Appl. Phys.* **127**, 093903 (2020).
49. I. A. Golovchanskiy, N. N. Abramov, V. S. Stolyarov, V. I. Chichkov, M. Silaev, I. V. Shchetinin, A. A. Golubov, V. V. Ryazanov, A. V. Ustinov, and M. Yu. Kupriyanov, *Phys. Rev. Applied* **14**, 024086 (2020).
50. T. Yu and Gerrit E. W. Bauer, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 117201 (2022).
51. M. Silaev, *Phys. Rev. Applied* **18**, L061004 (2022).
52. I. A. Golovchanskiy, N. N. Abramov, O. V. Emelyanova, I. V. Shchetinin, V. V. Ryazanov, A. A. Golubov, and V. S. Stolyarov, *Phys. Rev. Applied* **19**, 034025 (2023).
53. M. Borst, P. H. Vree, A. Lowther, A. Teepe, S. Kurdi, I. Bertelli, B. G. Simon, Y. M. Blanter, and T. van der Sar, *Science* **382**, 430 (2023).
54. J. Kharlan, K. Sobucki, K. Szulc, S. Memarzadeh, and J. W. Klos, *Phys. Rev. Applied* **21**, 064007 (2024).
55. O. V. Dobrovolskiy, R. Sachser, T. Brächer, T. Böttcher, V. Kruglyak, R. V. Vovk, V. A. Shklovskij, M. Huth, B. Hillebrands, and A. V. Chumak, *Nat. Phys.* **15**, 477 (2019).
56. B. Niedzielski, C. L. Jia, and J. Berakdar, *Phys. Rev. Applied* **19**, 024073 (2023).
57. I. V. Bobkova, A. M. Bobkov, A. Kamra, and W. Belzig, *Commun. Mater.* **3**, 95 (2022).
58. J. Pearl, *Appl. Phys. Lett.* **5**, 65 (1964).
59. F. Stern and W. E. Howard, *Phys. Rev.* **163**, 816 (1967).
60. M. A. Kuznetsov, K. R. Mukhamatchin, and A. A. Fraerman, *Phys. Rev. B* **107**, 184428 (2023).
61. A. A. Abrikosov, *Fundamentals of the Theory of Metals*, North-Holland, Amsterdam (1988).
62. G. Carneiro and E. H. Brandt, *Phys. Rev. B* **61**, 6370 (2000).
63. C. Tanguy, arXiv:cond-mat/0106184.
64. M. E. Portnoi and I. Galbraith, *Solid State Commun.* **103**, 325 (1997).
65. D. G. W. Parfitt and M. E. Portnoi, *Exactly-solvable problems for two-dimensional excitons*, in Proceedings of the XI Regional Conference, Tehran, Iran, 3-6 May 2004: Mathematical Physics **52** (2005); [https://doi.org/10.1142/9789812701862\\_0014](https://doi.org/10.1142/9789812701862_0014).
66. A. J. Makowski, *Phys. Rev. A* **83**, 022104 (2011).
67. A. J. Makowski, *Phys. Rev. A* **84**, 022108 (2011).
68. V. Galitski, B. Karnakov, V. Kogan, and V. Galitski Jr., *Exploring quantum mechanics: A collection of 700+ solved problems for students, lecturers, and researchers*, Oxford University Press, London (2013).
69. Q.-G. Lin, *Am. J. Phys.* **65**, 1007 (1997).
70. G. L. Kotkin and V. G. Serbo, *Collections of problems in classical mechanics*, Pergamon Press, N. Y. (1971).

# Обратимый топологически эквивалентный переход в хиральном жидкокристалле с отрицательной диэлектрической анизотропией

И. В. Симдянкин, А. Р. Гейвандов<sup>1)</sup>, С. П. Палто

Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова, Курчатовский комплекс кристаллографии и фотоники,  
НИЦ Курчатовский институт, 119333 Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 сентября 2024 г.

После переработки 17 сентября 2024 г.

Принята к публикации 19 сентября 2024 г.

В слое хирального жидкого кристалла с отрицательной диэлектрической анизотропией и толщиной  $d$ , соответствующей второй зоне Гранжана ( $3p_0/4 < d < 5p_0/4$ , где  $p_0$  – естественный шаг спирали), под действием планарного электрического поля происходит ориентационный переход из основного состояния, закрученного на угол  $2\pi$  в топологически эквивалентное раскрученное состояние (0-состояние). Хотя 0-состояние является метастабильным и долгоживущим, оно может быть быстро переведено обратно в  $2\pi$ -состояние импульсом электрического поля сравнительно малой амплитуды. Если прямой переход в 0-состояние обусловлен взаимодействием электрического поля с отрицательной диэлектрической анизотропией, то быстрый обратный переход связывается нами с флексоэлектрическим взаимодействием.

DOI: 10.31857/S0370274X24110063, EDN: AWGCDT

**1.** Хиральные жидкие кристаллы (ХЖК) на протяжении многих десятилетий привлекают исследователей своими уникальными свойствами, обусловленными способностью к спонтанному образованию спиральных надмолекулярных структур. В монодоменном состоянии, когда ось спирали ХЖК ориентирована в одном направлении, такие структуры являются одномерными фотонными кристаллами. Благодаря спиральному пространственному распределению директора, когда главные оси тензора диэлектрической проницаемости поворачиваются по мере движения вдоль оси спирали, для света, распространяющегося вдоль этой оси, существует запрещенная зона энергий. Внутри нее фотонны с круговой поляризацией, совпадающей со знаком закрутки спирали, не могут распространяться. Наличие зоны запрещенных энергий, а также особенности распространения света на ее краях, обуславливают незатухающий исследовательский интерес к этим фотонным системам [1–5].

Фотоника – не единственная область применения ХЖК. Еще в прошлом десятилетии возникла идея использования ХЖК для информационных дисплеев типа “электронной бумаги”, в которых для отображения информации практически не расходуется энергия. Герицма (Gerritsma) и др. [6], исследуя двухчастотные ХЖК материалы, наблюдали возникновение долгоживущих оптически различных доменов после воздействия на слой ХЖК электрическим

полем различной частоты. Эти домены были интерпретированы как топологически эквивалентные метастабильные состояния, отличающиеся целым числом витков спирали на толщине слоя. Топологическая эквивалентность означает, что ориентационные переходы между состояниями, отличающимися на целое число витков, возможны в результате непрерывной деформации распределения директора в объеме слоя. В теоретической работе [7] ван Дорн (van Doorn) указал на возможность электрически индуцированных ориентационных переходов между двумя топологически эквивалентными состояниями, характеризуемыми соответственно четвертью витка правой спирали ( $+\pi/2$ ) и тремя четвертями витка левой спирали ( $-3\pi/2$ ). Позднее, Берреман (Berremans) и Хеффнер (Heffner) [8], с учетом результатов Герицмы и ван Дорна, предложили и продемонстрировали новый режим бистабильного переключения между топологически-эквивалентным закрученным на угол  $2\pi$ -состоянием и раскрученным состоянием, но для одночастотного ХЖК. Позже были изучены и другие реализации аналогичного эффекта как для одночастотных, так и для двухчастотных ХЖК [9, 10]. Например, в [10] было изучено обратимое переключение между различными топологически эквивалентными состояниями:  $0 \leftrightarrow 2\pi; -\pi \leftrightarrow +\pi; -\pi/2 \leftrightarrow +3\pi/2$  и др. Однако общим требованием, необходимым для осуществления вышеупомянутых переходов, являлось использование либо двухчастотных ХЖК, либо ХЖК с положительной диэлектри-

<sup>1)</sup>e-mail: ageivandov@yandex.ru

ческой анизотропией, управляемых электрическим полем, направленным вдоль нормали к слою. Важно и то, что в основе физического механизма переключения лежало взаимодействие обратных гидродинамических потоков с директором ХЖК, что резко ограничивало практическое использование эффекта.

В настоящей работе мы сообщаем об электрическом переключении между оптически различимыми топологически эквивалентными состояниями в новой геометрии воздействия электрического поля на ХЖК с отрицательной диэлектрической анизотропией.

**2.** Мы исследовали клиновидный тип ХЖК ячейки, когда толщина слоя плавно изменяется в диапазоне от 1 до 3 мкм, рис. 1. Диапазон толщин выбран так, чтобы при естественном шаге спирали  $p_0 = 2.3$  мкм, характерном для приготовленного на ми ХЖК, наблюдать как первую, так и вторую зоны Гранжана (рис. 1б), где распределение директора определяется закруткой директора на толщине слоя на угол  $\pi$  и  $2\pi$  соответственно, рис. 1а. Подчеркнем, что в этой работе нумерация зон Гранжана начинается с нуля. Нулевая зона характеризуется однородным планарным распределением директора и возникает при толщинах слоя меньше четверти естественного шага спирали. В качестве ХЖК использовался нематический жидкий кристалл лабораторной разработки (13N) с отрицательной диэлектрической анизотропией ( $\Delta\varepsilon = -4.15$ ), в который было добавлено 0.7 вес. % оптически активного соединения 1,4:3,6-Dianhydro-D-sorbitol-2,5-bis(4-hexyloxybenzoate). Данная концентрация добавки обеспечивала упомянутое выше значение естественного шага спирали. Разность главных показателей преломления (оптическая анизотропия) для данного ХЖК составляет  $\Delta n = 0.09$ .

Для создания планарного электрического поля на поверхность одной из подложек была нанесена система встречно-штыревых электродов из хрома. Ширина электродов составляла 5 мкм, а промежуток между соседними электродными полосками был равен 10 мкм. На поверхность подложки с электродами, а также на свободную от электродов поверхность второй подложки наносились ориентирующие полиимидные пленки, которые механически натирались вдоль электродных полосок, создавая в данном направлении ось легкой ориентации. В собранной ХЖК ячейке направления натирания на подложках были направлены взаимно противоположно.

Оптические и текстурные исследования проводили с использованием установки на основе поляризационного микроскопа Olympus CX31P,

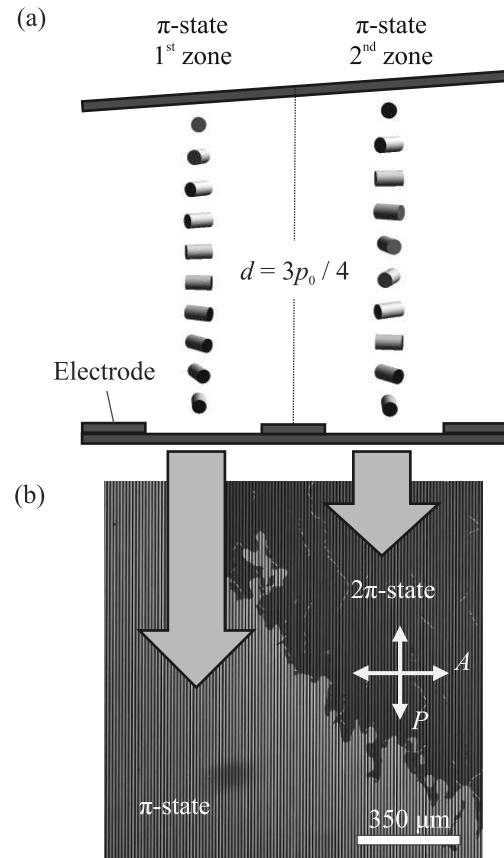


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическое изображение клиновидной ХЖК-ячейки и распределение директора в первой ( $\pi$ -состояние) и второй ( $2\pi$ -состояние) зонах Гранжана (а); фото текстуры в клиновидной ХЖК ячейке, помещенной между скрещенными поляризатором ( $P$ ) и анализатором ( $A$ ), иллюстрирующее две разные оптические текстуры в первой и второй зонах Гранжана (б). Ось пропускания поляризатора ( $P$ ) ориентирована вдоль электродных полосок (на фото – тонкие темные линии в вертикальном направлении)

оснащенного камерой Olympus OMD EM-1. Программное обеспечение PhysLab локальной разработки (С.П.П.), на базе персонального компьютера с 16-разрядным аналого-цифровым преобразователем (АЦП) и 14-разрядным цифро-аналоговым преобразователем (ЦАП) преобразователем, использовалось для генерации управляющих пакетов электрического напряжения различной формы и амплитуды. Управляющее напряжение от виртуального генератора PhysLab с выхода ЦАП усиливалось широкополосным усилителем и подавалось на электроды ХЖК ячейки. Для регистрации электрооптического отклика вместо фотокамеры устанавливался кремниевый фотодиод, сигнал от которого регистрировался виртуальным осциллографом PhysLab.

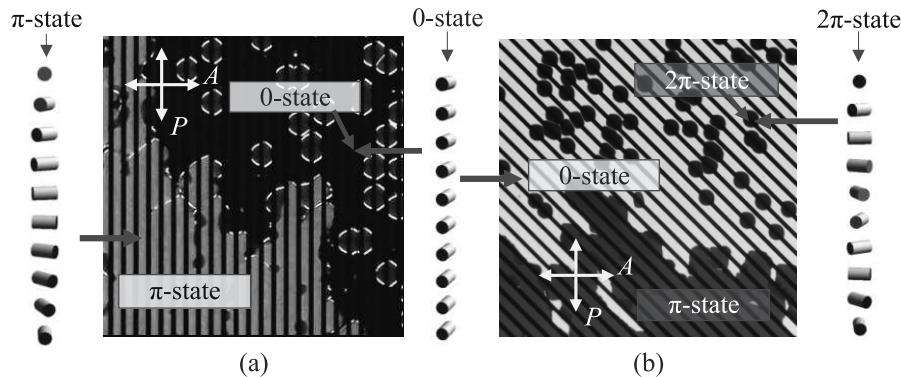


Рис. 2. (Цветной онлайн) Текстуры ХЖК в поляризационном микроскопе после индуцированного электрическим полем топологически эквивалентного перехода из закрученного  $2\pi$ -состояния в раскрученное 0-состояние во второй зоне Гранжана. Фотографии отличаются ориентацией электродных полосок (черные полосы на обоих фото) по отношению к осям скрещенных поляризатора ( $P$ ) и анализатора ( $A$ ). Стрелки указывают на области (домены) различных состояний. Индуцированное полем 0-состояние наиболее темное на изображении слева (а) и наиболее яркое на изображении справа (б)

**3.** На рисунке 2 показаны изображения текстур в поляризационном микроскопе после воздействия импульсного пакета электрического напряжения амплитудой  $U_0 = 70$  В на частоте 200 Гц. Как видно, во второй зоне Гранжана, где исходное основное состояние характеризуется закруткой директора на угол  $2\pi$  ( $2\pi$ -состояние), после воздействия поля возникает новое оптическое состояние. Это состояние является оптически наиболее темным (непрозрачным) для образца между скрещенными поляризатором ( $P$ ) и анализатором ( $A$ ), если ось пропускания поляризатора ( $P$ ) ориентирована вдоль электродных полосок, рис. 2а. Однако, при повороте образца так, что электродные полоски, задающие направление легкой оси ориентации, составляют угол  $45^\circ$  с осями поляризатора и анализатора, новое состояние оказывается оптически светлым (прозрачным). Такое оптическое поведение характерно для однородного планарного распределения директора (0-состояние). Таким образом, воздействие планарного электрического поля приводит к ориентационному переходу из основного  $2\pi$ -состояния, характерного для второй зоны Гранжана, в раскрученное 0-состояние.

Стоит отметить, что после воздействия электрического поля основное  $2\pi$ -состояние все еще присутствует в виде небольших доменов, занимающих малую часть площади во второй зоне, рис. 2. Однако, так как это основное  $2\pi$ -состояние имеет наименьшую свободную энергию, то с течением времени эти домены увеличиваются в размере, поглощая домены метастабильного 0-состояния. Характерное время релаксации 0-состояния для толщины слоя около 2 мкм составляет около секунды, но при увеличении толщины до 6–7 мкм (даные планируется опублико-

вать в отдельной работе) увеличивается до нескольких минут.

На рисунке 3 показан электрооптический отклик в процессе прямого ( $2\pi \rightarrow 0$ ) и обратного ( $0 \rightarrow 2\pi$ ) переходов. Прямой переход возникает после воздействия пакета электрического напряжения  $U_0$  амплитудой 80 В на частоте 200 Гц. На временном интервале 100–300 мс действия  $U_0$  электрооптический отклик имеет колебательный характер, несмотря на прямоугольную форму напряжения  $U_0$ . Фурье анализ этого отклика показывает, что в нем наряду с квадратичным вкладом на второй гармонике приложенного электрического поля содержится и линейный вклад на основной частоте. Таким образом, взаимодействие электрического поля с ЖК содержит не только квадратичную по полю составляющую, связанную с диэлектрической анизотропией, но и линейный вклад, который мы относим к флексоэлектрическому эффекту. После выключения напряжения  $U_0$  ( $t = 300$  мс) ХЖК переходит в раскрученное 0-состояние с высоким оптическим пропусканием (см. также рис. 2, справа). Как уже отмечалось, 0-состояние, являясь метастабильным, очень медленно, около одной секунды, релаксирует в основное  $2\pi$ -состояние (кривая 2 на рис. 3). Однако, если на интервале существования 0-состояния приложить короткий импульсный пакет  $U_{2\pi}$  из одного периода низкочастотного электрического напряжения сравнительно низкой амплитуды (30 В), то 0-состояние очень быстро переключается в основное  $2\pi$ -состояние (кривая 1 при  $t > 400$  мс).

Для прояснения физического механизма наблюдаемых переходов мы также провели исследования с использованием численных методов, основанных на

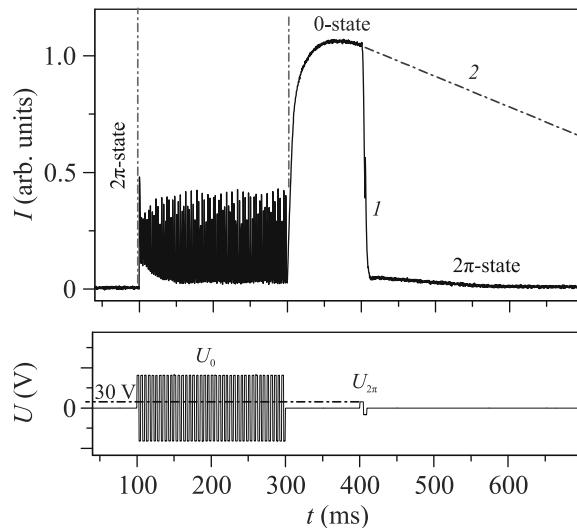


Рис. 3. (Цветной онлайн) Электрооптический отклик (1) при переходе из  $2\pi$ -состояния в 0-состояние после воздействия электрического напряжения  $U_1$  и обратном переходе в  $2\pi$ -состояние после воздействия импульса  $U_{2\pi}$ . Кривая 2 – экстраполированная релаксация метастабильного 0-состояния при отсутствии импульса напряжения  $U_{2\pi}$

решении уравнений континуальной теории ЖК совместно с уравнениями Максвелла. Детальное изложение этих результатов вместе с дополнительными экспериментами планируется в отдельной публикации. Здесь же мы отметим лишь наиболее важные результаты этого моделирования.

Численным моделированием нам удалось воспроизвести электрооптический отклик, показанный на рис. 3 и установить, что переключение из 0-состояния в  $2\pi$ -состояние возможно только в случае учета флексоэлектрического взаимодействия. Необходимая разность флексоэлектрических коэффициентов ( $e_3 - e_1$ ) лежит в диапазоне 20–30 пКл/м. Как прямой, так и обратный переход реализуется в результате непрерывной деформации директора через промежуточное состояние с локальной гомеотропной ориентацией директора в объеме слоя, что соответствует топологической эквивалентности двух состояний. Таким образом, переходы возникают без образования или участия дефектов в слое ХЖК. Результаты также показали, что флексоэлектрический эффект препятствует переходу в 0-состояние, что сказывается на увеличенном пороговом напряжении  $U_1$ . При используемой в эксперименте геометрии электродов, 0-состояние образуется только в межэлект-

родной области, в то время как в надэлектродной области, невидимой в эксперименте из-за непрозрачности хромовых электродов, сохраняются домены основного  $2\pi$ -состояния, которые заметно ускоряют процесс свободной релаксации 0-состояния.

**4.** Таким образом, результаты наших исследований указывают на принципиально новый механизм наблюдаемого обратимого ориентационного перехода, где не требуется возбуждения обратных гидродинамических потоков. В заключение хотелось бы отметить, что обнаруженный эффект важен не только в отношении применений ХЖК в области управляемых электрическим полем фотонных устройств и экономичных информационных дисплеев типа “электронной бумаги”, но и является ярким примером, иллюстрирующим значимость двух разных по своей природе типов электрического взаимодействия – квадратичного, обусловленного отрицательной диэлектрической анизотропией, и линейного (полярного), связанного с флексоэлектрической поляризацией.

**Финансирование работы.** Работа выполнена в рамках государственного задания Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”.

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

1. H. Coles and S. Morris, Nat. Photonics **4**, 676 (2010); <https://doi.org/10.1038/nphoton.2010.184>.
2. J. Ortega, C. L. Folcia, and J. Etxebarria, Liq. Cryst. **49**, 427 (2022); <https://doi.org/10.1080/02678292.2021.1974584>.
3. П. В. Долганов, К. Д. Бакланова, В. К. Долганов, ЖЭТФ **157**(5), 936 (2020).
4. S. P. Palto, Crystals **9**, 469 (2019); <https://doi.org/10.3390/cryst9090469>.
5. S. P. Palto, D. O. Rybakov, B. A. Umanskii, and N. M. Shtykov, Crystals **13**(1), 10 (2022); <https://doi.org/10.3390/cryst13010010>.
6. C. J. Gerritsma, J. de Klerk, and P. van Zanten, Solid State Commun. **17**(9), 1077 (1975).
7. C. Z. van Doorn, J. Appl. Phys. **46**(9), 3738 (1975).
8. D. W. Berreman and W. R. Heffner, Appl. Phys. Lett. **37**(1), 109 (1980).
9. С. П. Палто, М. И. Барник, ЖЭТФ **127**(1), 220 (2005).
10. С. П. Палто, М. И. Барник, ЖЭТФ **129**(6), 1132 (2006).

# Молекулярно-пучковая эпитаксия метаморфных гетероструктур с квантовыми точками InAs/InGaAs, излучающими в телекоммуникационном диапазоне длин волн

С. В. Сорокин<sup>1)</sup>, Г. В. Климко, И. В. Седова, А. И. Галимов, Ю. М. Серов, Д. А. Кириленко, Н. Д. Прасолов, А. А. Торопов

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

Поступила в редакцию 2 сентября 2024 г.

После переработки 19 сентября 2024 г.

Принята к публикации 19 сентября 2024 г.

В работе представлены результаты исследований гетероструктур с квантовыми точками InAs/InGaAs, выращенными методом молекулярно-пучковой эпитаксии на поверхности метаморфных буферных слоев InGaAs с линейным профилем изменения состава на подложках GaAs (001). Приведены результаты исследований выращенных гетероструктур методами рентгеновской дифрактометрии, просвечивающей электронной микроскопии и атомно-силовой микроскопии при формировании дополнительного слоя КТ на поверхности структур. Подтверждена тенденция к формированию квантовых объектов, вытянутых вдоль выделенного направления [1–10] (так называемых квантовых “штрихов”), обусловленная асимметричной поверхностной миграцией In в различных кристаллографических направлениях. Установлено, что поверхностная плотность квантовых точек и квантовых “штрихов” составляет  $(2\text{--}4) \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . При этом в спектрах низкотемпературной ( $T = 10 \text{ K}$ ) микро-фотолюминесценции в широком диапазоне длин волн (1.30–1.55 мкм) наблюдаются узкие линии, связанные с излучением из отдельных квантовых точек. На основе измерений методами атомно-силовой микроскопии и просвечивающей электронной микроскопии проведена оценка размеров и формы квантовых точек и продемонстрировано хорошее соответствие с параметрами, ранее опубликованными в литературе.

DOI: 10.31857/S0370274X24110072, EDN: WAINYL

**1. Введение.** Использование полупроводниковых квантовых точек (КТ) является одним из наиболее перспективных подходов к созданию источников неклассического света – однофотонных излучателей, которые востребованы для применения в системах оптических квантовых вычислений и квантовых коммуникаций [1]. Наилучшие результаты на сегодняшний день как по чистоте однофотонного излучения, так и по яркости (эффективности) однофотонного излучателя продемонстрированы на структурах с КТ InAs/GaAs, выращенных на подложках GaAs [2, 3]. Типичная длина волны излучения в этой системе материалов составляет  $\sim 0.9\text{--}1.1 \text{ мкм}$ , тогда как для передачи квантовой информации на большие расстояния необходимы эффективные источники одиночных фотонов, излучающие в телекоммуникационном С-диапазоне длин волн ( $\lambda = 1530\text{--}1565 \text{ нм}$ ), т. е. в пределах спектрального диапазона современных систем волоконно-оптической связи.

В настоящее время развиваются два основных подхода, позволяющие увеличить длину волны из-

лучения из КТ InAs и продвинуться в диапазон длин волн  $\sim 1550 \text{ нм}$ . Первый из них связан с переходом от подложки GaAs к подложке InP. При этом в рамках этого подхода также можно выделить два различных направления: формирование КТ InAs в матрице InP [4–7] и формирование КТ InAs в матрице InAlGaAs [8–11]. Второй подход связан с выращиванием метаморфного буферного слоя (ММБС)  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  и последующим формированием КТ InAs в матрице InGaAs [12–17]. Преимущества данного подхода связаны с возможностью (i) контролировать управлять величиной деформации и упругих напряжений при формировании КТ посредством изменения периода решетки матрицы, тем самым обеспечивая дополнительную свободу в вариации режимов роста КТ и (ii) использовать в конструкции гетероструктур эффективные распределенные брэгговские отражатели (РБО) типа  $\text{Al}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{As}/\text{GaAs}$ , а также стоп-слои/“жертвенные” слои на основе твердых растворов AlGaAs, необходимые для последующей пост-ростовой обработки пластин.

<sup>1)</sup>e-mail: sorokin@beam.ioffe.ru

В данной работе мы представляем результаты исследований гетероструктур с КТ InAs/InGaAs, выращенными методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на поверхности ММБС  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  с линейным профилем изменения состава на подложках GaAs (001). Несмотря на то, что ММБС с корневым профилем изменения состава по In более устойчивы к напряжениям, возникающим при выращивании последующих слоев гетероструктуры [18], выбор был сделан в пользу линейного профиля из-за простоты его расчета и реализации с использованием стандартных термоконтроллеров [19]. Кроме того, в этом случае облегчается контроль остаточной упругой деформации на поверхности ММБС [20].

## 2. Эксперимент.

Структуры с ММБС  $In_xGa_{1-x}As$  и КТ были выращены методом МПЭ на подложках GaAs (001) при использовании установки производства компании Semiteq. В качестве источников молекулярных пучков применялись два источника Ga, источники In, Al и клапанный источник As. Выращивание ММБС  $In_xGa_{1-x}As$  с линейным профилем изменения состава по In (от  $x = 0.05$  до  $x \sim 0.43$ ) осуществлялось путем добавления переменного потока In к фиксированному потоку Ga, соответствующего скорости роста GaAs  $\sim 0.4$  МС/с. Средняя скорость изменения состава по индию в ММБС составляет  $\sim 35\%$  In/мкм, что предполагает толщину ММБС  $\sim 1.05$  мкм. Оптимальные режимы МПЭ роста ММБС  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  были ранее определены в работе [19]: температура подложки  $T_S = 380-400^\circ\text{C}$ , соотношение потоков  $\text{As}/(\text{In} + \text{Ga}) \sim (1.5-2)$ . После выращивания ММБС  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  с заданным максимальным содержанием In температуру подложки повышали в потоке молекул  $\text{As}_4$  до требуемой для осаждения слоя КТ. Слой КТ InAs выращивался не непосредственно на ММБС  $In_xGa_{1-x}As$ , как в работах [14–16], а на поверхности тонкого промежуточного (interlayer) слоя GaAs толщиной  $\sim 3$  МС, вставленного между слоем ММБС и слоем КТ. Верхний прикрывающий КТ слой  $In_yGa_{1-y}As$  ( $y = 0.26-0.28$ ) толщиной  $\sim 200$  нм, также называемый далее “инверсным”, выращивался при низкой температуре  $T_S \sim 420^\circ\text{C}$ , чтобы снизить возможную взаимодиффузию материала КТ и матрицы в процессе зарашивания КТ. Дополнительно на поверхности инверсного слоя выращивался слой незарощенных КТ с целью контроля поверхностной плотности, формы и размеров КТ InAs/InGaAs. При этом режимы формирования поверхностного слоя КТ в целом соответствовали режимам роста зарощенных КТ. Схема исследуемых структур приведена на рис. 1.

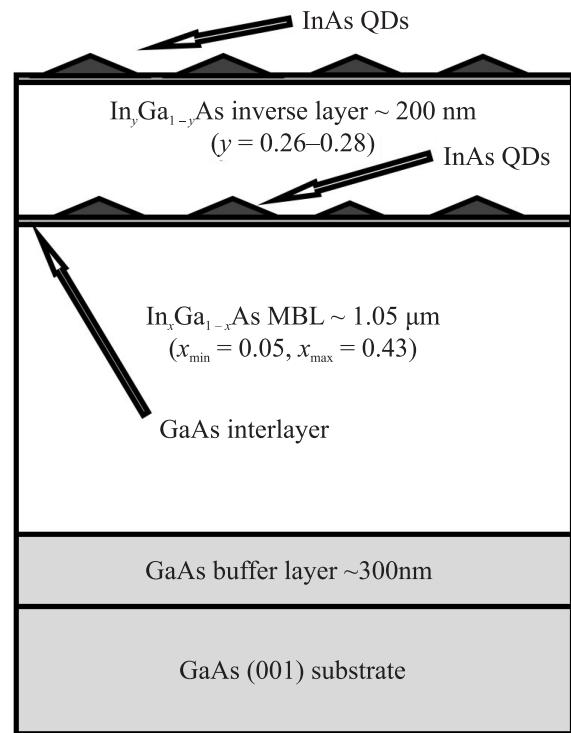


Рис. 1. Схематическое изображение конструкции исследуемых структур с КТ InAs/InGaAs

Для исследования выращенных метаморфных гетероструктур с  $In_xGa_{1-x}As$  ММБС и КТ применялся ряд характеризационных методик: метод рентгеновской дифрактометрии (РД), просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) в геометрии поперечного сечения, метод спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ) и микро-ФЛ, а также метод атомно-силовой микроскопии (АСМ). Рентгено-дифракционные исследования полученных образцов производились в трехкристальной схеме на многофункциональном рентгеновском дифрактометре D8 Discover (Bruker-AXS, Германия) в режиме  $\omega-2\theta$  сканирования в области отражения (004) GaAs. Исследования структурных свойств методом ПЭМ в геометрии поперечного сечения выполнялись на микроскопе Jeol JEM-2100F (ускоряющее напряжение 200 кВ, разрешение пикселя 0.19 нм). Образцы готовили с использованием стандартной методики – механической полировки с последующим утонением путем травления ионами  $\text{Ar}^+$  (4 кэВ). Спектры ФЛ измерялись при  $T = 77\text{ K}$  при накачке непрерывным полупроводниковым лазером с длиной волны  $\lambda = 660$  нм. Измерение спектров микро-ФЛ проводилось при температуре (5–6) К с использованием гелиевого криостата ST-500-Attocube (Janis). Образец возбуждался лазерными импульсами длитель-

нностью 5 пс и частотой следования 80 МГц, генерируемым перестраиваемым по длине волны титан-сапфировым лазером с синхронизацией мод Tsunami (Spectra Physics). Для фокусировки лазера на образце и сбора излучения ФЛ из КТ использовался 50-кратный объектив (Mitutoyo plan apochromat) с числовой апертурой NA = 0.42. Лазерное излучение было сфокусировано в пятно с минимальным размером 3 мкм. Спектр излучения КТ анализировался с помощью решеточного спектрометра (SpectraPro) с охлаждаемой ПЗС-матрицей PyLoN IR (Princeton Instruments).

Выбор режима формирования слоя КТ InAs ( $T_S = 470^\circ\text{C}$ , скорость осаждения  $\sim 0.02 \text{ МС/с}$ , соотношение потоков As/In  $\sim 200\text{--}300$ ) осуществляли, ориентируясь на данные измерений тестовых структур методами АСМ и спектроскопии ФЛ. При этом основным критерием являлось наличие интенсивных узких линий ФЛ из отдельных КТ в диапазоне 1.50–1.55 мкм в спектрах микро-ФЛ структур.

**3. Результаты и обсуждения.** Дифракционные кривые, измеренные вблизи рефлекса GaAs (004) двух различных структур с  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ММБС и КТ (обозначенных как #A и #B), приведены на рис. 2, при этом для удобства восприятия кривые

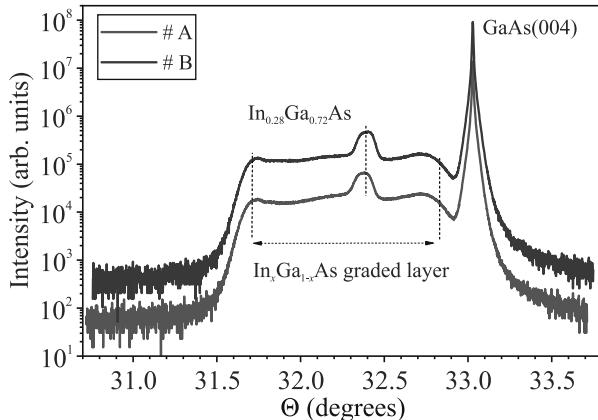


Рис. 2. (Цветной онлайн) Дифракционные кривые вблизи симметричного отражения GaAs (004) для двух структур с ММБС  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , отличающихся параметрами формирования КТ

разнесены по оси ординат. Номинально, конструкция и режим формирования ММБС, а также толщина и состав инверсного слоя для этих двух структур были выбраны одинаковыми. Из рисунка 2 следует, что дифракционные кривые практически совпадают друг с другом, что, с одной стороны, отражает высокую воспроизводимость процесса МПЭ, а с другой стороны, указывает на идентичность деформаций и упругих напряжений на поверхности ММБС

перед формированием слоя КТ. Узкий пик вблизи  $\theta \approx 33.03^\circ$  соответствует отражению (004) GaAs, в то время как широкий П-образный пик происходит от ММБС  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.05\text{--}0.43$ ). Интенсивный пик при  $\theta \approx 32.2^\circ$  на дифракционной кривой соответствует слою  $\text{In}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$  толщиной  $\sim 0.2 \text{ мкм}$ , выращенному поверх ММБС и слоя КТ. Большая ширина этого пика на половине высоты связана с его малой толщиной.

На рисунке 3а приведено изображение структуры #A, полученное методом ПЭМ в геометрии поперечного сечения. На изображении четко различаются все основные слои, образующие структуру: подложка (буферный слой) GaAs, ММБС  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с линейным профилем изменения состава толщиной  $\sim 1.04 \text{ мкм}$ , слой КТ InAs/InGaAs, выращенный на поверхности ММБС, и инверсный слой  $\text{In}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$  толщиной  $\sim 200 \text{ нм}$ . Измеренные по данным ПЭМ толщины слоев хорошо согласуются с заданными значениями.

На ПЭМ изображении также отчетливо прослеживается многоэтажный характер сетки дислокаций несоответствия (ДН), формирование которой может быть качественно объяснено в рамках простой модели баланса сил [21]. При этом в верхней части ММБС вблизи слоя КТ образуется область с остаточной деформацией, характеризуемая малым количеством дефектов. Образование этой области ранее было объяснено Терсоффом в рамках равновесной модели распределения дислокаций [20]. На изображении ПЭМ на рис. 3а также видно, что ДН частично проникают в буферный слой GaAs, в том числе сегмент ДН образуется на интерфейсе “буферный слой GaAs/подложка GaAs”. В верхней части структуры как в области ММБС, примыкающей к слою КТ, так и в инверсном слое InGaAs наблюдается низкая (менее  $10^7/\text{см}^2$ ) плотность прорастающих дислокаций. Нижний предел их обнаружения определяется чувствительностью метода ПЭМ. Также стоит отметить отсутствие дислокаций или дефектов упаковки, зарождающихся на интерфейсе ММБС  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{слой КТ}$ .

На рисунке 3б приведено увеличенное ПЭМ изображение структуры #A вблизи слоя КТ, также полученное в геометрии поперечного сечения. Для данной структуры номинальная толщина осажденного InAs составила  $\sim 2.4 \text{ МС}$ . На изображении отчетливо различаются особенности, которые можно связать с формированием КТ InAs/InGaAs. При этом для представленных на рис. 3б КТ наблюдается большой разброс как по латеральным размерам (15–30 нм), так и по высоте (до 4–5 нм).

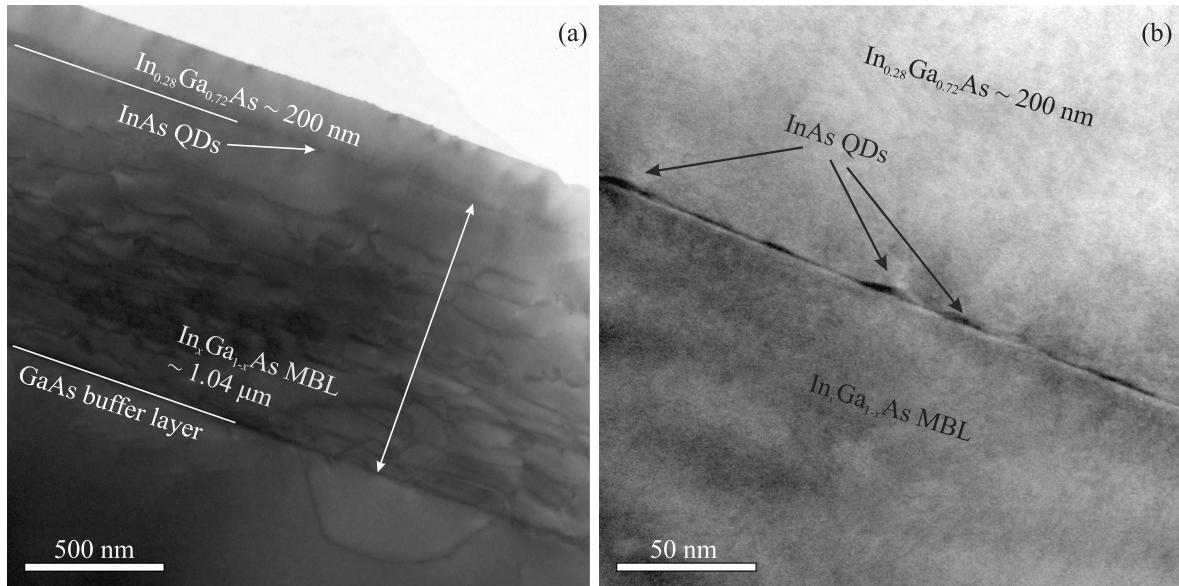


Рис. 3. ПЭМ изображения в геометрии поперечного сечения структуры #A, содержащей 1 мкм –  $In_xGa_{1-x}As$  ММБС с линейным профилем изменения состава, слой КТ  $InAs/InGaAs$ , выращенный на поверхности ММБС, и инверсный слой  $In_{0.28}Ga_{0.72}As$  толщиной ~200 нм. (а) – Общий вид; (б) – область вблизи слоя КТ  $InAs/InGaAs$

Как было отмечено выше, в представленных структурах слой InAs КТ формировался на поверхности тонкого промежуточного слоя GaAs толщиной ~3 МС. Идея осаждения подслоя GaAs перед формированием слоя КТ не является абсолютно новой или оригинальной. Например, в работе [22] сверхтонкий (до ~2 МС) слой GaAs, внедренный между буферным слоем InGaAsP и слоем КТ InAs, применялся для контролируемого управления длиной волны излучения из КТ InAs/InGaAsP, выращиваемых методом МОГФЭ. Было показано, что введение этого промежуточного слоя эффективно подавляет обмен As/P и уменьшает высоту КТ InAs/InGaAsP, а также оказывает влияние на кинетику формирования КТ и, соответственно, приводит к изменению их формы от КТ до квантовых штрихов. J. S. Kim и соавторы также использовали тонкий слой GaAs с целью вариации условий формирования КТ InAs в матрице  $InAl(Ga)As$ , согласованной по периоду решетки с подложкой InP [23]. Таким образом, добавление тонкого промежуточного слоя GaAs толщиной несколько монослоев в конструкцию гетероструктуры позволяет управлять длиной волны излучения, а также модифицировать кинетику формирования КТ InAs/InGaAs. Выращивание тонкого слоя GaAs перед слоем КТ частично компенсирует накопленные упругие напряжения в верхней части ММБС и снижает деформации, так как период решетки GaAs меньше, чем у равновесного слоя InGaAs, согласован-

ного с ММБС, а также способствует формированию КТ на более упорядоченной поверхности, что подтверждается появлением четко выраженной реконструкции поверхности после осаждения 3 МС GaAs непосредственно перед началом осаждения слоя InAs КТ.

Данные ПЭМ хорошо коррелируют с данными ACM, полученными при исследовании КТ InAs, выращенных на поверхности структуры при тех же режимах МПЭ, что и зарощенные КТ на ММБС (рис. 4). Отчетливо прослеживается тенденция к вытягиванию КТ вдоль выделенного направления [1-10] с образованием так называемых квантовых штрихов (quantum dashes) [24], что связано с асимметричной поверхностной миграцией In вдоль различных кристаллографических направлений [25]. Приблизительная оценка поверхностной плотности КТ  $\sim (2-4) \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . При этом наблюдается неравномерное распределение КТ по поверхности образца, и даже на масштабе  $(2 \times 2) \text{ мкм}^2$  видны области, в которых плотность КТ уменьшается более чем на порядок величины.

На рисунке 4а такие области выделены черными квадратами. Также прослеживается тенденция к аккумуляции КТ на выпуклых особенностях рельефа (на вершинах “холмов”). Из профилей изменения по высоте можно оценить средние латеральные размеры и высоту КТ:  $L = 20-30 \text{ нм}$ ,  $H \sim 3 \text{ нм}$ , при этом также наблюдается большой разброс КТ по размерам –  $L = 10-45 \text{ нм}$ ,  $H = 2-6 \text{ нм}$ .

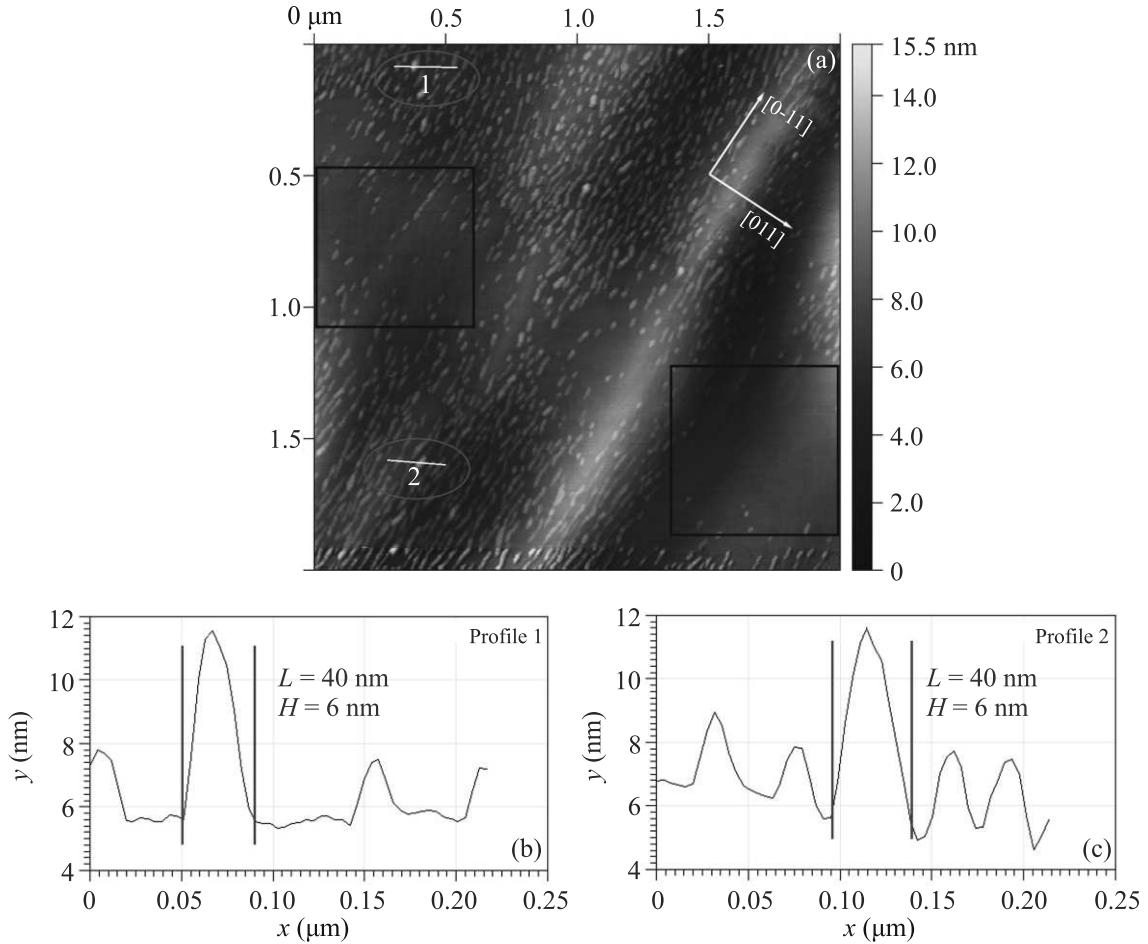


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – ACM изображение поверхности ( $2 \times 2 \mu\text{м}^2$ ) структуры # А и (б), (с) – профили изменения высоты поверхности, измеренные вдоль направлений, показанных белыми линиями, в области вблизи “крупных” КТ с латеральными размерами  $L = 40–45 \text{ нм}$  и высотой  $H \sim 6 \text{ нм}$

В качестве примера профили изменения по высоте вблизи “больших” КТ с латеральными размерами  $L = 40–45 \text{ нм}$  и высотой  $H = 5.5–6 \text{ нм}$  приведены на рис. 4б, с. При этом размеры и форма “крупных” КТ хорошо согласуются с опубликованными ранее [15]. Плотность таких “объектов”, которые, по всей видимости, ответственны за излучение в диапазоне  $1.50–1.55 \mu\text{м}$  [16], существенно меньше общей плотности КТ и составляет  $\sim (1–4) \times 10^8 \text{ см}^{-2}$ .

На рисунке 5 приведены ACM изображения поверхности ( $2 \times 2 \mu\text{м}^2$ ) двух структур, отличающихся друг от друга только наличием промежуточного слоя GaAs толщиной 3 МС, вставленного между слоем ММБС и КТ. Номинальная толщина слоя InAs составила  $\sim 2.4 \text{ МС}$  (время осаждения 120 с при скорости роста  $\sim 0.02 \text{ МС/с}$ ). Из сравнения изображений следует, что тенденция к формированию протяженных квантовых штрихов более отчетливо проявляется при отсутствии промежуточного слоя GaAs. По-

лученный результат подтверждает, что добавление промежуточного слоя GaAs оказывает существенное влияние на кинетику формирования КТ.

На рисунке 6 представлены спектры ФЛ и микро-ФЛ для структуры # А. Спектры ФЛ были измерены в шести различных точках образца в направлении от центра к краю пластины при  $T = 77 \text{ К}$ . Цвет спектров на рис. 6а соответствует цвету точек на выколотой полоске из  $1/4$  пластины диаметром 76.2 мм, показанной в правой части рис. 6а. Длина волны максимума ФЛ при  $T = 77 \text{ К}$  составляет  $\lambda = 1480 \text{ нм}$ , однако широкий пик ФЛ также захватывает и диапазон 1530–1565 нм. На коротковолновом краю спектра наблюдается небольшой пик с максимумом около 1340 нм, который может быть вызван или ФЛ в смачивающем слое, или излучением из “мелких” КТ. В спектре микро-ФЛ, измеренном в одной из точек вблизи центра пластины, наблюдаются узкие линии, связанные с излучением из отдельных КТ с дли-

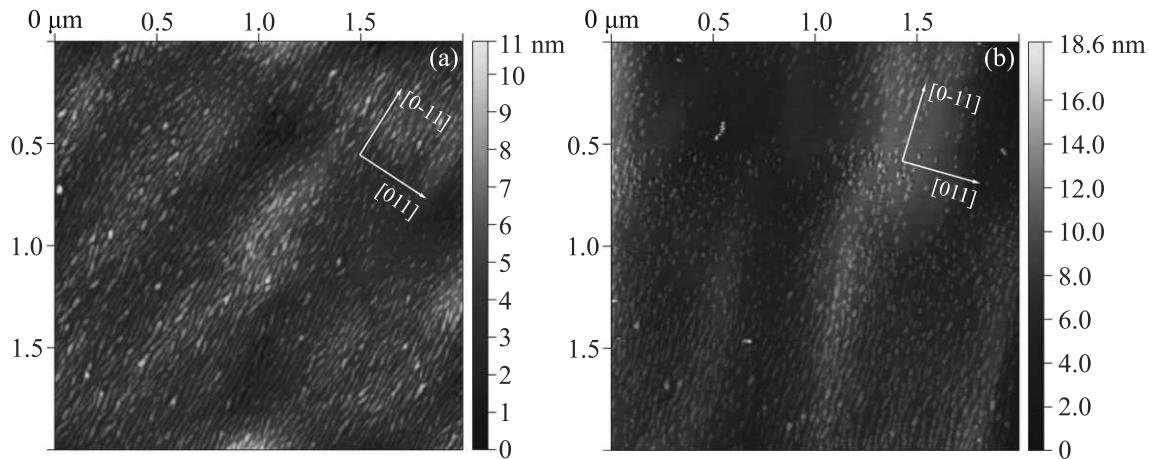


Рис. 5. (Цветной онлайн) АСМ изображения поверхности ( $2 \times 2 \text{ мкм}^2$ ) двух структур, отличающихся друг от друга наличием промежуточного слоя GaAs толщиной 3 МС, вставленного между слоем ММБС и КТ InAs. Номинальная толщина осажденного слоя InAs – 2.4 МС. (а) – Без промежуточного слоя GaAs; (б) – с промежуточным слоем GaAs толщиной 3 МС

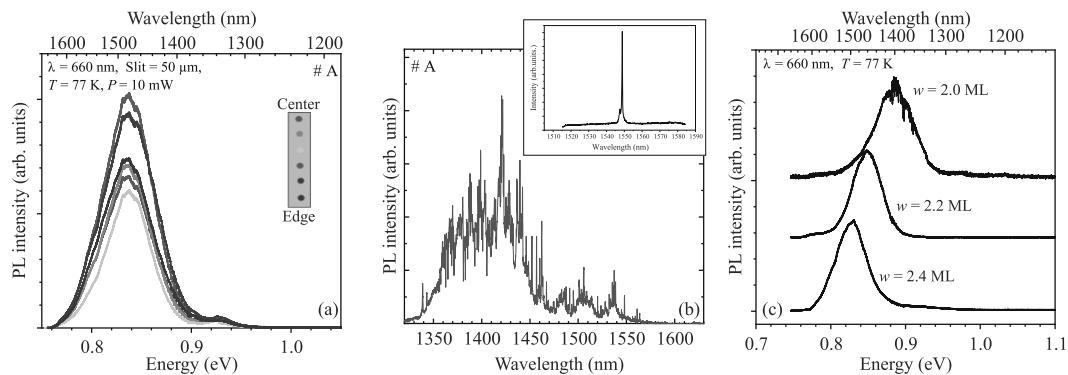


Рис. 6. (Цветной онлайн) (а) – Спектр ФЛ ( $T = 77 \text{ K}$ ) гетероструктуры # A. (б) – Спектр микро-ФЛ ( $T = 5 \text{ K}$ ) гетероструктуры # A. Вставка к рисунку демонстрирует одиночную линию ФЛ из КТ с длиной волны  $\sim 1550 \text{ нм}$ . (в) – Нормированные спектры ФЛ ( $T = 77 \text{ K}$ ) для трех структур с различной номинальной толщиной слоя InAs КТ. Температура осаждения КТ –  $T_S = 470^\circ\text{C}$

ной волны от  $\sim 1350$  до  $1550 \text{ нм}$ . Стоит отметить, что плотность “больших” КТ, отвечающих излучению в С-диапазоне, мала, и это хорошо согласуется с малым количеством линий излучения в диапазоне  $1530$ – $1550 \text{ нм}$  (рис. 6б). Более того, на поверхности пластины можно найти области с интенсивными одиночными линиями излучения из КТ с длиной волны  $\sim 1550 \text{ нм}$ . Пример такой одиночной линии ФЛ приведен на вставке к рис. 6б.

Влияние номинальной толщины слоя InAs на сдвиг максимума ФЛ при неизменных параметрах ММБС и верхнего прикрывающего слоя приведено на рис. 6с для трех структур с различной номинальной толщиной слоя InAs – от 2.0 до 2.4 МС. Температура осаждения КТ –  $T_S = 470^\circ\text{C}$ . Спектры ФЛ всех структур были измерены в точках вблизи цен-

тра пластины. Видно, что увеличение номинальной толщины слоя InAs КТ от 2.0 до 2.4 МС приводит к длинноволновому сдвигу максимума ФЛ от  $\sim 1400$  до  $\sim 1490 \text{ нм}$ .

**4. Заключение.** В работе представлены исследования гетероструктур с КТ InAs/InGaAs, выращенными методом МПЭ на поверхности метаморфных буферных слоев  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  (001) с линейным профилем изменения состава. Изображениями ПЭМ в геометрии поперечного сечения подтверждена низкая плотность ПД в слоях, выращенных на поверхности ММБС  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Показано, что введение в конструкцию структуры тонкого промежуточного слоя GaAs толщиной  $\sim 3 \text{ МС}$ , вставленного между слоем ММБС и слоем КТ, оказывает существенное влияние на кинетику формирования

КТ. Установлено, что поверхностная плотность КТ и квантовых “штрихов” составляет  $\sim (2\text{--}4) \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . Из анализа профилей изменения по высоте изображений АСМ установлено, что плотность “больших” КТ с латеральными размерами  $L = 40\text{--}45 \text{ нм}$  и высотой  $H = 5.5\text{--}6 \text{ нм}$ , которые, по всей видимости, ответственны за излучение в диапазоне  $1.50\text{--}1.55 \text{ мкм}$ , существенно меньше общей плотности КТ и составляет  $\sim (1\text{--}4) \times 10^8 \text{ см}^{-2}$ . Продемонстрировано наличие узких линий, связанных с излучением из отдельных КТ, в спектрах низкотемпературной ( $T = 10 \text{ K}$ ) микро-ФЛ.

**Финансирование работы.** Работа реализуется при финансовой поддержке открытого акционерного общества “Российские железные дороги”.

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

1. Y. Arakawa and M. J. Holmes, *Appl. Phys. Rev.* **7**, 021309 (2020).
2. N. Tomm, A. Javadi, N. O. Antoniadis, D. Najar, M. C. Löbl, A. R. Korsch, R. Schott, S. R. Valentin, A. D. Wieck, A. Ludwig, and R. J. Warburton, *Nat. Nanotechnol.* **16**, 399 (2021).
3. X. Ding, Y.-P. Guo, M.-C. Xu et al. (Collaboration), arXiv:2311.08347 (2023).
4. D. A. Vajner, P. Holewa, E. Zięba-Ostoj, M. Wasiluk, M. von Helversen, A. Sakanas, A. Huck, K. Yvind, N. Gregersen, A. Musiał, M. Syperek, E. Semenova, and T. Heindel, *ACS Photonics* **11**, 339 (2024).
5. Z. Ge, T. Chung, Y.-M. He, M. Benyoucef, and Y. Huo, *Nano Lett.* **24**, 1746 (2024).
6. P. Holewa, E. Zięba-Ostoj, D. A. Vajner et al. (Collaboration), arXiv:2304.02515v1 (2023).
7. P. Holewa, D. A. Vajner, E. Zięba-Ostoj et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **15**, 3358 (2024).
8. C. Gilfert, E.-M. Pavelescu, and J. P. Reithmaier, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 191903 (2010).
9. M. Benyoucef, M. Yacob, J. P. Reithmaier, J. Kettler, and P. Michler, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 162101 (2013).
10. M. Yacob, J. P. Reithmaier, and M. Benyoucef, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 022113 (2014).
11. J. Kaupp, Y. Reum, F. Kohr, J. Michl, Q. Buchinger, A. Wolf, G. Peniakov, T. Huber-Loyola, A. Pfenning, and S. Höfling, *Adv. Quantum Technol.* **6**, 2300242 (2023).
12. S. L. Portalupi, M. Jetter, and P. Michler, *Semicond. Sci. Technol.* **34**, 053001 (2019).
13. M. Paul, F. Olbrich, J. Höschele, S. Schreier, J. Kettler, S. L. Portalupi, M. Jetter, and P. Michler, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 033102 (2017).
14. P. Wyborski, P. Podemski, P. A. Wroński, F. Jabeen, S. Höfling, and G. Sęk, *Materials* **15**, 1071 (2022).
15. P. A. Wroński, P. Wyborski, A. Musiał, P. Podemski, G. Sęk, S. Höfling, and F. Jabeen, *Materials* **14**, 5221 (2021).
16. P. Wyborski, M. Gawełczyk, P. Podemski, P. A. Wroński, M. Pawlyta, S. Gorantla, F. Jabeen, S. Höfling, and G. Sęk, *Phys. Rev. Applied* **20**, 044009 (2023).
17. R. Sittig, C. Nawrath, S. Kolatschek, S. Bauer, R. Schaber, J. Huang, P. Vijayan, P. Pruy, S. L. Portalupi, M. Jetter, and P. Michler, *Nanophotonics* **11**, 1109 (2022).
18. F. Romanato, E. Napolitani, A. Carnera, A. V. Drigo, L. Lazzarini, G. Salviati, C. Ferrari, A. Bosacchi, and S. Franchi, *J. Appl. Phys.* **86**, 4748 (1999).
19. S. V. Sorokin, G. V. Klimko, I. V. Sedova, A. A. Sitnikova, D. A. Kirilenko, M. V. Baidakova, M. A. Yagovkina, T. A. Komissarova, K. G. Belyaev, and S. V. Ivanov, *J. Cryst. Growth* **455**, 83 (2016).
20. J. Tersoff, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 693 (1993).
21. Y. Song, Sh. Wang, I. Tångring, Z. Lai, and M. Sadeghi, *J. Appl. Phys.* **106**, 123531 (2009).
22. S. Anantathanasarn, R. Nötzel, P. van Veldhoven, T. Eijkemans, and J. Wolter, *J. Appl. Phys.* **98**, 013503 (2005).
23. J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, W. S. Han, H. S. Kwack, C. W. Lee, and D. K. Oh, *J. Cryst. Growth* **259**, 252 (2003).
24. M. Z. M. Khan, T. K. Ng, and B. S. Ooi, *Prog. Quantum Electron.* **38**, 237 (2014).
25. R. Enzmann, M. Bareiß, D. Baierl, N. Hauke, G. Böhm, R. Meyer, J. Finley, and M.-C. Amann, *J. Cryst. Growth* **312**, 2300 (2010).

# Квазиклассическое рассеяние на краевых дефектах в топологических изоляторах в магнитном поле<sup>1)</sup>

А. Ш. Дотдаев<sup>+</sup>, Я. И. Родионов<sup>\* 2)</sup>, А. В. Рожков<sup>\*</sup>, П. Д. Григорьев<sup>×</sup>

<sup>+</sup>Национальный исследовательский технологический университет “МИСИС”, 119049 Москва, Россия

<sup>\*</sup>Институт теоретической и прикладной электродинамики, 125412 Москва, Россия

<sup>×</sup>Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау, 117940 Москва, Россия

Поступила в редакцию 28 августа 2024 г.

После переработки 19 сентября 2024 г.

Принята к публикации 21 сентября 2024 г.

Для электронов, распространяющихся по краевым состояниям двухмерного (2D) топологического изолятора, мы изучаем рассеяние на краевых дефектах, неизбежно присутствующих в реалистичных образцах 2D топологического изолятора, в присутствии внешнего однородного магнитного поля. Магнитное поле нарушает симметрию обращения времени, разрушая топологическую защиту фермионных состояний. Независимо от формы краевой деформации и величины магнитного поля, рассеяние всегда является надбарьерным. В такой ситуации удобно воспользоваться квазиклассическим методом Покровского–Халатникова. Для широких классов аналитических профилей деформации это позволяет теоретически расчитать не только основной экспоненциальный вклад в амплитуду рассеяния, но и предэкспоненциальный множитель.

DOI: 10.31857/S0370274X24110086, EDN: VLXZPB

**1. Введение.** Топологические изоляторы (ТИ) – это новые состояния квантовой материи, которые не могут быть адиабатически преобразованы в обычные изоляторы и полупроводники. Они характеризуются полной диэлектрической щелью в объеме и бесщелевыми состояниями, защищенными симметрией обращения времени (TR-симметрией), на краю или поверхности. Возможные применения ТИ включают маломощную электронику [1] и устойчивые к ошибкам квантовые вычисления [2, 3]. Значительный интерес научного сообщества к свойствам ТИ обусловлен тем, что удается экспериментально наблюдать транспорт в краевых состояниях (в квантовых ямах HgTe) [4] и в поверхностных состояниях [5] (в кристаллах Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> [6]). В большинстве случаев образцы 2D и 3D ТИ представляют собой разные соединения (исключением является HgTe [7]). Другие реализации одномерных топологически защищенных состояний включают состояния на краях между поверхностями трехмерного ТИ [8] и состояния, возникающие в ступенчатых краях [9, 10].

Главная особенность краевых состояний в 2D ТИ заключается в том, что из-за зацепления спина и

импульса, рассеяние (всегда являющееся рассеянием назад для краевых мод 2D ТИ) с неизбежностью сопровождается переворотом спина квазичастицы. Поэтому в отсутствие магнитных примесей упругое рассеяние краевых состояний строго запрещено. Таково замечательное проявление TR-симметрии для таких систем [11]. Важной особенностью всех ТИ является их сильное спин-орбитальное взаимодействие (СОВ), [12, 13]. Следует отметить, что в работе [14] уже исследовалось влияние инверсионной асимметрии интерфейса на краевые состояния в таких системах в поперечном магнитном поле. Однако в ней совершенно не учтены СОВ и влияние краевых деформаций. В этой статье мы предлагаем модельный краевой гамильтониан, описывающий влияние СОВ на краевые дефекты. В нашем подходе краевой дефект описывается профилем угла деформации (см. рис. 1). Упругое рассеяние становится возможным при наличии однородного магнитного поля, ортогонального кромке.

В нашей работе мы построим теорию рассеяния в такой системе для широких классов профилей деформации края. Особое внимание уделяется аналитической структуре решений соответствующего уравнения Дирака. Нами будут изучены два взаимодополняющих случая: квазиклассический режим, соответствующий гладкой деформации края, а так-

<sup>1)</sup>См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала [www.jetletters.ac.ru](http://www.jetletters.ac.ru)

<sup>2)</sup>e-mail: [yaroslav.rodionov@gmail.com](mailto:yaroslav.rodionov@gmail.com)

же режим теории возмущений по малому внешнему магнитному полю. В тех ситуациях, когда параметры задачи допускают применение обоих этих подходов, мы убедимся в совпадении полученных ответов.

Наше исследование призвано пролить некоторый свет на то, как TR-симметрия влияет на аналитические свойства амплитуды рассеяния. В отсутствие магнитного поля удается найти точное решение для любого профиля деформационного потенциала. Для гладких профилей деформации используется метод Покровского–Халатникова (П–Х) [15], позволяющий получить аналитическое выражение для амплитуды отражения с предэкспоненциальной точностью.

**2. Модель.** Мы предполагаем следующую форму гамильтониана для электронов в двумерном ТИ:

$$\begin{aligned} \hat{H} &= H_0 + H_{so}; \\ H_0 &= v_{F0}\hat{p}_x\hat{\sigma}_y, \quad H_{so} = \alpha\boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\nu}, \end{aligned} \quad (1)$$

где  $H_0$  – эффективный гамильтониан краевых состояний, движущихся вдоль оси  $x$  ( $y = 0$ ) [16] и  $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$  – матрицы Паули, действующие в базисе спина  $1/2$ .  $H_0$  следует из особой зонной структуры, не зависящей от спин-орбитального взаимодействия, а  $v_{F0}$  представляет собой затравочную скорость Ферми.

Спин-орбитальный гамильтониан  $H_{so}$  написан стандартным образом для двумерного электронного газа [17];  $\mathbf{p}$  – импульс электронов,  $\boldsymbol{\nu}$  – единичный вектор, перпендикулярный поверхности (или границе раздела в гетероструктуре),  $\alpha$  – параметр Рашбы, зависящий от материала и внешнего электрического поля (затворного напряжения) [12, 13]. Последнее вызывает расщепление энергетических зон из-за спина электрона (расщепление Рашбы), что хорошо видно в зонной структуре ТИ-материалов [18, 13].

Здесь важно отметить, как правильно следует выбрать направление вектора нормали  $\boldsymbol{\nu}$  в уравнении (1). В принципе, правильное направление можно определить из исходного гамильтониана ТИ, который мы здесь не приводим. Однако мы опираемся на результаты статьи [18], где показано, что скорость Ферми ТИ растет с уменьшением коэффициента Рашбы  $\alpha$ . Как мы увидим ниже, правильное направление  $\boldsymbol{\nu}$  соответствует указанному на рис. 1.

Теперь рассмотрим деформацию края, представленную на рис. 1. Профиль изгиба образца в плоскости  $yz$  определяется функцией  $\phi(x)$ . Это, в свою очередь, приводит к модификации спин-орбитального взаимодействия

$$\begin{aligned} H_{so} &= -\alpha\hat{p}_x\hat{\sigma}_y + \hat{U}(x); \\ \hat{U}(x) &= \frac{\alpha}{2}[\hat{p}_x\phi(x) + \phi(x)\hat{p}_x]\sigma_z \end{aligned} \quad (2)$$

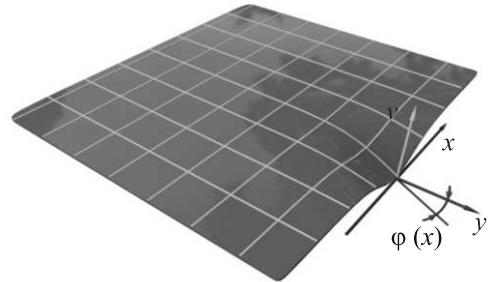


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическая иллюстрация геометрического дефекта края в образце 2D ТИ

для гладких и неглубоких деформаций ( $\phi(x) \ll 1$ ). Здесь мы ввели антикоммутатор для сохранения эрмитовости исходного гамильтониана СОВ (1). Антикоммутатор необходим в силу того, что вектор нормали  $\boldsymbol{\nu}$  теперь стал функцией координаты  $x$ . Первый член в (2),  $-\alpha\hat{p}_x\hat{\sigma}_y$ , как видно из исходного гамильтониана (1), просто перенормирует скорость Ферми. Последний член в (2) предполагается рассматривать как потенциальный профиль упругого рассеяния задачи. В дальнейшем было бы удобно включить в функцию профиля параметр  $\alpha$ :  $\varphi = \alpha\phi$ .

Потенциальный профиль  $\hat{U}$  в (2) сам по себе не приводит к рассеянию краевых состояний, поскольку не нарушает TR-симметрию. Однако, как мы увидим, в присутствии магнитного поля это не так. Приложим магнитное поле в направлении оси  $z$  (перпендикулярно плоскости образца топологического изолятора). Выберем следующую калибровку вектор-потенциала:  $\mathbf{A} = (\mathcal{H}y, 0, 0)$ . Координата  $y$  в нашем случае остается постоянной  $y = \text{const}$ , которую смело можно положить равной нулю (альтернативно, для постоянной  $y$  векторный потенциал можно убрать из уравнения Дирака с помощью тривиального калибровочного преобразования). Таким образом, единственным изменением эффективного гамильтониана является добавление взаимодействия спина с магнитным полем (зеемановское слагаемое):

$$\hat{H}^{1D}(x) = v_F\hat{p}_x\sigma_y + \mu\sigma_z + \hat{U}(x), \quad (3)$$

где  $v_F = v_{F0} - \alpha$  – перенормированная скорость Ферми, а  $\mu = \mu_B g \mathcal{H}$ ,  $g$  – г-фактор для краевых электронов [19]. Мы прикладываем поперечное магнитное поле, ввиду того, что магнитное поле в плоскости не влияет на краевые состояния, поскольку соответствующий член в гамильтониане можно исключить калибровочным преобразованием операторов электронного поля [20].

Следовательно, нам необходимо решить задачу рассеяния для следующего уравнения Дирака:

$$\left[ v_F \hat{p}_x \sigma_y + \mu \sigma_z + \hat{U}(x) \right] \psi(x) = \varepsilon \psi(x). \quad (4)$$

Легко видеть, что даже в отсутствие деформационного потенциала  $\hat{U}(x)$  зеемановский член  $\mu \sigma_z$  открывает щель в спектре краевого состояния ширины  $\mu$ . Поэтому состояния рассеяния всегда имеют энергию больше  $\mu$  и условие:

$$\varepsilon > \mu \quad (5)$$

предполагается всегда выполненным.

**3. Методы.** Уравнение Дирака (4) представляет собой систему двух дифференциальных уравнений первого порядка на дублет  $\psi = (\psi_1, \psi_2)$ . Самым простым и (неожиданно) удобным подходом к ее анализу оказалось приведение системы (4) к дифференциальному уравнению 2-го порядка относительно единственной функции  $\psi_1$ :

$$2\hbar^2(\varphi^2+1)\alpha\psi_1''+2i\hbar[\hbar^2(\varphi^2+1)\varphi''+\varphi\alpha(2\mu-3i\hbar\varphi')]\psi_1' + \left[ \frac{1}{2}\alpha\beta(\alpha-2i\hbar\varphi') + 4\varepsilon\hbar^2\varphi\varphi'' \right] \psi_1 = 0, \quad (6)$$

$$\psi_2 = \frac{2\hbar(\varphi^2+1)\psi_1' - i\psi_1\varphi\beta(x)}{\alpha(x)}, \quad (7)$$

где  $\alpha(x) = 2(\mu + \varepsilon) - i\hbar\varphi'$ ,  $\beta(x) = 2(\mu - \varepsilon) + i\hbar\varphi'$ .

Вывод (6) прост, промежуточные формулы для удобства читателя мы приводим в разделе А (см. дополнительные материалы). В дальнейшем мы будем называть это уравнение *уравнением Дирака*. Дифференциальное уравнение (6) не может быть решено точно. Мы проанализируем его в двух различных подходах:

(i) квазиклассический метод, отвечающий плавной деформации  $\varphi(x)$  ребра;

(ii) теория возмущений по напряженности магнитного поля (зеемановской энергии)  $\mu$ . Затем мы покажем, как эти два подхода прекрасно сшиваются.

**3.1. Квазиклассическое приближение.** Исследование уравнения 4 в квазиклассической парадигме требует указания малого параметра задачи. Физически, квазиклассический подход предполагает гладкость потенциальной системы.

В нашем случае роль потенциала играет профиль краевой деформации  $\varphi(x)$ . Соответствующий масштаб изменения потенциала обозначим  $a$ . Следовательно, гладкость потенциала означает, что дебройлевская длина волны  $\hbar v_F / \varepsilon$  намного меньше  $a$ :

$$\frac{\lambda}{a} \equiv \frac{\hbar v_F}{\varepsilon a} \ll 1 \quad (\text{semiclassical approximation}). \quad (8)$$

Как мы увидим в дальнейшем анализе, структура квазиклассического рассеяния в задаче такова, что ввиду условия (5) квазиклассический импульс никогда не обращается в нуль на вещественной оси, что делает рассеяние всегда *надбарьерным* событием. Наиболее адекватным подходом к решению задачи о надбарьерном отражении является метод П-Х [15]. Далее для удобства мы будем использовать *естественные* единицы  $\hbar = v_F = 1$ , восстанавливая их там, где это необходимо.

**3.2. Метод П-Х.** Идею метода можно сформулировать следующей последовательностью шагов (см. также изящную работу М. Берри [21]):

(i) Выполнить аналитическое продолжение квазиклассического решения в комплексную плоскость по так называемой антистоксовой линии  $\text{Im} \int_{z_0}^z k(z) dz = 0$ , где  $k(z)$  – квазиклассический импульс, а  $z_0$  – точка поворота в комплексной плоскости.

(ii) Построить точное решение уравнения Шредингера в окрестности точки поворота  $z_0$  (где импульс  $k(z)$  можно разложить в ряд Тейлора, сильно упростив, таким образом, исходное уравнение).

(iii) Найти асимптотику точного решения на антистоксовых линиях, идущих вправо и влево от точки поворота.

(iv) Предполагая, что существует непустое пересечение области применимости асимптотик точного решения и квазиклассического решения (заштрихованная область на рис. 2), спить их на антистоксовых линиях. (Задачу можно решить в квазиклассическом подходе тогда и только тогда, когда такое пересечение существует).

(v) Построить аналитическое продолжение решения с антистоксовой линии, идущей в  $-\infty$ , на вещественную ось  $\psi(z) \rightarrow \psi(x)$ .

Далее мы шаг за шагом будем реализовывать намеченную программу, объясняя все нюансы.

**3.3. Квазиклассическое решение.** Введем экспоненциальную замену  $\psi \rightarrow e^{iS/\hbar}$  для волновой функции и используем стандартный квазиклассический аппарат, адаптированный к стационарному уравнению Дирака:

$$\psi = \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \end{pmatrix}, \quad \psi_{1,2} = \exp \left( \frac{iS_0}{\hbar} + iS_{1,2} + \dots \right). \quad (9)$$

В нулевом порядке по  $\hbar$  (или отбрасывая все члены с производными от  $\varphi$  в уравнении (6)) получаем следующее выражение для  $S_0$  (см. дополнительные материалы, раздел А):

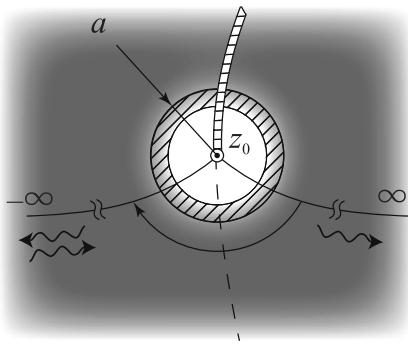


Рис. 2. К методу П-Х. Окрестность точки поворота  $z_0$  со стандартным разрезом, идущим вверх. Серая область обозначает область применимости квазиклассического приближения (достигающую бесконечности в комплексной плоскости). Меньший круг радиуса  $a$  обозначает область применимости точного решения вблизи точки поворота. Две сплошные кривые, исходящие из точки поворота до  $\pm\infty$ , являются антистоксовыми линиями. Пунктирная линия – линия Стокса. Заштрихованная область – это область существования квазиклассического и точного решения, в которых их можно сплить

$$S_0(x) = \int^x q_{\pm}(x') dx', \quad (10)$$

$$q_{\pm} = \frac{-\mu\varphi \pm p}{\varphi^2 + 1}, \quad p = \sqrt{\varepsilon^2(\varphi^2 + 1) - \mu^2}, \quad (11)$$

где  $q_{\pm}$  интерпретируется как квазиклассический импульс. Регулярная ветвь  $p$  выбирается таким образом, чтобы  $p \xrightarrow{x \rightarrow +\infty} \sqrt{\varepsilon^2 - \mu^2}$ . Затем, сохранив уже члены порядка  $\hbar$  ( $S_{1,2}$  в замене (9)) и подставив ее в (6), мы получим предэкспоненциальные квазиклассические члены для волновой функции  $\psi$ :

$$\begin{aligned} \psi_{1,\pm}(x) &= \xi_{1,\pm}(x) e^{\frac{i}{\hbar} \int q_{\pm} dx} \quad \xi_{1,\pm} = \sqrt{\pm q_{\pm} \left[ 1 \pm \frac{\varphi \varepsilon}{p} \right]} \\ \psi_{2,\pm}(x) &= -i \psi_{1,\pm} \frac{\varepsilon \varphi \mp p}{\varepsilon + \mu}. \end{aligned} \quad (12)$$

Опять же, внешние квадратные корни, входящие в определение  $\xi_{1,\pm}$ , считаются положительными при  $x \rightarrow +\infty$ . Чтобы выяснить, какое из решений соответствует правым (левым) движущимся носителям, нам понадобится квазиклассические токи:

$$j_{\pm} \equiv \psi_{\pm}^{\dagger} \sigma_y \psi_{\pm} = \frac{2q_{\pm}}{p} (\varepsilon - \mu). \quad (13)$$

При  $x \rightarrow \pm\infty$  профильная функция  $\varphi(x) \rightarrow 0$ . Поэтому

$$j_{\pm} \underset{x \rightarrow \infty}{=} \pm 2(\varepsilon - \mu). \quad (14)$$

*3.4. Исследование точек поворота.* Теперь нам нужно найти те точки, в которых квазиклассичность решения нарушается. Обычно это точки ветвления квазиклассического момента  $q_{\pm}$  (11). Эти точки на самом деле являются возможными особыми точками исходного дифференциального уравнения [22].

*Точки ветвления р.* Они одновременно являются и точками ветвления  $q_{\pm}$ :

$$\varphi(z_{\pm}) \equiv \varphi_{\pm} = \pm i \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{\varepsilon^2}} \quad (15)$$

$$\varphi(z) = \varphi_{\pm} + (z - z_{\pm})/a + \dots \quad (16)$$

и квазиклассические испульсы, соответствующие различным линейным независимым решениям, совпадают. Мы предполагаем, что точки ветвления имеют простейшую структуру, т.е. являются корнями первого порядка  $p^2(z)$ . Соответствующая точка ветвления всегда находится вне действительной оси ввиду условия  $\varepsilon > \mu$  (см. выражение (8)).

Разлагая потенциал  $\varphi(z)$  в окрестности точек  $z_{\pm}$ , (уравнение (16)), мы сразу приходим к квазиклассическому условию (8) (после простой, но громоздкой алгебры, см. раздел А.2 в дополнительных материалах) в виде  $\varepsilon \hbar^2 v_F^2 / [(\varepsilon^2 - \mu^2)^{3/2} |a| |z - z_{\pm}|] \ll 1$ , которое нарушается в точках  $z \rightarrow z_{\pm}$ . Поэтому точки  $z_{\pm}$  должны быть включены в реализацию метода П-Х.

Здесь мы замечаем, что параметр  $a$  в разложении (16) в принципе является комплексным. Однако его модуль  $|a|$  соответствует характерному масштабу потенциала  $\varphi(x)$ .

*Нули*  $q_{\pm}$ . Эти точки, если они существуют, являются наиболее естественными кандидатами, в окрестности которых квазиклассический подход не работает. Очевидно, им соответствуют сингулярности профильной функции  $\varphi(z)$ . Мы предполагаем самый простой, но наиболее распространенный тип особенности – простой полюс:

$$\varphi(z) = \frac{ia}{z - z_p} + \dots \quad (17)$$

Здесь, как и раньше,  $|a|$  соответствует характерной длине потенциала. Минимальная единица  $i$  введена для удобства. Точно так же, как было получено условие для точки ветвления  $p$ , мы получаем и квазиклассическое условие в окрестности точки поворота  $z_p$ ,  $q_{\pm}(z_p) = 0$ :  $\hbar v_F a \operatorname{ve}/[(\varepsilon^2 - \mu^2)|z - z_p|^2] \ll 1$ . Как и ожидалось, это условие также нарушается при  $z \rightarrow z_0$ . Поэтому  $z_p$  также следует включить в процедуру П-Х.

*Об аналитической структуре*  $\varphi(z)$ . Здесь следует вспомнить следующий факт из комплексного

анализа. Если профиль деформации  $\varphi(z)$  не является постоянной функцией, то функция обязана иметь особенности в расширенной комплексной плоскости. Поэтому функция  $\varphi(z)$  распадается на два общих класса: функция, имеющая особенности в конечных точках комплексной плоскости (типичным примером могут служить лоренцевы потенциалы), и функция, не имеющая особенностей в конечных точках комплексной плоскости (например, потенциалы гауссова типа). В последнем случае уместно следующее замечание. Поскольку  $\varphi(x) \rightarrow 0$ ,  $x \rightarrow \pm\infty$ , последний класс соответствует ситуации, когда  $\varphi(z)$  имеет существенную особенность в точке  $z \rightarrow \infty$ . Типичным примером может быть  $\varphi(z) = P_n(z/a)e^{-z^2/a^2}$ , где  $P_n(z/a)$  – многочлен порядка из  $n$ . Наш анализ задачи, таким образом, разделен на два случая:

(i) Случай потенциала, регулярного в любой конечной точке.

(ii) Случай потенциала, имеющего особенности в конечных точках, когда тип особенностей ограничен простыми полюсами.

**3.5. Регулярный потенциал.** Этот случай соответствует классической трактовке П-Х, адаптированной к более сложному уравнению Дирака.

**Преобразование уравнения Шредингера.** Чтобы проследить аналогию между уравнением Дирака (уравнение (6)) и уравнением Шредингера, мы избавимся от первой производной в (6) с помощью стандартной замены [22]. Уравнение преобразуется следующим образом:

$$\begin{aligned} \psi''(x) + \eta(x)\psi'(x) + \kappa(x)\psi(x) &= 0 \Rightarrow \\ \theta''(x) + \pi^2(x)\theta(x) &= 0 \quad (\text{Schrödinger equation}) \end{aligned} \quad (18)$$

$$\theta(x) = e^{\frac{1}{2} \int^x \eta(t)dt} \psi(x), \quad (19)$$

$$\pi^2(x) = \kappa(x) - \frac{1}{2}\eta'(x) - \frac{1}{4}\eta^2(x). \quad (20)$$

Выражение для  $\pi^2(x)$  довольно громоздкое. Однако поучительно записать  $\eta(x)$  и  $\pi^2(x)$ , отбрасывая все производные потенциального поля  $\varphi(x)$  (нулевое квазиклассическое приближение), а также квазиклассическое решение. Таким образом, связь с исходными квазиклассическими отношениями (10), (11) становится прозрачной:

$$\eta(x) = \frac{2i}{\hbar} \frac{\mu\varphi(x)}{\varphi^2(x) + 1}, \quad \pi^2(x) = \frac{\varepsilon^2(\varphi^2 + 1) - \mu^2}{(\varphi^2 + 1)^2} \quad (21)$$

$$\theta_{\pm}(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi(x)}} \exp\left(\pm i \int_{x_0}^x \pi(t)dt\right). \quad (22)$$

В последнем уравнении точку  $x_0$  нужно выбрать на действительной оси. Таким образом, обе функции  $\theta_{\pm}$  имеют одинаковый модуль. В остальном  $x_0$

совершенно произволен и выбирается из соображений удобства. Читатель, желающий отследить детали, может обратиться к разделу А.3 дополнительных материалов, где мы показываем, как (21)–(22) точно воспроизводят полные квазиклассические выражения (10)–(12), следующие из уравнения Дирака.

**Точное решение вблизи точки поворота  $p$ .** Изложение теперь повторяет замечательную работу [15]. Тем не менее мы хотели бы представить здесь некоторые подробности, чтобы читатель понял внутреннюю механику метода и мог следить за следующими разделами, которые более сложны.

Настало время реализовать шаг (ii) метода П-Х. Для определенности (и для того, чтобы сделать обозначения более краткими) нам нужно сделать выбор, в пользу точки, дающей доминирующий вклад в коэффициент отражения. Как обычно (и это будет видно ниже), это точка, расположенная ближе всего к действительной оси. Предположим, что это точка  $z_+$ . В ситуации с модельными потенциалами несколько точек ветвления могут быть равноудалены от вещественной оси (например,  $\varphi(z) = [\cosh(z/a)]^{-1}$ ). В этой ситуации все точки вносят одинаковый вклад в амплитуду отражения. Хотя эти случаи привлекательны с эстетической точки зрения и приводят к красивым ответам, содержащим квантовые осцилляции, они нереалистичны и не будут здесь обсуждаться.

С помощью (16) раскладываем квазиклассический импульс вблизи точки ветвления:

$$\pi^2(\zeta) = \frac{1}{\hbar^2} \frac{2i\zeta}{a} \frac{\epsilon^5 \sqrt{\varepsilon^2 - \mu^2}}{\mu^4} + \dots, \quad \zeta = z - z_+, \quad (23)$$

так что уравнение (18) сокращается вблизи точки ветвления  $z_+$  к классическому уравнению Эйри:

$$\theta''(s) + s\theta(s) = 0, \quad s = \gamma^{1/3}\zeta, \quad \gamma = \frac{2i\varepsilon^5}{a\hbar^2\mu^4} \sqrt{\varepsilon^2 - \mu^2}. \quad (24)$$

Подробности и некоторые тонкости вывода (24) см. в разделе А.4 дополнительных материалов. Асимптотика функции Эйри при больших значениях аргумента хорошо известна и должна быть сопоставлена с квазиклассическим разложением. Соответствующий анализ представлен в разделе В дополнительных материалов. Квазиклассические волновые функции (22) в окрестности  $z_{\pm}$  на антистоксовой линии  $n = 0$  (идущей вправо и соответствующей уходящей волне) принимают следующий вид:

$$\theta_{\pm}^{\text{app}}(s) = \frac{1}{s^{1/4}\gamma^{1/6}} \exp\left(\pm \frac{2i}{3}s^{3/2}\right), \quad s \gg 1. \quad (25)$$

Точное решение уравнения Эйри (24), имеющего асимптотику (25), имеет следующее интегральное представление:

$$\theta(s) = \frac{e^{-i\pi/4}}{\sqrt{\pi}\gamma^{1/6}} \int_C e^{st+t^3/3} dt, \quad (26)$$

где контур  $C$  представлен на рис. 3а. Чтобы сделать наше изложение самодостаточным, мы выводим интегральное представление (26) в разделе В дополнительных материалов. Контур расположен таким образом, что в асимптотику вносит вклад только седло  $t_1 = i\sqrt{s}$ . Константа перед интегралом (26) выбрана

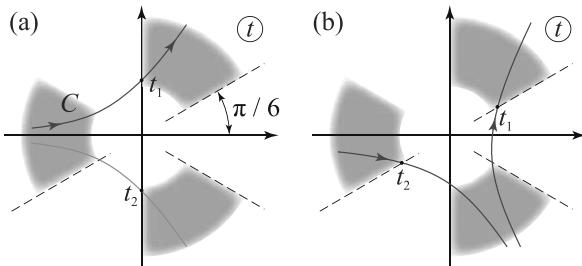


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Размещение контура  $C$ , определяющего решение уравнения 26 для  $\arg s = 0$ . Асимптотические серые области – это области, в которых контур должен начинаться и оканчиваться (для сходимости интеграла).  $t_1, t_2$  – седла подынтегральной функции. Контур проведен вдоль глобальной точной кривой наискорейшего спуска, проходящей через седло  $t_1$ , оранжевая линия – второй путь наискорейшего спуска, проходящий через седло  $t_2$ . (б) – Траектории наискорейшего спуска и седла для  $\arg s = -2\pi/3$  (левая антистоксовая линия на рис. S1)

таким образом, чтобы асимптотика (26) при  $s \rightarrow \infty$  в точности совпадала с квазиклассическим выражением (25) для  $\theta_+^{\text{app}}(s)$ . При переходе от правой антистоксовой линии к другой (идущей влево под углом  $-2\pi/3$ ) асимптотика решения (26) преобразуется как:

$$\theta_<(s) = \frac{1}{\gamma^{1/6}} \left( \frac{\exp\left[\frac{2i}{3}s^{3/2}\right]}{s^{1/4}} - i \frac{\exp\left[-\frac{2i}{3}s^{3/2}\right]}{s^{1/4}} \right) \quad (27)$$

из-за того, что контур интегрирования деформирован согласно рис. 3б и оба седла подынтегрального выражения в (26) дают вклад в интеграл.

*Сшивка точного и квазиклассического решения.* Нам нужно убедиться, что область применимости квазиклассического разложения и точного решения имеют ненулевое пересечение. Справедливость квазиклассического разложения (25) равна  $s \gg 1 \Rightarrow$

$$|z - z_+| \gg (a\hbar^2/\varepsilon^2)^{1/3}. \quad (28)$$

С другой стороны, условие справедливости тейлоровского разложения потенциала:  $|z - z_+| \ll a$ . Условием существования двух последних условий является малость параметра  $\varepsilon a/\hbar$ , который и является главным параметром квазиклассического разложения задачи (уравнение (8)).

Мы видим, что решение слева от барьера расщепляется на две волны и идеально совпадает с квазиклассическими выражениями (25) в той же области. Таким образом, мы заменяем обе волны в (27) полуклассическими волнами (22):

$$\theta_<(z) = \theta_+(z)\Big|_{z_+} - i\theta_-(z)\Big|_{z_+}. \quad (29)$$

В последнем уравнении мы вернулись от  $s$  обратно к  $z$ . Предполагается, что в интегrale, определяющем показатель степени в функциях  $\theta_\pm$  в (22), мы изменили нижний предел интегрирования с  $x_0$  на  $z_+$ .

Наконец, сделаем аналитическое продолжение волновой функции (29) на вещественной оси  $z \rightarrow x$ . Структура уравнения становится особенно прозрачной с помощью соотношения:

$$\theta_\pm(x)\Big|_{z_+} = e^{\pm i \int_{z_+}^{x_0} \pi(z) dz} \theta_\pm(x), \quad (30)$$

где углы  $\theta_\pm$  определены в уравнении (22). Таким образом, мы получаем коэффициент отражения:

$$R = e^{-\frac{4}{\hbar v_F} \operatorname{Im} \int_{x_0}^{z_+} \frac{\sqrt{\varepsilon^2(\varphi^2+1)-\mu^2}}{\varphi^2+1} dz}, \quad (31)$$

где для наглядности мы восстановили скорость Ферми  $v_F$ . Коэффициент отражения (31) – первый основной результат нашей статьи. Он имеет типичный квазиклассический вид. Показатель экспоненциальной функции можно оценить как  $\#\varepsilon a/\hbar \gg 1$ , что делает коэффициент отражения экспоненциально малым.

Несмотря на свою простоту, результат (31) имеет некоторую особенность. А именно, далеко не очевидно, как осуществить переход от произвольного  $\mu < \varepsilon$  к  $\mu \rightarrow 0$  (исчезающему внешнему магнитному полю) в формуле (31). Дело в том, что при обращении в нуль  $\mu$  TR-симметрия задачи восстанавливается, и коэффициент отражения должен обращаться точно в нуль. Модификация результата (31), отражающая эту фундаментальную симметрию рассматриваемой задачи, является собой наиболее нетривиальную часть нашего анализа. Она приводится в разделе после изучения борновского приближения.

### 3.6. Потенциал с полюсом.

*Точное решение в окрестности точки поворота.* Квазиклассическая картина антистоксовых ли-

ний представлена в разделе С.2 дополнительных материалов. Подробности аналитического продолжения квазиклассических волновых функций (12) в окрестности простого полюса  $z_p$  вдоль антистоксовых линий (см. уравнение (S.40)) приведены в разделе D дополнительных материалов. Получаем следующую асимптотику:

$$\begin{aligned}\psi_{1+,\gtrless}(\zeta) &= \frac{\varepsilon + \mu}{\varepsilon} \sqrt{\frac{\varepsilon - \mu}{2}} \left(\frac{\zeta}{a}\right)^{\frac{3}{2}} e^{-\frac{\varepsilon + \mu}{2a}\zeta^2 + \frac{3\pi i}{4}} \\ \psi_{1-,\gtrless}(\zeta) &= \sqrt{2(\varepsilon - \mu)} \left(\frac{\zeta}{a}\right)^{\frac{1}{2}} e^{\frac{\varepsilon - \mu}{2a}\zeta^2 + \frac{i\pi}{4}},\end{aligned}\quad (32)$$

где, как и ранее, символ  $>$  ( $<$ ) соответствует квазиклассическому решению на правой (левой) антистоксовой линии в окрестности точки поворота  $z_p$ . Соотношения (32) записаны в квазиклассическом пределе  $\zeta \gg \sqrt{|a|/\varepsilon}$ .

Теперь нам нужно получить точное решение уравнения Дирака (6) в окрестности точки поворота  $z_p$ . Однако разложение уравнения (4) в окрестности  $z_p$  довольно громоздко, и мы отсылаем читателя к разделу С.1 дополнительных материалов. К счастью, грамотная замена  $\psi_1(\zeta) = \exp(\zeta^2/2a[\varepsilon - \mu])\sqrt{\varepsilon}\psi(\zeta)$  приводит к исчезновению (!) слагаемого без производной в (4), что приводит к гораздо более простому дифференциальному уравнению:

$$a\psi''[2\zeta^2(\mu + \varepsilon) - a] + \psi'[4\zeta^3\varepsilon(\mu + \varepsilon) - 2a\zeta(2\mu + 3\varepsilon)] = 0, \quad (33)$$

тривиально интегрируему в квадратурах:

$$\begin{aligned}\psi_1(\zeta) &= \sqrt{\frac{\zeta}{a}} \left(c_1 - c_2 \frac{\sqrt{\pi}\mu}{2\varepsilon^{3/2}\sqrt{a}} \operatorname{erf}\left[\sqrt{\varepsilon a}\frac{\zeta}{a}\right]\right) e^{\frac{\varepsilon - \mu}{2a}\zeta^2} \\ &\quad + c_2 \frac{\varepsilon + \mu}{\varepsilon} \left(\frac{\zeta}{a}\right)^{3/2} e^{-\frac{\varepsilon + \mu}{2a}\zeta^2},\end{aligned}\quad (34)$$

где  $\operatorname{erf}$  – функция ошибок,  $\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt$ . Теперь у нас есть все необходимое для сопоставления точного решения (34) с квазиклассическими волновыми функциями (32).

*Сшивка квазиклассического и точного решений.* Для получения коэффициента отражения потребуем, чтобы на правой антистоксовой линии присутствовала только прошедшая квазиклассическая волна, т.е. асимптотика решения (34) совпадала с функцией  $\psi_{1+,>}$  в (32). Это немедленно дает условие (асимптотику функции  $\operatorname{erf}$  см. в разделе С.3) дополнительных материалов):

$$c_1 = \frac{\sqrt{\pi}\mu}{2\varepsilon^{3/2}\sqrt{a}} c_2, \quad c_2 = \sqrt{\frac{\varepsilon - \mu}{2}} e^{3\pi i/4}. \quad (35)$$

Выражение для  $c_2$  следует из требования точного совпадения с  $\psi_{1+,>}$  в (32). Таким образом, мы имеем решение на левой антистоксовой линии:

$$\psi_1(\zeta) \Big|_{\text{left}} = \psi_{1+,<}(\zeta) + \frac{i\sqrt{\pi}\mu}{2\varepsilon^{3/2}\sqrt{a}} \psi_{1-,<}(\zeta). \quad (36)$$

Заменяя квазиклассические выражения  $\psi_{1\pm,<}$  на общие выражения (12), мы можем осуществить аналитическое продолжение с антистоксовой линии к вещественной оси  $x$ . Заметив, что  $\xi_{1,+} = \xi_{1,-}$  при  $x \rightarrow -\infty$  в (12), мы получаем (в полной аналогии с предыдущим выводом) коэффициент отражения

$$R = \frac{\pi\hbar v_F}{|a|} \frac{\mu^2}{4\varepsilon^3} e^{-\frac{4}{\hbar v_F} \operatorname{Im} \int_{x_0}^{z_p} \frac{\sqrt{\varepsilon^2 - \mu^2 + \varepsilon^2\varphi^2(z)}}{1 + \varphi^2(z)} dz}, \quad (37)$$

где  $x_0$ , как и раньше, – произвольная точка вещественной оси. Здесь мы восстановили  $\hbar$  и скорость Ферми. Результат (37) дополняет результат (31), полученный для регулярной функции деформации  $\varphi(z)$ . Мы видим, что эти два соотношения имеют одну и ту же квазиклассическую экспоненту, как и следовало ожидать от квазиклассического анализа. Разница между разными классами потенциалов выражена в предэкспоненциальном множителе. И здесь проявляется первая интересная особенность задачи.

Сравнивая коэффициенты отражения (31) и (37), мы видим, что в отличие от первого, второй явно соблюдает TR-симметрию ТИ. А именно, коэффициент отражения обращается в нуль в случае исчезновения магнитного поля  $\mu \rightarrow 0$ , когда восстанавливается TR-симметрия квазичастичных возбуждений ТИ.

**4. Борновское приближение.** Целью данной части статьи является разрешение парадокса, описанного в предыдущем разделе. А именно, речь идет о неисчезающем при нулевом значении магнитного поля коэффициенте отражения. Для начала попробуем проанализировать задачу рассеяния в пределе слабого магнитного поля  $\mu \ll \varepsilon$ , ограничившись первым борновским приближением по силе поля.

TR-симметрия задачи дает нам приятный сюрприз. Удивительно, но нам удалось найти точное решение уравнения Дирака (4) в отсутствие магнитного поля  $\mu = 0$  при любом потенциале деформации. Естественно, в силу TR-симметрии точное решение является безотражательным. Теперь мы увидим, как даже малейшее магнитное поле влияет на аналитическую структуру решения и приводит к ненулевому отражению в задаче.

*Точное решение.* Перепишем исходный гамильтониан в отсутствие магнитного поля:

$$H = v_F \sigma_y \hat{p} + \frac{\sigma_z}{2} (\varphi \hat{p} + \hat{p} \varphi). \quad (38)$$

Оказывается, можно придумать унитарное преобразование

$$\psi(x) = \exp[i\theta(x)\sigma_x]\tilde{\psi}(x), \quad \tan 2\theta(x) = \varphi^{-1}(x), \quad (39)$$

переводящее гамильтониан (38) в гораздо более простую форму (см. раздел E.1 дополнительных материалов):

$$\tilde{H} = \frac{1}{2}(v\hat{p} + \hat{p}v)\sigma_z, \quad (40)$$

где  $v(x) = v_F\sqrt{\varphi^2(x) + 1}$ . Гамильтониан (40) имеет следующие точные собственные функции (см. вывод в E.2 дополнительных материалов):

$$\begin{aligned} \underset{\rightarrow}{\psi}_\varepsilon(x) &= \frac{e^{i\varepsilon\tau(x)}}{\sqrt{v(x)}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, & \underset{\leftarrow}{\psi}_\varepsilon(x) &= \frac{e^{-i\varepsilon\tau(x)}}{\sqrt{v(x)}} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (41)$$

$$\tau(x) = \int_0^x \frac{dx'}{v(x')} \equiv \int_0^x \frac{dx'}{\sqrt{\varphi^2(x') + 1}}. \quad (42)$$

И ясно видно, что точное решение, отвечающее движущейся направо волне (41), остается таковым на всей вещественной оси, и мы имеем безотражательную ситуацию, ожидаемую из TR-симметрии системы.

**Теория возмущений по  $\mu$ .** Для построения теории возмущений нам понадобится функция Грина для преобразованного гамильтониана (40) (см. раздел E.3 дополнительных материалов):

$$G(\epsilon; x, x') = -\frac{i}{2}(1 + \text{sign}[\tau(x) - \tau(x')]\sigma_z) \frac{e^{i\epsilon|\tau(x) - \tau(x')|}}{\sqrt{v(x)v(x')}}, \quad (43)$$

где  $\text{sign}(x)$  – функция знака. Затем мы рассматриваем возмущение, создаваемое магнитным полем; в исходном базисе это  $V = \mu\sigma_z$ . При унитарном преобразовании  $\hat{U}$  получаем:

$$\tilde{V}(x) = \frac{\mu}{\varphi^2(x) + 1} [\varphi(x)\sigma_z - \sigma_y]. \quad (44)$$

Тогда отраженная волна определяется теорией возмущений следующим образом:

$$\psi_{\text{ref}}(x) = - \int_{-\infty}^{\infty} G(\epsilon; x, x') \tilde{V}(x') \underset{\rightarrow}{\psi}_\varepsilon(x') dx'. \quad (45)$$

Подставляя преобразованный потенциал рассеяния (44) и функцию Грина (43) в (45), мы получаем (после некоторой простой алгебры) отраженную волну в первом порядке теории возмущений:

$$\underset{\leftarrow}{\psi}_{\text{ref}} = r \underset{\leftarrow}{\psi}_\varepsilon(x), \quad r = \mu \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{2i\varepsilon\tau(x')}}{1 + \varphi^2(x')} dx', \quad (46)$$

где  $r$  – итоговая амплитуда отражения в борновском приближении. Внимательный читатель сразу заметит, что интеграл, определяющий  $r$ , расходится. Как показано в разделе E.2 дополнительных материалов, этот интеграл следует понимать как взятый по наклонным направлениям  $-\infty \rightarrow \infty e^{i\pi-\delta}$  и  $\infty \rightarrow \infty e^{i\delta}$ , где  $\delta$  – сколь угодно малый положительный угол.

**5. Сопоставление борновского и квазиклассического приближений.** Раздел 4 был посвящен выводу амплитуды отражения в первом борновском приближении. Однако выражение для амплитуды борновского отражения (46) должно оставаться справедливым даже в квазиклассическом пределе, если выполняется квазиклассическое условие плавности (8).

Как легко видеть, условие (8) подразумевает расчет борновской амплитуды (46) методом наискорейшего спуска. Поэтому мы ожидаем, что отражение, даваемое интегрированием методом наискорейшего спуска борновского выражения, и квазиклассические ответы должны совпадать. Следуя общей структуре нашего квазиклассического изложения, нам необходимо рассмотреть два существенно различных случая: случай потенциала регулярного профиля  $\varphi(z)$  (раздел 3.5) и потенциала с полюсом (раздел 3.6).

### 5.1. Регулярный потенциал.

**Квазиклассический предел борновского приближения.** Как и в разделе 3.5, функция  $\varphi(z)$  считается целой функцией в комплексной плоскости. Следовательно, функция  $\tau(z)$  (уравнение (42)) не имеет особенностей, кроме точек ветвления типа квадратного корня, где функция  $\varphi^2 + 1$  имеет корни (которые предполагаются первого порядка в общей ситуации).

Метод наискорейшего спуска предполагает деформацию контура в интеграле (46) вдоль путей наискорейшего спуска вещественной части показательной функции:  $\text{Re } i\tau(z)$ . Поэтому нам необходимо знать расположение стационарных кривых функции  $\tau(z)$ , т.е. линий уровня  $\text{Re}[\tau(z)]$ . Подробный анализ немного кропотлив, но открывает удивительную картину (раздел F.1 дополнительных материалов). Оказывается, полученный контур наискорейшего спуска дважды (!) обходит каждую из точек ветвления  $\tau(z)$  по бесконечно малым окружностям. Контур наискорейшего спуска в итоге располагается на бесконечном количестве римановых листов  $\tau(z)$ . В результате главный вклад в интеграл дает сумма вычетов подынтегрального выражения в (46), умноженная на  $4\pi i$  (двойной обход).

$$\begin{aligned} r &\xrightarrow[\varepsilon a \rightarrow \infty]{} 4\pi i \mu \sum_{\text{all branch points}} \underset{z_n}{\text{res}} \frac{e^{2i\varepsilon\tau(z)}}{\varphi^2(z) + 1} \\ &\approx 2\pi a \mu e^{2i\varepsilon\tau(z_0)}, \end{aligned} \quad (47)$$

где  $a$  – есть ни что иное, как характерная длина потенциала, и определяется из разложения Тейлора

$$\varphi(z) = i + (z - z_0)/a. \quad (48)$$

Все подробности размещения контура приведены в разделе F.2 дополнительных материалов. В результате коэффициент отражения в борновском приближении в квазиклассическом пределе имеет следующий простой вид:

$$R \equiv |r|^2 = \frac{4\pi^2 \mu^2 |a|^2}{v_F^2 \hbar^2} e^{-\frac{4\pi}{\hbar v_F} \operatorname{Im} \int_0^{z_0} \frac{dz}{\sqrt{\varphi^2(z)+1}}}. \quad (49)$$

*Борновское приближение из квазиклассического анализа.* Сравнивая формулу для коэффициента отражения, представленную анализом П-Х (31), и ответ (49), заданный квазиклассическим пределом теории возмущений, сразу видим, что квазиклассический результат (31) не может соответствовать пертурбативному выражению (49). Это хорошо видно уже из того факта, что, в отличие от (49), выражение (31) имеет ненулевой предел в точке  $\mu \rightarrow 0$ .

Проблема в том, что квазиклассический анализ, предпринятый в разделе 3.5, перестает работать, когда  $\mu \rightarrow 0$ . Дело в том, что при  $\mu \ll \varepsilon$  полюс квазиклассического импульса (11) при  $\varphi = \pm i$  приближается к точкам ветвления  $p$ :  $\varphi_{\pm}$  (см. уравнение (15)).

Это означает, что точное решение вблизи точки поворота (26) не может быть продолжено в асимптотическую область (28), поскольку разложение Тейлора функции  $\varphi(z)$  вблизи точки поворота перестает быть справедливым из-за наличия полюса  $z_0 : \varphi = i$ . Необходимую оценку легко сделать. При  $\mu \ll \varepsilon$  расстояние  $z_0 - z_{\pm} \ll a$ , а  $|z_0 - z_{\pm}| \sim \mu^2/\varepsilon^2 a$ . Таким образом, асимптотическое разложение (26) становится недействительным, если расстояние  $s \sim 1$  в (26) (эквивалентно,  $|z - z_{\pm}| \sim a^{1/3}/\varepsilon e^{-2/3}$ ) становится одного порядка с  $|z_0 - z_{\pm}|$ . Это влечет за собой:

$$\frac{\mu}{\varepsilon} \sim \frac{1}{(a\varepsilon)^{1/3}}. \quad (50)$$

Следовательно, при  $\mu \lesssim \varepsilon^{2/3}/a^{1/3}$  обычный метод П-Х не работает. Возможная модификация метода на случай сливающихся точки ветвления и полюса, также изложена (для уравнения Шредингера) в [15]. Впервые, мы обращаем внимание читателя на структуру пертурбативного результата (49). Она показывает, что основной вклад в амплитуду рассеяния дает квазиклассическое действие  $S = \int_{x_0}^{z_0} \pi(x) dx$  (см. выражение для  $\pi$  в уравнении (8) при  $\mu = 0$ ), указывая на то, что надбарьерное рассеяние происходит в точке ветвления  $\varphi = i$  (т.е.  $z_0$ ). На самом деле, как мы

увидим, линии анти-Стокса по-прежнему выходят из точек ветвления  $z_{\pm}$ , но сильно искажаются наличием полюса  $z_0$ .

*Антистоксовые линии в точке ветвления  $p$  в пределе  $\mu \ll \varepsilon$ .* Реализуем шаг (ii) метода П-Х. Как и прежде, выбираем точку  $z_+$ . Однако на этот раз следует использовать разложение Лорана квазиклассического импульса (21) вблизи полюса  $z_0$ , а не разложение Тейлора вблизи точки ветвления  $z_+$ . Подставив расширение (48), получим:

$$\pi(\zeta) = \frac{a\varepsilon}{2i\zeta} \sqrt{\frac{2i\zeta}{a} - \frac{\mu^2}{\varepsilon^2}} + \dots \rightarrow e^{-i\pi/4}\varepsilon \sqrt{\frac{a}{2\zeta}}. \quad (51)$$

Последний переход в (51) осуществляется в предположении  $|\zeta/a| \gg (\mu^2/\varepsilon^2)$ . Тогда квазиклассическое действие и квазиклассическое условие будут выглядеть так:

$$\int_0^{\zeta} \pi(t) dt = e^{-i\pi/4}\varepsilon \sqrt{2a\zeta}, \quad |\zeta| \gg \frac{1}{|a|\varepsilon^2}, \quad (52)$$

и условие для направлений антистоксовых линий теперь выглядит так:

$$\operatorname{Re} i \int_0^{\zeta} \pi(t) dt = 0 \Rightarrow \arg(a\zeta) = \frac{\pi}{2} + 2\pi n, \quad n \in \mathbb{Z}. \quad (53)$$

Уравнение (53) вместе с (S.17) дает весьма своеобразную картину антистоксовых кривых. В непосредственной близости от точки ветвления  $z_+$  (где справедливо разложение Тейлора квазиклассического импульса (23)) антистоксовые линии образуют триплет линий, исходящих под углами  $2\pi/3$  по отношению к друг другу. С другой стороны, уравнение (53) говорит нам, что они сливаются в дублет, проходя по берегам разреза, определяющего однозначную ветвь функции  $\pi(\zeta)$ . Наконец, мы ожидаем, что антистоксовые линии образуют дублет, состоящий из двух горизонтальных линий, когда они достаточно далеки от  $z_0$ ,  $z_{\pm}$ . Эти общие соображения проиллюстрированы на рис. 4а для случая, когда параметр разложения  $a$  в (16) и в (48) положен для определенности действительным.

В дальнейшем и в самом деле удобно считать, что параметр  $a$  в разложении (48) вещественный. Для общей ситуации ненулевого  $\arg a$  единственной разницей будет наклон всех графиков на необходимый угол.

Описанная общая картина формы антистоксовых кривых выглядит довольно необычно (и в какой-то

степени в нее даже трудно поверить). Для иллюстрации ее правильности, мы приведем рисунок точных антистоксовых линий (в виде линии уровня рельефа  $\text{Re} i \int_{z_+}^z \pi(t) dt$  на рис. 4б, с) для конкретной потенциальной функции  $\varphi(z) = z \exp(-z^2/2)$ .

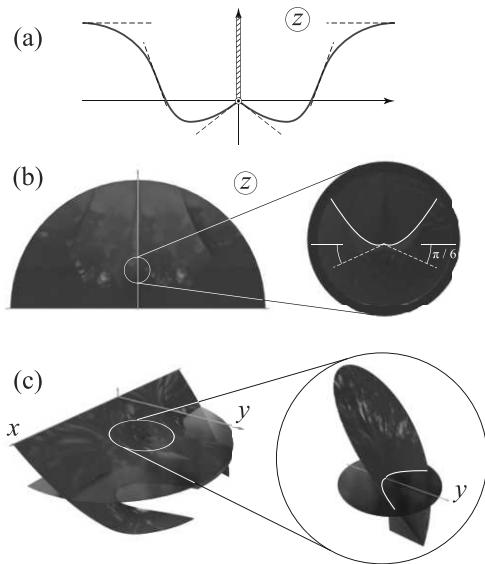


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Структура антистоксовых линий из общих соображений. (б), (с) – Антистоксовые линии изображаются как линии уровня функции  $i\text{Im} \int_0^\zeta \pi(t) dt$  для потенциального профиля  $\varphi(z) = ze^{-z^2/2}$  и для  $\mu/\varepsilon = 0.15$

Квазиклассические решения (12) теперь легко получить, взяв начальную точку  $z = z_0 - ai\mu^2/(2\varepsilon^2)$  (см. раздел G дополнительных материалов).

$$\psi_{+,\gtrless} = \sqrt{\varepsilon} \left( \frac{\mu}{\varepsilon} \right)^{ia\mu} \left( \frac{a}{2y} \right)^{\frac{ia\mu}{2} + \frac{1}{2}} e^{i\varepsilon\sqrt{2ay} \mp i\pi/4 \pm \frac{\pi\mu a}{2}}, \quad (54)$$

$$\psi_{+,<} = \sqrt{\varepsilon} \left( \frac{\mu}{\varepsilon} \right)^{ia\mu} \left( \frac{a}{2y} \right)^{\frac{ia\mu}{2} + \frac{1}{2}} e^{-i\varepsilon\sqrt{2ay} + \frac{3i\pi}{4} - \frac{\pi\mu a}{2}}. \quad (55)$$

Здесь обозначение индекса  $\pm$  соответствует (12).

*Точное решение вблизи точки ветвления  $p$  at  $\mu \ll \varepsilon$ .* Разлагая уравнение Дирака (6) вблизи  $z_0$ , получаем:

$$2i\zeta\psi''_1 + (3i - 2a\mu)\psi'_1 + \varepsilon^2 a\psi_1 = 0. \quad (56)$$

Здесь предполагается, что параметр  $\mu a$  удовлетворяет условию  $0 \leq \mu a \lesssim 1$ . Уравнение (56) представляет собой уравнение типа Бесселя. В принципе, его аналитические свойства и структуру асимптотики мож-

но взять из справочника. Однако для изучения аналитического продолжения решения в нашем случае, чрезвычайно поучительно и удобно представить точное решение уравнения (56) методом Лапласа (см. дополнительные материалы)

$$\psi_1(\zeta) = -i\varepsilon \sqrt{\frac{\varepsilon a}{2\pi}} \left( \frac{\mu}{\varepsilon} \right)^{ia\mu} e^{\frac{\pi a\mu}{2}} \int_C e^{\zeta\zeta s + \frac{\varepsilon a i}{2s}} s^{ia\mu - \frac{1}{2}} ds. \quad (57)$$

Здесь константа перед интегралом выбрана таким образом, чтобы асимптотика  $\psi(iy)$  в (57) на правой антистоксовой линии соответствовала соответствующему квазиклассическому решению (54).

Контур, дающий правильную асимптотику на правой антистоксовой линии  $\zeta = iy$ , представлен на рис. 5а. Размещение контура продиктовано возможностью провести линию наискорейшего спуска показательной функции в (57):

$$f(s, \zeta) = \zeta s + \frac{ai}{2s} \quad (58)$$

через седло  $s_1 = \sqrt{a/2y}$  ( $\zeta = iy$ ) функции  $f(s, \zeta)$ . Таким образом, точное решение (57) дает правильную основную экспоненту (см. квазиклассическое выражение (54)).

После поворота комплексного числа  $\zeta$  справа налево по часовой стрелке, контур  $C$ , задающий точное решение (57), должен повернуть на тот же угол против часовой стрелки, чтобы гарантировать сходимость интеграла (см. рис. 5б). При этом начальное направление контура ( $s = 0$ ) должно быть по-прежнему вниз (опять же, для сходимости интеграла). В результате контур  $C$  закручивается в спираль (см. рис. 5с) после того, как  $\zeta$  достигает левой антистоксовой линии. Чтобы процедура вычисления асимптотики была безупречной, контур интегрирования  $C$  должен быть проведен по глобальным путям наискорейшего спуска  $f(s, \zeta)$ . Соответствующая деформация представлена на рис. 6а, б. Как мы видим, правое седло  $s_1$  дает двойной вклад, а контур интегрирования  $C$  проходит через него на разных римановых листах подынтегрального выражения. Таким образом, вклад этого седла умножается на коэффициент  $1 + e^{2\pi i(ia\mu - 1/2)} \equiv e^{-\pi\mu a} 2 \sinh \pi\mu$ . В результате (простые подробности см. в разделе H дополнительных материалов), асимптотика (57) на левой антистоксовой линии может быть выражена через квазиклассические функции (54), (55) (в той же строке) следующим образом.

$$\psi(iy) \Big|_{\text{left}} = \psi_{+,<}(iy) - 2i \sinh \pi\mu a \psi_{-,<}(iy). \quad (59)$$

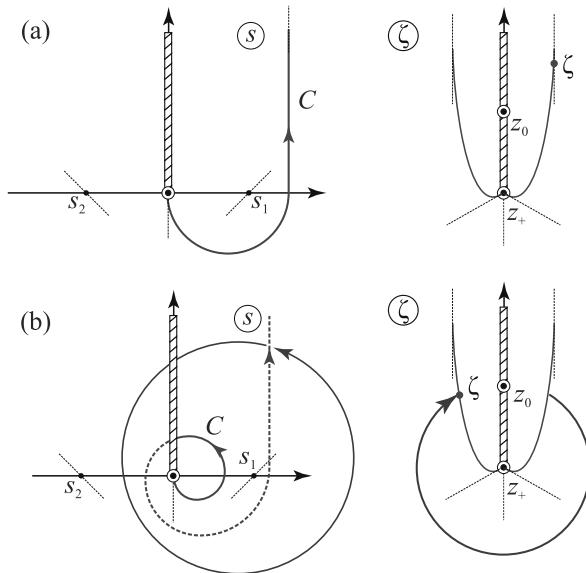


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Справа: антистоковые линии вблизи точки  $z_+$ . Точка  $\zeta$  на правой антистоковой линии такова, что волновая функция в этой точке представляет собой исходящую волну и должна соответствовать (54). Пунктирные линии – примерные направления антистоковых линий. Слева: начальное размещение контура  $C$  для решения (57).  $s_1$  и  $s_2$  – седловые точки функции  $f(s, \zeta)$  в (58). Пунктирные линии – линии наискорейшего спуска  $f(s, \zeta)$ . (б) – Справа: аргумент  $\zeta$  находится на левой антистоковой прямой (поворнут на  $2\pi$ ). Слева: контур  $C$  деформирован в спираль

Уравнение (59) дает возможность сопоставить точное решение (57) в окрестности точки ветвления с квазиклассическими решениями во всей комплексной верхней полуплоскости, включая действительную ось.

*Сшивка точного и квазиклассического решения.* Продолжая шаг (v) метода П-Х, получаем при  $x \rightarrow -\infty$ :

$$\psi(x) = \xi_1 e^{i \int_{z_+}^x q_+ dz} - 2i \sinh \pi \mu a \xi_1 e^{i \int_{z_+}^x q_- dz}. \quad (60)$$

Наконец, восстановив постоянную Планка и скорость Ферми, для коэффициента отражения получим:

$$R = 4 \left| \sinh^2 \frac{\pi \mu a}{\hbar v_F} \right| e^{-\frac{4}{\hbar v_F} \operatorname{Im} f_{z_0}^{z_+} \frac{\sqrt{\varepsilon^2(\varphi^2+1)} - \mu^2}{\varphi^2+1} dz}. \quad (61)$$

Коэффициент отражения (61) представляет собой обобщение результата (31) на случай  $\mu a \sim 1$ . Результат (61) точно сшивается с результатом борновского приближения (49) в пределе  $\mu a \rightarrow 0$ . Уравнение (61) также разрешает парадокс не обращающегося в нуль коэффициента отражения (31) при  $\mu \rightarrow 0$ .

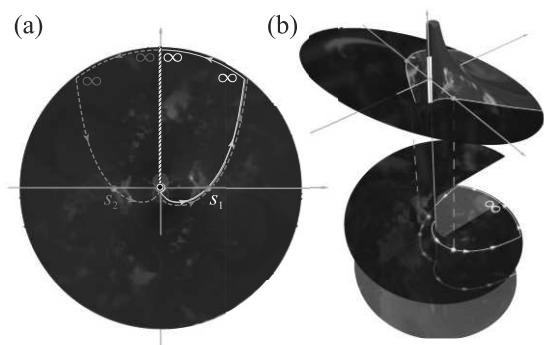


Рис. 6. (Цветной онлайн) (а) – Контур наискорейшего спуска, задающий асимптотику точного решения (57) на левой антистоковой линии. Голубой цвет означает размещение контура на другом римановом листе многозначной функции  $s^{ia\mu-1/2}$  из подынтегрального выражения (57). (б) – Вверх: размещение контура на рельфе функции  $\operatorname{Ref}(s, \zeta)$ . Низ: размещение контура на римановой поверхности функции  $s^{ia\mu-1/2}$ . Красный лист соответствует обычной ветке  $s^{ia\mu-1/2} \equiv \exp((ia\mu - 1/2) \ln |s|)$  для  $s > 0$  в то время как зеленый лист соответствует ветви  $s^{ia\mu-1/2} \equiv \exp([ia\mu - 1/2][\ln |s| + 2\pi i])$  для  $s > 0$

Результат (61) содержит поразительную особенность. Параметр  $a$ , определенный в уравнении (16), входящий в функцию  $\sinh$  в предэкспоненциальном множителе (61), вообще говоря, может быть комплексным. Это означает, что гиперболическая функция может иметь гармонический вклад типа  $\sin: |\sinh \pi \mu a|^2 = \sinh^2[\pi \mu \operatorname{Re} a] \cos^2[\pi \mu \operatorname{Im} a] + + \cosh^2[\pi \mu \operatorname{Re} a] \sin^2[\pi \mu \operatorname{Im} a]$ , а коэффициент отражения (61) может содержать квантовые осцилляции в зависимости от внешнего магнитного поля независимо от энергии падающей частицы. Осцилляции возможны ввиду того, что формула (61) справедлива для  $0 \leq \mu a \lesssim 1$ , как мы указываем после уравнения (56). Тогда мы ожидаем появления выраженных квантовых осцилляций ландауэрсовского кондактанса краевых состояний ввиду независимости предэкспоненциального множителя от энергии квазичастицы.

Для существования упомянутых колебаний профиль деформации должен быть слегка асимметричным (таким образом, мнимая часть параметра  $a$  существенно превышает действительную). Как показывает элементарное изучение функции  $\sinh$ , ее немонотонное поведение проявляется при  $\operatorname{Im} a / \operatorname{Re} a \gtrapprox 2.64$ . Период колебаний определяется условием:  $\Delta \mu \sim \hbar v_F / (\pi |a|)$ . Амплитуда колебаний порядка самого коэффициента отражения  $\Delta R \sim R$ .

Коэффициент отражения (61) для модельного асимметричного потенциала представлен на рис. 7.

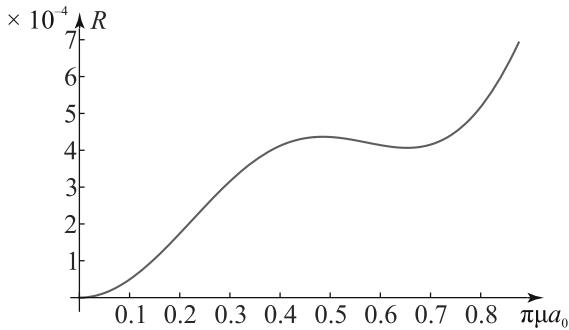


Рис. 7. (Цветной онлайн) Колебания коэффициента отражения (61), рассчитанные для модельного потенциала  $\varphi(z) = (z - 8)e^{-z^2}$  в зависимости от параметра магнитного поля  $\pi\mu a_0$ , где параметр  $a_0 \equiv |a|_{\mu=0}$  (см. (16))

**5.2. Потенциал с полюсом.** Теперь мы реализуем ту же программу для гораздо более простого случая потенциала с полюсом. Амплитуда отражения, полученная в (46), должна быть должна быть сопоставлена с амплитудой, полученной из квазиклассического приближения (37) в пределе  $\varepsilon a / (\hbar v_F) \gg 1$ . Как и раньше, это соответствует взятию интеграла, входящего в (46) методом перевала:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{2i\varepsilon\tau(x')}}{1 + \varphi^2(x')} dx' \approx e^{i\pi/4} \sqrt{\frac{\pi}{\varepsilon a}} \frac{e^{2i\varepsilon\tau(z_p)}}{2\varepsilon}, \quad (62)$$

где  $z_p$ :  $\varphi(z_p) = \infty$  – седловая точка функции  $\tau(z)$  (которая также является точкой поворота для квазиклассического импульса). Таким образом, мы получаем коэффициент отражения:

$$R = \frac{\pi\mu^2}{4|a|\varepsilon^3} e^{-4\varepsilon \operatorname{Im} \int_0^{z_0} \frac{dx}{\sqrt{1+\varphi^2(x)}}}. \quad (63)$$

Этот результат совпадает с квазиклассическим коэффициентом отражения (37) в пределе  $\mu \ll \varepsilon$ . Это совпадение дает дополнительное убедительное доказательство корректности квазиклассического результата (37).

Коэффициенты отражения (31) и (37), полученные в квазиклассическом приближении для двух широких классов деформаций общего типа, дополненные уточненным результатом (61), завершают наше исследование задачи рассеяния. Они являются основными результатами данной работы.

**6. Обсуждение.** Итак, мы аналитически исследовали рассеяние квазичастиц на краевых дефектах двумерного ТИ в однородном магнитном поле. Мы использовали два взаимодополняющих подхода: метод П-Х и теорию возмущений в магнитном поле. Мы получили коэффициенты отражения для двух наи-

более важных классов деформационных потенциалов и убедились, что они совпадают в общей области применимости обоих методов. Исследование выявило нетривиальную взаимосвязь TR-симметрии и аналитических свойств амплитуды отражения.

Наши результаты позволяют провести прямую экспериментальную проверку. Результаты теории возмущений, очевидно, справедливы для достаточно малого внешнего магнитного поля. Квазиклассический параметр  $\lambda/a = \hbar v_F / (\varepsilon a)$  легко оценить из обычных экспериментальных данных. Для двумерного ТИ, полученного в квантовой яме HgTe с затвором, параметр расщепления Рашбы  $\alpha \sim 10 \text{ эВ}\text{\AA}$ , [23], скорость Ферми  $v_F \approx 2 \text{ эВ}\text{\AA}$ , [24]. Мы видим, что параметр Рашбы  $\alpha$  примерно того же порядка, что и скорость Ферми  $\alpha \sim v_F$ . Таким образом, для типичного эксперимента размер краевого дефекта 1 мкм намного превышает длину волны квазичастицы  $\lambda \sim 100 \text{ \AA}$ , [25], что и оправдывает использование квазиклассического приближения. Далее нам хотелось бы оценить магнитное поле, при котором могут наблюдаться квантовые осцилляции, предсказанные выражением для коэффициента отражения (61).  $g$ -фактор для винтовых краевых состояний в попечном магнитном поле был измерен в [26]:  $g \approx 50$ . Следовательно, если снова принять типичный масштаб деформации  $\sim 1 \text{ мкм}$ , необходимое магнитное поле составит  $H \sim v_F \hbar / (g \mu_B) \sim 0.07 \text{ Тл}$ .

Авторы выражают благодарность Федеральной программе академического лидерства “Приоритет 2030”.

**Финансирование работы.** Данная работа финансировалась за счет средств гранта национального исследовательского технологического университета “МИСиС” К2-2022-025, Фонда развития теоретической физики и математики “Базис” по гранту # 22-1-1-24-1, П. Д. Григорьев благодарит за поддержку государственное задание # FFWR-2024-0015.

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

1. I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
2. C. Nayak, S. H. Simon, A. Stern, M. Freedman, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **80**, 1083 (2008).
3. J. Moore, Nature Phys. **5**, 378 (2009).
4. M. König, S. Wiedmann, C. Brüne, A. Roth, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, X.-L. Qi, and S.-C. Zhang, Science **318**, 766 (2007).
5. D. Hsieh, D. Qian, L. Wray, Y. Xia, Y.S. Hor, R. J. Cava, and M.Z. Hasan, Nature **452**, 970 (2008).

6. H. Zhang, C.-X. Liu, X.-L. Qi, X. Dai, Z. Fang, and S.-C. Zhang, *Nature Phys.* **5**, 438 (2009).
7. Z. D. Kvon, D. A. Kozlov, E. B. Olshanetsky, G. M. Gusev, N. N. Mikhailov, and S. A. Dvoretsky, *Phys.-Uspekhi* **63**, 629 (2020).
8. O. Deb, A. Soori, and D. Sen, *J. Phys. Condens. Matter* **26**, 315009 (2014).
9. T. M. Herath, P. Hewageegana, and V. Apalkov, *Phys. Rev. B* **87**, 075318 (2013).
10. N. I. Fedotov and S. V. Zaitsev-Zotov, *Phys. Rev. B* **95**, 155403 (2017).
11. C. L. Kane and E. J. Mele, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 226801 (2005).
12. J. Hinz, H. Buhmann, M. Schäfer, V. Hock, C. R. Becker, and L. W. Molenkamp, *Semicond. Sci. Technol.* **21**, 501 (2006).
13. H. Yang, X. Peng, W. Liu, X. Wei, G. Hao, C. He, J. Li, G. M. Stocks, and J. Zhong, *J. Phys. Condens. Matter* **26**, 395005 (2014).
14. M. V. Durnev and S. A. Tarasenko, *Phys. Rev. B* **93**, 075434 (2016).
15. V. Pokrovskii and I. Khalatnikov, *Soviet Phys. JETP* **13**, 1207 (1961).
16. X.-L. Qi and S.-C. Zhang, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1057 (2011).
17. Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **17**, 6039 (1984).
18. Y. Zhang, K. He, C.-Z. Chang, C.-L. Song, L.-L. Wang, X. Chen, J.-F. Jia, Z. Fang, X. Dai, W.-Y. Shan, S.-Q. Shen, Q. Niu, X.-L. Qi, S.-C. Zhang, X.-C. Ma, Q.-K. Xue, *Nature Phys.* **6**, 584 (2010).
19. T. Kernreiter, M. Governale, U. Zuelicke, and E. Hankiewicz, *Phys. Rev. X* **6**, 021010 (2016).
20. A. A. Zyuzin, M. D. Hook, and A. A. Burkov, *Phys. Rev. B* **83**, 245428 (2011).
21. M. V. Berry, *Journal of Physics A: Mathematical and General* **15**, 3693 (1982).
22. E. T. Whittaker and G. N. Watson, *A course of modern analysis: an introduction to the general theory of infinite processes and of analytic functions; with an account of the principal transcendental functions*, University press, Cambridge (1920).
23. M. Schultz, F. Heinrichs, U. Merkt, T. Colin, T. Skauli, and S. Løvold, *Semicond. Sci. Technol.* **11**, 1168 (1996).
24. S. S. Krishtopenko and F. Teppe, *Phys. Rev. B* **97**, 165408 (2018).
25. K.-M. Dantscher, D. A. Kozlov, M. T. Scherr, S. Gebert, J. Bärenfänger, M. V. Durnev, S. A. Tarasenko, V. V. Bel'kov, N. N. Mikhailov, S. A. Dvoretsky, Z. D. Kvon, J. Ziegler, D. Weiss, and S. D. Ganichev, *Phys. Rev. B* **95**, 201103 (2017).
26. M. Yakunin, S. Podgornyykh, N. Mikhailov, and S. Dvoretsky, *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **42**, 948 (2010).

## Концепция собирающей металинзы на чипе в качестве миниатюрного сенсора флуоресценции одиночных молекул

Ф. А. Шуклин<sup>+</sup>, Е. Ю. Барулина<sup>++\*</sup>, С. М. Новиков<sup>+</sup>, А. И. Чернов<sup>++\*</sup>, А. В. Барулин<sup>+1)</sup>

<sup>+</sup> Центр фотоники и двумерных материалов, МФТИ, Физтех, 141701 Долгопрудный, Россия

<sup>\*</sup> Российский квантовый центр, Территория Инновационного центра “Сколково”, 121205 Москва, Россия

Поступила в редакцию 28 июля 2024 г.

После переработки 10 сентября 2024 г.

Принята к публикации 19 сентября 2024 г.

Флуоресцентная спектроскопия одиночных молекул имеет фундаментальную значимость для обнаружения малого количества вещества и изучения молекулярных динамических процессов. Однако применения данного метода в медицине требуют новых решений по миниатюризации сенсорной платформы. Наиболее перспективным направлением в данной области представляется создание фотонных интегральных схем с высокой эффективностью детектирования молекул в объеме порядка кубического микрометра. В данной работе мы представляем концепцию по созданию диэлектрической металинзы на волноводе, обладающей высокой эффективностью фокусирования/сбора излучения из водного раствора. Промоделирована структура металинзы с числовой апертурой выше 1.1, работающей в видимом диапазоне, в окрестности максимума флуоресценции биологической метки Alexa Fluor 647. После расчета эффективности детектирования молекул, проведены расчеты автокорреляционных функций диффузии Alexa Fluor 647, характеризующие возможность измерения яркости, количества и динамики одиночных молекул в фокальном объеме металинзы. Данная концепция закладывает основу для разработки будущих сенсоров одиночных молекул в качестве средств биомедицины и скрининга окружающей среды.

DOI: 10.31857/S0370274X24110098, EDN: TLUMDA

Флуоресцентная спектроскопия одиночных молекул представляет собой уникальный метод для изучения процессов биофизики и применения в биомедицине [1–4]. Сенсоры одиночных молекул имеют преимущества в качестве платформы для детектирования вещества при низких концентрациях [5, 6], секвенирования цепочек ДНК и пептидов [7, 8], изучения конформации и взаимодействия молекул [9–11] с возможностью измерения распределения и популяций, скрытые от ансамблевых измерений. Данная методология повышает эффективность биологических анализов благодаря специфичности к биомаркерам заболеваний [12]. Однако инструменты для проведения спектроскопии одиночных молекул включают в себя громоздкие и дорогостоящие оптические микроскопы и объективы. При этом многие практические приложения этих методов требуют миниатюрных и портативных платформ [13, 14]. Для решения этой задачи в последние десятилетия были предложены системы на основе смартфонов, портативных микроскопов и беспроводных систем [15–18]. Хотя данные системы позволяют уменьшить размер детектирующей оптической платформы, фотонная интегральная

схема является наиболее перспективной технологией для значимой миниатюризации оптической системы [19]. Металинзы являются подклассом металповерхностей [20, 21] и представляют собой миниатюрные оптические элементы. Данные структуры способны работать в ближнем поле путем конвертации затухающих волн в распространяющиеся [22], либо в дальнем поле путем пространственного контроля фазы света, взаимодействующего с металинзой [23]. Дальнепольные металинзы состоят из наноразмерных структур, мета-атомов, которые избирательно задают фазу в плоскости металинзы. Металинзы на чипе недавно показали свою эффективность в задачах вывода и фокусировки инфракрасного излучения, распространяющегося в планарных волноводах высокого коэффициента преломления [24–27]. Данная система имеет существенный потенциал миниатюризации платформы для сбора флуоресценции, не требующей объемных и дорогостоящих высокоапертурных объективов. Тем не менее концепция возможности применения таких структур для сбора излучения диффундирующих одиночных молекул в видимом диапазоне ранее не была показана. В данной работе представлена модель системы фотонной интегральной схемы, способной собирать флу-

<sup>1)</sup>e-mail: alexbarulin73@gmail.com

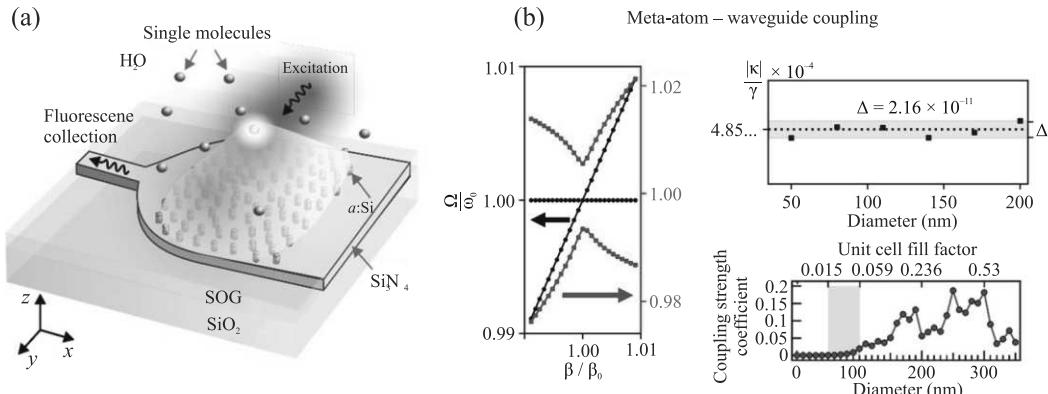


Рис. 1. (Цветной онлайн) Оптимизация металинзы на чипе для фокусирования видимого излучения. (а) – Вид структуры металинзы из кремниевых наноцилиндров на волноводе из нитрида кремния. (б) – Левая крайняя панель показывает пересечение моды мета-атома и используемой в моделировании моды волновода (чёрные точки); красной линией показан пример сильного взаимодействия и расхождения собственных мод системы мета-атом–волновод; правая верхняя панель демонстрирует зависимость силы связи мод индивидуального мета-атома от его размеров; правая нижняя панель показывает эффективность выведения света из волновода в зависимости от отношения фактора заполнения

опресценцию одиночных молекул. В качестве примера анализа мы рассматриваем широко используемую флуоресцентную метку для проведения биологических анализов в растворах Alexa Fluor 647 (A647), так как ее оптические и химические свойства хорошо экспериментально изучены и описаны в литературе [17, 28], а сама молекула часто используется в качестве эталона в экспериментах и демонстрирует актуальность предложенной модели для сверхкомпактных биосенсоров [29, 30]. Путем численных моделирований составлены диэлектрические металинзы в виде массива мета-атомов, представляющих собой наноцилиндры из аморфного кремния (*a*-Si) на волноводе из нитрида кремния ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ). Путем варьирования положения мета-атомов на оси направления распространения света в волноводе металинзы может сфокусировать волноводное излучение моды  $TE_0$  в водный раствор с угловой апертурой порядка 1.1 на длине волны 670 нм, соответствующей максимуму флуоресценции A647. Изменение положения мета-атомов позволяет корректировать фазу выведенного излучения, в то время как диаметр цилиндров позволяет увеличивать силу взаимодействия по мере распространения света в волноводе. Путем моделирований FDTD рассчитывается эффективность детектирования молекул (MDE). Рабочее расстояние металинзы составляет  $14\lambda$ , что позволяет избежать влияния ближнего поля мета-атомов и волновода на фотодинамику излучателей. После оценки собирающей способности металинзы мы приводим расчет автокорреляционной кривой флуоресцентного сигнала диффундирующих одиночных молекул, проходящих через фокальный объем. Флуктуации собираемого излучения используются в качестве входных

данных для определения количества, яркости и времени диффузии одиночных молекул с помощью флуоресцентной корреляционной спектроскопии (ФКС). По моделированиям ФКС методом Монте-Карло мы показываем зависимость времени диффузии и яркости флуоресценции одиночных молекул A647 от числовой апертуры (NA) металинзы.

На рисунке 1а представлена схема металинзы на волноводе для фотоники в видимом диапазоне. Излучение  $TE_0$  собирается путем ближнепольной связи мета-атомов и волновода в окрестности  $\lambda = 670$  нм. Толщина волноводного канала равна 100 нм, где интенсивность излучения моды на поверхности волновода достигает порядка 50 %. Волновод помещен на слой из кристаллического оксида кремния. Цилиндрические мета-атомы *a*-Si нанесены на волновод с образованием прямого контакта. Далее металинза покрыта слоем диоксида кремния (SOG, толщина 2 мкм) для предотвращения прямого взаимодействия затухающих волн волновода с флуоресцентными молекулами. Таким образом, объем детектирования формируется лишь фокальным объемом металинзы в дальнем поле. Метод конечных разностей во временной области (FDTD) использовался для оптимизации дизайна металинзы. На первом этапе была рассчитана константа распространения света ( $\beta$ ) в волноводе с помощью нанесения периодического массива цилиндров *a*-Si по следующей формуле[24]:

$$\beta = k \sin \theta + \frac{2\pi}{\Lambda}, \quad (1)$$

где  $k$  – волновое число в среде  $\text{SiO}_2$ ,  $\theta$  – угол преломления выведенного излучения из волновода в дальнее поле,  $\Lambda$  – расстояние между цилиндрами. Для

выведения излучения вдоль оси нормали волновода, параметр  $\Lambda = 365$  нм создает оптимальные условия для излучения под минимальным углом к нормали плоскости волновода. Параметр  $\beta$  волновода рассчитывается после определения угла  $\theta$  методом FDTD и составляет  $1.52k_0$  для данного волновода. Накопление фазы в волноводе  $\text{Si}_3\text{N}_4$  при распространении света задано  $+\beta x$ , где  $x$  – координата прохождения вдоль металинзы. Для того, чтобы фокусировать свет в свободном пространстве, были подобраны положения мета-атомов одного размера (постоянный сдвиг фазы при пропускании), которые помещены в точках пересечения фазы, накопленной в волноводе, и фазой собирающей линзы:

$$\varphi_{\text{lens}}(x, y) = nk_0 \left( F - \sqrt{F^2 + x^2 + y^2} \right), \quad (2)$$

где  $F$  – фокусное расстояние линзы. Фокусное расстояние было подобрано согласно угловой апертуре металинзы на чипе:  $NA = n \cdot \sin(\arctan \frac{D}{2F})$ , где  $D$  – диаметр металинзы. Ширина одномодового волноводного канала была установлена с учетом не превышения частоты отсечки для сбора излучения флуоресценции.

Положение частоты отсечки одномодового волновода соответствует ширине асимметричного волновода  $\text{Si}_3\text{N}_4$  и составляет 1.2 мкм. Далее, в модельной структуре устанавливается область свободной струи с целью размещения высокоапертурной металинзы (диаметр 30 мкм). По мере распространения света в области свободной струи образуется неравномерный волновой фронт по оси  $y$  при взаимодействии с металинзой. Таким образом, накопленная фаза металинзы задается как:

$$\varphi(x, y) = \beta x + \varphi_{\text{ma}}(x, y) + \varphi_{\text{input}}(y), \quad (3)$$

где  $\varphi_{\text{ma}}(x, y)$  – изменение фазы, внесенное мета-атомом заданной геометрии,  $\varphi_{\text{input}}(y)$  – фазовый профиль излучения после прохождения области свободной струи.

Уравнение (3) означает, что каждый мета-атом вносит изменение фазы независимо от остальных. Такое приближение предполагает, что взаимодействие мета-атома с модой волновода влияет на последнюю достаточно слабо, чтобы этим взаимодействием можно было пренебречь при учете фазы следующих мета-атомов. Физический механизм взаимодействия мета-атома с волноводом основан на локальном возмущении диэлектрической функции волновода посредством ближнепольного взаимодействия экспоненциально затухающей вне волновода его  $TE_0$  моды с модой мета-атома, близкой к

$c_0/670[\text{нм}]$ , и рассеяния моды в волноводе на этом возмущении. Таким образом, волновод и мета-атомы образуют связанную оптическую систему, и вклады мета-атомов и волновода в общую фазу можно разделить как в уравнении (3) только в том случае, если мода волновода связана с излучающими модами мета-атомов слабо. Тогда влияние мета-атомов на моду волновода (и друг на друга посредством волновода) будет несущественным, что позволяет записать общее изменение фазы в форме (3). Чтобы оценить корректность применения такого подхода и понять, насколько взаимодействие моды мета-атома с модой волновода меняет последнюю, следует сравнить систему связанных мод с системой независимых волновода и мета-атома. Это можно сделать, построив теорию связанных мод (СМТ) для системы волновод–мета-атом [31–33], эффективный гамильтониан которой в окрестности интересующей нас частоты соответствует:

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} \omega_0 + v_g \beta & \kappa \\ \kappa^* & \omega_0 - i\gamma \end{pmatrix}, \quad (4)$$

где  $\omega_0$  – действительная часть собственной частоты мета-атома и обратно пропорциональна его резонансной длине волны  $\lambda_0$ ,  $\gamma$  – ее мнимая часть,  $v_g$  – групповая скорость, а  $\kappa$  – коэффициент связи мод волновода и мета-атома. Собственные частоты такого гамильтониана даются следующим выражением:

$$\Omega_{\pm} = \omega_0 + \frac{1}{2}(v_g \beta - i\gamma) \pm \sqrt{\frac{1}{4}(v_g \beta - i\gamma)^2 + |\kappa|^2}. \quad (5)$$

Система, описываемая эффективным гамильтонианом (4), может находиться в двух принципиальных режимах взаимодействия [34]: режим сильной связи (при  $\gamma \ll |\kappa|$ , расходжение собственных частот мод) и режим слабой связи (при  $\gamma \gg |\kappa|$ , пересечение собственных частот мод). Таким образом, для того, чтобы уравнение изменения фаз (3) корректно описывало фазу металинзы, система волновод–мета-атом должны находиться в режиме слабой связи.

На интересующих нас длинах волн мета-атом, представляющий собой наноразмерный диэлектрический цилиндр, можно представить низкодобротным Ми-резонатором, что позволяет использовать инструментарий СМТ для квазинормальных мод для вычисления константы связи мод [35]:

$$\kappa \propto \int_{\Sigma} d\Sigma \hat{s} \cdot (\mathbf{E}_{wg}^* \times \mathbf{H}_{\text{ma}} + \mathbf{E}_{\text{ma}} \times \mathbf{H}_{wg}^*). \quad (6)$$

Здесь  $\mathbf{E}_{wg}$ ,  $\mathbf{H}_{wg}$  – электрическое и магнитное поля моды волновода,  $\mathbf{E}_{\text{ma}}$ ,  $\mathbf{H}_{\text{ma}}$  – поля моды мета-атома,

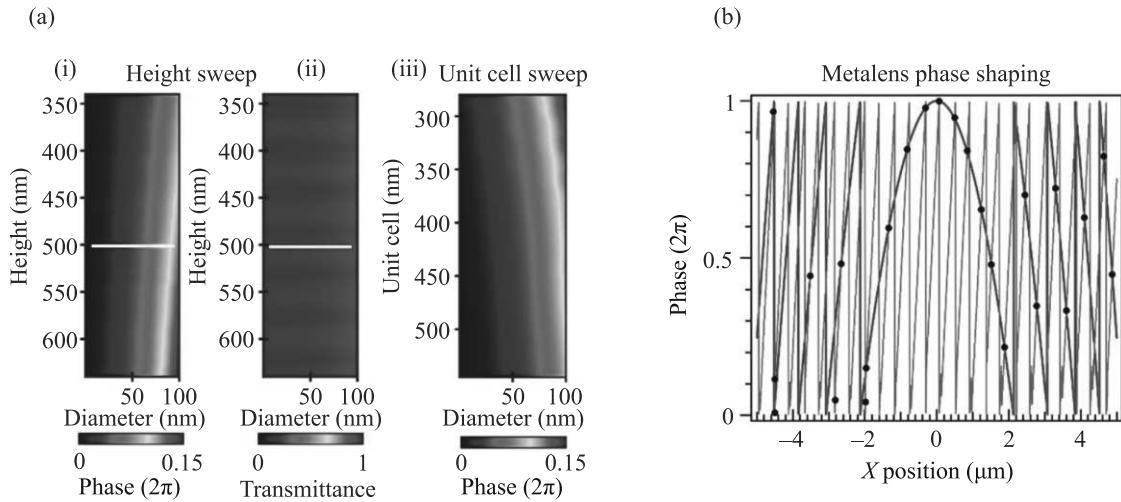


Рис. 2. (Цветной онлайн) Оптимизация металинзы на чипе для фокусирования видимого излучения. (а) – Карты (i) фазы, накопленной в мета-атомах при прохождении волны вдоль оси  $z$ , и (ii) пропускания в зависимости от высоты и диаметра мета-атомов при фиксированном размере элементарной ячейки (365 нм). (iii) Карты накопления фазы при изменении размера элементарной ячейки по оси  $y$  и фиксированной высоте 500 нм (отмечена белой линией на (i) и (ii)). (б) – Целевая фаза излучения (красная кривая) и фаза, накопленная в структуре металинзы (серая кривая). Черные точки обозначают положения пересечений, где установлены мета-атомы

интегрирование производится по поверхности  $\Sigma$  порта рассеяния (Ми-мода свободного пространства, которая связывается с рассеивателем) с нормалью  $\hat{s}$ . Поскольку вне волновода поле его моды экспоненциально затухает, интегрирование (6) проводится по нижней границе цилиндра, соприкасающегося с волноводом (по подошве).

В любой задаче о квазинормальных модах возникает вопрос о выборе нормировки. Для данной системы мы остановились на процедуре нормировки, предложенной Сауваном и др. [36, 37], так как она, с одной стороны, эквивалентна другим принятым нормировкам [37], а с другой, позволяет провести достаточно простой численный расчет, который потребует только лишь увеличения толщины идеально подобранных слоев (PML) на границе области вычислений и модификации декартовых координат в этом слое. После соответствующей нормировки и вычисления интеграла (6) мы получим коэффициент связи мод в единицах угловой частоты. Результаты вычислений  $\kappa$  представлены на рис. 1b. На левой крайней панели рис. 1b черным показано пересечение собственных частот системы и отсутствие гибридизации моды рассматриваемой моды  $TE_0$  с ближайшей по частоте модой мета-атома при радиусе 50 нм. Коэффициент связи  $\kappa$  такой системы равен  $2\pi \times 28.6 \text{ ГГц}$ , мнимая часть собственной частоты мета-атома  $\gamma - 2\pi \times 58.79 \text{ ТГц}$ , что соответствует разнице в три порядка. Красным цветом на рис. 1b приведены собственные частоты системы волновод-

мета-атом с расхождением и сильной связью. Были использованы следующие параметры: радиус мета-атома 250 нм, толщина волновода 43 нм, материал волновода – кремний.

На правой верхней панели рис. 1b продемонстрированы результаты вычислений коэффициента связи для разных диаметров мета-атома. Для всех рассмотренных диаметров видно, что коэффициент связи отнесенный к затуханию моды мета-атома меняется в пределах ошибки численного интегрирования. Причина независимости коэффициента связи от радиуса мета-атома (и, следовательно, от площади порта связи мод) в том, что для рассмотренных радиусов, несмотря на абсолютное увеличение потока энергии моды волновода через порт, плотность энергии внутри мета-атома уменьшается, что оставляет интеграл перекрытия неизменным.

Таким образом, для всех интересующих нас длин волн и размеров мета-атомов мы можем гарантировать слабую связь мод волновода и рассеятеля, и, следовательно, корректность приближений, сделанных при выводе уравнения (3).

Для дополнительного контроля амплитуды, рассчитан коэффициент силы связи излучения вверх (доля излучения, направленная в водный раствор) от диаметра цилиндра и коэффициента заполнения элементарной ячейки металинзы (нижняя правая панель рис. 1b). Коэффициент силы связи излучения вверх составляет менее 2 % для диаметра 100 нм. Кроме того, из этого расчета видно, что несмотря

на то, что связь мод волновода и мета-атома для всех рассмотренных диаметров остается слабой, при достаточно большом факторе заполнения (отношение площади подошвы мета-атома к площади элементарной ячейки), моды соседних мета-атомов начинают взаимодействовать друг с другом и с модой волновода, что приводит к сложному поведению эффективности выведения излучения из волновода. Это обстоятельство также следует учитывать при выборе радиуса мета-атома для сохранения корректности уравнения изменения фаз (3). Взаимодействие волновода со структурой становится достаточно сильным при диаметрах выше (100 нм) и меняет накопление фазы внутри волновода. Дизайн и размеры структур данной платформы выбран с учетом возможностей современных методов нанофабрикации [38]. Рисунок 2а описывает влияния диаметра и высоты мета-атомов на фазу и пропускание излучения. Путем помещения мета-атомов в положение, удовлетворяющих условию:  $\varphi(x, y) \approx \varphi_{\text{lens}}(x, y)$ , генерируется структура металинзы (рис. 2б). Ввиду внесения фазового сдвига мета-атомами, их положение сдвигается для поддержания фазового профиля излучения в свободное пространство. Используя диаметры  $d = 100$  нм, принцип построения металинзы остается функциональным, при этом увеличивается эффективность фокусирования металинзы.

Рисунок 3а, б показывают нормированную функцию рассеяния точки металинзы (PSF) на длине волны 670 и 680 нм и диаметром металинзы 30 мкм, соответствующее числовой апертуре 1.1. Фокальное расстояние составляет 9.5 мкм, и с учетом преломления света на границе фаз воды и защитного слоя SOG точно соответствует величине целевого  $F$  (рис. 3с). Численные моделирования FDTD подтверждают формирование фокального объема в дальнем поле. Число Штреля металинзы достигает значений 0.84, что удовлетворяет требованиям фокусирования на уровне дифракционного предела [38, 39]. Эффективность фокусирования, соответствующая доли мощности света в фокусе относительно инжектируемого излучения в волновод, варьируется в диапазоне  $13 \pm 0.5\%$  на длинах волн от 660 до 680 нм. Учитывая высокую угловую апертуру, данная величина соответствует или превышает достигнутые значения для кремниевых металинз на волноводах на телекоммуникационных длинах волн [24]. Для поддержания малого эффективного объема детектирования, мы проводим моделирования функции рассеяния точки в узком диапазоне длин волн около максимума флуоресценции A647. В рамках данной модели, рассматривается равномерное возбуждение

источником света с направлением излучения вдоль оси  $z$ , перпендикулярной оптической оси металинзы (рис. 1а).

В силу симметричности матрицы рассеяния системы металинза–волновод–окружение, такая система взаимна, а динамика ее обратима [40, 41]. В силу этого обстоятельства, задача об эффективности выведения и фокусировки излучения металинзой в данной области эквивалентна задаче о нахождении эффективности сбора и направления излучения источника в волновод, расположенного в той же области фокуса. Таким образом, MDE может быть представлена в виде:

$$\text{MDE}(x, y, z) = P_{\max} \frac{\int F(\lambda) \cdot \text{PSF}(x, y, z) d\lambda}{\int F(\lambda) d\lambda}, \quad (7)$$

где  $F(\lambda)$  – интенсивность спектра флуоресценции молекулы,  $P_{\max}$  – максимальная вероятность детектирования фотонов.  $P_{\max}$  получена из FDTD моделирований изотропного точечного источника, помещенного в центр фокального объема. Учитывая, что вращение направления дипольного момента молекул осуществляется на несколько порядков быстрее времени диффузии через фемтолитровый объем детектирования, изотропный источник является оптимальным приближением. Таким образом, MDE для детектирования молекул A647 составляет 0.062% (рис. 3с). Несмотря на невысокое значение, эффективность детектирования стационарных микроскопов с высокоапертурными преломляющими объективами составляет единицы процентов [42, 43]. Для расчета яркости одиночных молекул и применимости данной платформы для флуоресцентной корреляционной спектроскопии, проводится расчет излучения молекул A647. Частота излучения фотонов одной молекулой ( $N_F$ ) при возбуждении непрерывным источником задается как [44]:

$$N_F = \text{MDE} \cdot k_{\text{ff}} \cdot S_1, \quad (8)$$

где  $k_{\text{ff}}$  – константа скорости флуоресценции,  $S_1$  – заселенность возбужденного состояния, заданная как  $S_1 = k_{abs}/(k_{abs} + k_{sat})$ , где  $k_{abs}$  – константа скорости накачки молекул, константа скорости насыщения возбужденного состояния  $k_{sat}$ . Используя доступные наборы данных по измерению насыщения заселенности возбужденного состояния A647 [17], можно вычислить  $S_1$  при условии, что  $k_{sat} = 458$  МГц. Уравнение (8) применимо при условии пренебрежимо малой константе скорости фото-обесцвечивания, поэтому в рамках моделирования установленная  $k_{abs}$  не изменяется в окрестности фокального объема

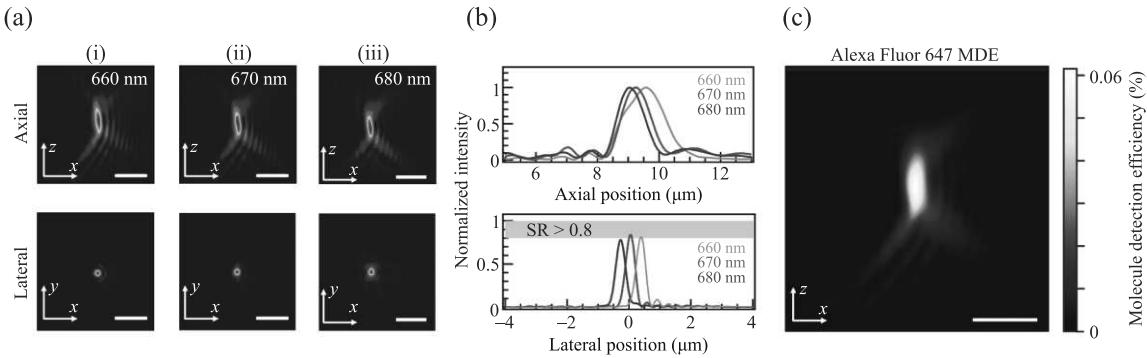


Рис. 3. (Цветной онлайн) Фокусирование в свободное пространство. (а) – Функция рассеяния точки металинзы ( $\text{NA} = 1.1$ ) в главной оптической плоскости (верхние изображения) и в фокальной плоскости (нижние изображения) металинзы на длинах волн 660 нм (i), 670 нм (ii) и 680 нм (iii). Рабочее расстояние металинзы составляет 9.5 мкм. (б) – Разрезы нормированной функции рассеяния точки вдоль оптической оси (сверху) и в поперечной фокальной плоскости (снизу). Функции рассеяния точки на нижней панели нормированы на площадь разреза диска Эйри для идеальной линзы с такой же НА. Затененная область указывает диапазон чисел Штреля, соответствующих дифракционному пределу. (с) – Карта эффективности детектирования молекул A647 в главной оптической оси. MDE рассчитывается с учетом сбора флуоресценции в диапазоне 660–680 нм. Масштаб: 2 мкм

и удовлетворяет условию  $k_{abs} \ll k_{sat}$ , при котором фото-обесцвечивание пренебрежимо мало для диффундирующих молекул [45]. Учитывая значение квантового выхода ( $QY = 0.33$ ) для A647 в водном растворе,  $N_F$  в линейном режиме может достигать 8.32 кГц.  $N_F$ , MDE и коэффициент диффузии A647 используются в качестве входных параметров моделирования флуоресцентной корреляционной спектроскопии в программном обеспечении SimFCS<sup>2)</sup>, основанном на методе Монте-Карло. Данный метод позволяет характеризовать динамические флуктуации флуоресценции одиночных молекул в водных растворах различной концентрации, причем точность метода напрямую связана с эффективностью детектирования одиночных молекул [46]. В процессе моделирования регистрируются электроны с частотой, соответствующей яркости молекул в диапазоне времен накопления 10 с. Молекулы стochастически перемещаются из одной элементарной ячейки в другую размером 50 нм, аналогично изотропному броуновскому движению. При попадании в эффективный объем детектирования молекулы начинают излучать свет с частотой до  $N_F$ . Затем вычисляется автокорреляционная кривая сигнала  $G(\tau)$  при временах задержки  $\tau$  от 2 мкс до 2 мс по определению:

$$G(\tau) = \frac{\langle \delta I(t) \delta I(t + \tau) \rangle}{\langle I \rangle^2}, \quad (9)$$

где  $I$  – интенсивность флуоресценции, а скобки  $\langle \cdot \rangle$  обозначают усреднение значения по времени отсле-

<sup>2)</sup><http://www.lfd.uci.edu/globals/>.

живания. Несмотря на ограниченный сигнал, автокорреляционная функция не имеет значительных шумов при временных сдвигах выше 10 мкс. Учитывая литературные данные для использования пропускающих металинз или наноантенн из аморфного кремния в рассматриваемом диапазоне длин волн и  $k_{abs}$ , фоновые шумы от фотолюминесценции аморфного кремния не превышают 100 фотонов в секунду [17, 47], что много меньше рассчитанной яркости молекулы A647. Также стоит отметить, что флуктуации локального показателя преломления являются важным аспектом для рассмотрения в реальном эксперименте, учитывая их существенное влияние на время жизни и частоту излучения одиночных молекул [48–50]. Тем не менее, многие красители, включая Alexa Fluor [51], лишь незначительно меняют длину волны и интенсивность флуоресценции в диапазоне показателей преломления от 1.33 до 1.42 при комнатной температуре.

Рисунок 4а показывает автокорреляционные кривые флуоресценции молекул A647 собранного излучения металинзами с различными числовыми апертурами. Данные интерполируются согласно стандартной трехмерной диффузационной модели:

$$G_D(\tau) = \frac{1}{N} \frac{1}{1 + \tau/\tau_D} \left( 1 + \frac{\tau \omega_{xy}^2}{\tau_D \omega_z^2} \right)^{-1/2}, \quad (10)$$

где  $N$  – число молекул,  $\tau_D$  – время диффузии молекул,  $\omega_{xy}$  и  $\omega_z$  – полуширины фокального объема по уровню интенсивности  $1/e^2$  в поперечной и продольной плоскости оптической оси. Стоит заметить, что использование высокоапертурной металинзы являет-

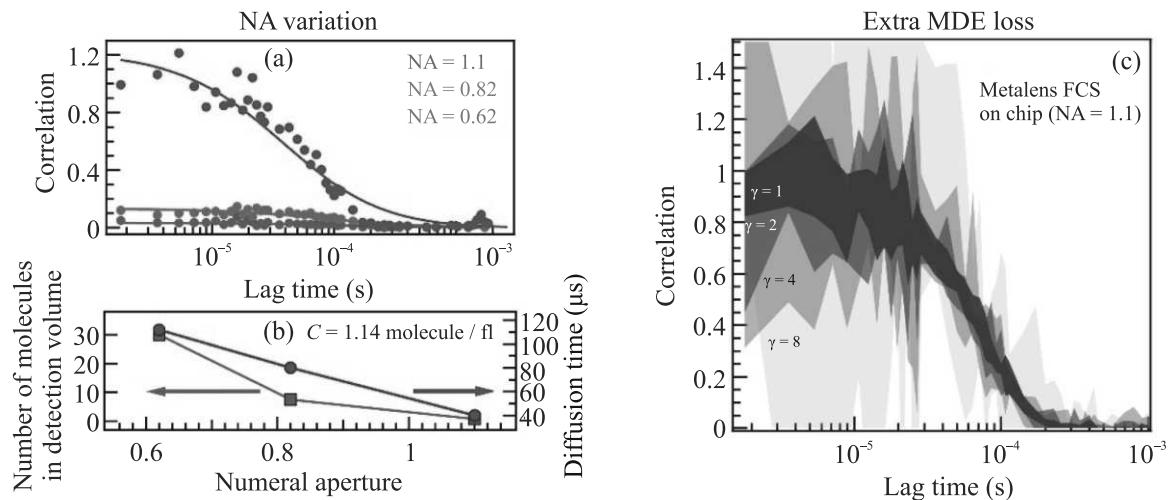


Рис. 4. (Цветной онлайн) Моделирование автокорреляционных функций интенсивности флуоресценции на основе металинзы на чипе. (а) – Автокорреляционные функции диффундирующих молекул Alexa Fluor 647 через фокус металинзы на волноводе с NA = 1.1; NA = 0.82; NA = 0.62. Время накопления флуоресценции составляет 10 с. (б) – Время диффузии и число молекул для металинзы с соответствующими числовыми апертурами. (с) – Влияние дополнительных потерь MDE, пропорциональных коэффициенту  $\gamma$ , для металинзы с NA = 1.1. Кривые представляют диапазоны минимумов и максимумов корреляций при проведении 6 моделей Монте-Карло для каждого  $\gamma$

ся важным параметром для эффективного детектирования флуоресценции одиночных молекул. MDE уменьшается в 1.9 и 5.6 раз при применении металинз с числовыми апертурами 0.82 и 0.62 соответственно. Помимо увеличения времени диффузии и эффективного объема детектирования, наблюдается рост шумов автокорреляционной кривой при понижении угловой апертуры (рис. 4б). Металинза с NA = 1.1 может локализовать излучение одиночных молекул с концентрацией до 1.8 нМ. Соотношение сигнала к шуму автокорреляционной функции пропорционально  $N_F$ , поэтому применение данного метода возможно только при значительной эффективности детектирования в диапазоне длин волн флуоресценции. В данной работе рассматривается система сбора флуоресценции в канал одномодового волновода, однако на пути детектирования молекул в реальном эксперименте могут возникнуть дополнительные потери при регистрации сигнала счетчиками фотонов и понижении  $k_{abs}$ . Применяя коэффициент потерь  $\gamma$ , понижающий MDE, были промоделированы автокорреляционные функции для металинзы с NA = 1.1. Несмотря на увеличения величины шумов автокорреляционной функции, металинза позволяет получать автокорреляционные кривые при дополнительном коэффициенте потерь до  $\gamma = 8$  (рис. 4с).

Таким образом, продемонстрирована модель портативной металинзы для детектирования одиночных флуоресцентных молекул A647 на чипе в видимом диапазоне. Обнаружено, что металинза на чипе с

угловой апертурой 1.1 способна собирать излучение одиночных молекул A647 на уровне нескольких кГц, что является достаточным условием для проведения флуоресцентной корреляционной спектроскопии. Упрощенный дизайн металинзы соответствует приемлемой сложности дляnanoфабрикации, что заложит основу для экспериментального использования устройства в будущем. Чувствительность системы к времени диффузии может позволить отличить биомаркеры со значительно отличающимися гидродинамическими радиусами, такие как белки, экзосомы, микровезикулы [52, 53]. Данная структура металинзы подходит для сбора флуоресценции A647, однако при оптимальном подборе экспериментальных параметров структуры предложенная концепция применима и к другим излучателям в видимом диапазоне. Потенциальное усложнение структур мета-атомов и компенсация дисперсии групповой скорости внутри волновода может позволить создать ахроматические металинзы для проведения эпи-флуоресцентной спектроскопии на чипе, что представляет собой перспективную переносную сенсорную платформу для биомедицины и скрининга окружающей среды.

**Финансирование работы.** Численные моделирования по оптимизации структуры металинзы выполнены при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (Соглашение № 075-15-2024-622). Моделирования флуоресцентной корреляционной спектроскопии выполне-

ны при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (соглашение № 075-15-2014-200). Анализ собственных мод метатома проведен при поддержке Министерства науки и высшего Образования Российской Федерации (FSGM-2024-0014). Силы связи мод и исследование взаимности системы проведены при поддержке межуниверситетского проекта КЛЕВЕР.

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

18. K. Trofymchuk, V. Glebockyte, L. Grabenhorst et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **12**, 950 (2021).
19. S. Dey, M. Dolci, and P. Zijlstra, *ACS Physical Chemistry Au* **3**, 143 (2023).
20. A. Valitova, A. Gazizov, and M. K. Salakhov, *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. Physics* **86**, S239 (2022).
21. A. Panov, *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **86**, S163 (2022).
22. K. V. Baryshnikova, S. S. Kharintsev, P. A. Belov, N. A. Ustimenko, S. A. Tretyakov, and C. R. Simovski, *Phys.-Uspekhi* **65**, 355 (2022).
23. M. Khorasaninejad and F. Capasso, *Science* **358**, eaam8100 (2017).
24. P.-Y. Hsieh, S.-L. Fang, Y.-S. Lin, W.-H. Huang, J.-M. Shieh, P. Yu, and Y.-C. Chang, *Nanophotonics* **11**, 4687 (2022).
25. Y. Ding, X. Chen, Y. Duan, H. Huang, L. Zhang, S. Chang, X. Guo, and X. Ni, *ACS Photonics* **9**, 398 (2022).
26. L. Deng, Z. Cai, and Y. Liu, *Nano Lett.* **24**, 9042 (2024).
27. H. Huang, A. C. Overvig, Y. Xu, S. C. Malek, C.-C. Tsai, A. Alí, and N. Yu, *Nat. Nanotechnol.* **18**, 580 (2023).
28. J. Wenger, D. Gérard, J. Dintinger, O. Mahboub, N. Bonod, E. Popov, T. W. Ebbesen, and H. Rigneault, *Opt. Express* **16**, 3008 (2008).
29. I. Gombos, G. Steinbach, I. Pomozi, A. Balogh, G. Vámosi, A. Gansen, G. László, G. Garab, and J. Matkó, *Cytometry Part A: The Journal of the International Society for Analytical Cytology* **73**, 220 (2008).
30. S.-M. Seo, S.-W. Kim, J.-N. Park, J.-H. Cho, H.-S. Kim, and S.-H. Paek, *Biosens. Bioelectron.* **83**, 19 (2016).
31. J. Grgić, E. Campaioli, S. Raza, P. Bassi, and N. A. Mortensen, *Opt. Quantum Electron.* **42**, 511 (2011).
32. L.-L. Lin, Z.-Y. Li, and B. Lin, *Phys. Rev. B* **72**, 165330 (2005).
33. W.-P. Huang, *J. Opt. Soc. Am. A* **11**, 963 (1994).
34. M. F. Limonov, M. V. Rybin, A. N. Poddubny, and Y. S. Kivshar, *Nat. Photonics* **11**, 543 (2017).
35. M. Benzaouia, J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, and A. Karalis, *Phys. Rev. Res.* **3**, 033228 (2021).
36. C. Sauvan, J. P. Hugonin, I. S. Maksymov, and P. Lalanne, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 237401 (2013).
37. P. T. Kristensen, R.-C. Ge, and S. Hughes, *Phys. Rev. A* **92**, 053810 (2015).
38. A. Barulin, H. Park, B. Park, and I. Kim, *Photoacoustics* **32**, 100545 (2023).
39. M. Khorasaninejad, A. Y. Zhu, C. Roques-Carmes, W. T. Chen, J. Oh, I. Mishra, R. C. Devlin, and F. Capasso, *Nano Lett.* **16**, 7229 (2016).
40. M. Benzaouia, J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, and A. Karalis, in *2021 Fifteenth International Congress on Artificial Materials for Novel Wave Phenomena (Metamaterials)*, IEEE, N.Y. (2021), p. 47.

41. R. J. Potton, Rep. Prog. Phys. **67**, 717 (2004).
42. W. Barnes, G. Björk, J. Gérard, P. Jonsson, J. Wasey, P. Worthing, and V. Zwiller, The European Physical Journal D: Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics **18**, 197 (2002).
43. A. Barulin and I. Kim, Opt. Express **31**, 12162 (2023).
44. D. Wüstner, T. Christensen, L. M. Solanko, and D. Sage, Molecules **19**, 11096 (2014).
45. C. Eggeling, A. Volkmer, and C. A. Seidel, ChemPhysChem **6**, 791 (2005).
46. H. Qian, Biophysical Chemistry **38**, 49 (1990).
47. R. Regmi, J. Berthelot, P. M. Winkler, M. Mivelle, J. Proust, F. Bedu, I. Ozerov, T. Begou, J. Lumeau, H. Rigneault, and M. F. García-Parajó, Nano Lett. **16**, 5143 (2016).
48. М. Г. Гладуш, Т. А. Анюкушина, А. А. Горшев, Т. В. Плахотник, А. В. Наумов, ЖЭТФ **155**, 771 (2019).
49. S. Kharintsev, E. Battalova, V. Mkhitaryan, and V. Shalaev, Opt. Mater. Express **14**, 2017 (2024).
50. A. V. Naumov, A. A. Gorshelev, M. Gladush, T. Anikushina, A. Golovanova, J. Kohler, and L. Kador, Nano Lett. **18**, 6129 (2018).
51. C. van Zanten, D. Melnikau, and A. G. Ryder, Journal of Fluorescence **31**, 835 (2021).
52. M. Sanaee, E. Sandberg, K. G. Ronquist, J. M. Morrell, J. Widengren, and K. Gallo, Small **18**, 2106241 (2022).
53. R. Szatanek, M. Baj-Krzyworzeka, J. Zimoch, M. Lekka, M. Siedlar, and J. Baran, Int. J. Mol. Sci. **18**, 1153 (2017).

# Ультракороткие импульсы в структурном анализе алмазных слоев с NV-центрами

Д. Н. Макаров<sup>1)</sup>, М. К. Есеев, Е. С. Гусаревич, К. А. Макарова, М. С. Борисов

Северный (Арктический) федеральный университет имени М. В. Ломоносова, 163002 Архангельск, Россия

Поступила в редакцию 20 сентября 2024 г.

После переработки 25 сентября 2024 г.

Принята к публикации 26 сентября 2024 г.

Рентгеноструктурный анализ является одним из основных методов определения строения кристаллических структур с использованием как непрерывного рентгеновского излучения, так и ультракоротких импульсов. Обычно ультракороткие импульсы применяются для наблюдения динамических процессов в атомных и молекулярных системах. В данной работе показано, что ультракоротких импульсов может быть еще одно важное применение – это определение межплоскостного расстояния в слоях алмаза с NV-центрами, расстояние между которыми может составлять всего несколько ангстрем. Полученные результаты имеют хорошую перспективу расширения на более сложные структуры и как итог развития – это новый метод 3D томографии с ангстремным разрешением.

DOI: 10.31857/S0370274X24110106, EDN: UENTHE

**1. Введение.** Рентгеноструктурный анализ вещества — это один из важнейших методов изучения структуры и свойств вещества, в основе которого лежит использование рентгеновской дифракции [1–6]. Большинство кристаллических структур и многие молекулы были открыты именно этим методом. Использование ультракоротких импульсов (УКИ) в рентгеновском диапазоне частот в настоящее время приобретает большую актуальность [1–3] в методах рентгеноструктурного анализа. Обычно теорию рентгеновской дифракции на различных периодических и сложных структурах представляют как рассеяние плоских волн бесконечной длительности во времени [7, 8]. При использовании УКИ в теории рентгеновской дифракции длительность импульса может давать существенный вклад [9–21], что необходимо учитывать в рентгеноструктурном анализе вещества. В первую очередь, такому развитию физики сверхкоротких импульсов способствовало появление новых установок, генерирующих такие импульсы [9, 20–25]. Одной из основных особенностей УКИ в рентгеноструктурном анализе является их использование для визуализации сверхбыстрых процессов, там, где характерное время такого процесса во много раз больше длительности УКИ [3, 21, 24]. Также недавно в работах [15, 16, 26–28] была выявлена одна из интересных особенностей взаимодействия УКИ с различными структурами, которая ранее не учитывалась в рентгеноструктурном анализе. Эта особен-

ность определяется областью когерентного рассеяния, сосредоточенной внутри пространственной области импульса протяженностью  $c\tau$ , где  $\tau$  – это длительность УКИ. Это означает, что все атомы вещества, которые попадают в пространственную область  $L_\tau \sim c\tau$ , взаимодействуют с этим импульсом таким образом, что не имеет значения, является ли импульс сверхкоротким или непрерывным, т.е. дифракция при рассеянии УКИ может происходить на всех атомах, находящихся внутри  $L_\tau$ . В противном случае дифракция при рассеянии УКИ от всех атомов, не попавших внутрь области  $L_\tau$ , не происходит. Из этого следует, что, варьируя параметр длительности импульса  $\tau$ , можно изменять дифракционные пики на одинаковых периодических структурах. Таким образом, варьируя параметр  $\tau$ , можно обнаружить изменение дифракционных пиков и, оценив характер их изменения, определить изменение периодичности структуры. Наиболее простой пример, где такие изменения могут появиться – это две плоские структуры, разделенные между собой расстоянием  $L$ . Одним из практических важных случаев такой структуры являются алмазные пластины с NV-центрами, расположенные на близком расстоянии (всего в несколько атомов) друг от друга. Добавим, что выбор алмазных пластин с NV-центрами в данной работе обусловлен их возможным производством и перспективой использования в различных областях микроэлектроники и квантовых технологий [29–31]. При более глубокой разработке этой идеи можно создать метод 3D-томографии со сверхвысоким пространствен-

<sup>1)</sup>e-mail: makarovd0608@yandex.ru

ным разрешением. В данной работе мы разрабатываем метод определения межплоскостного расстояния в алмазных пластинах с NV-центрами с ангстремным пространственным разрешением. Как известно, в настоящее время существуют методы 3D-томографии с нанометровым разрешением (десятки и сотни нанометров) [32–35] и предлагаемый метод может не только дополнить существующие методы, но и проложить новый путь к более высокому пространственному разрешению.

**2. Рассеяние на алмазных пластинах с NV-центрами.** Рассеяние УКИ на многоатомной системе, состоящей из различных атомов и их пространственного расположения, рассматривалось в работах [15, 26–28]. В этих работах было показано, что при использовании приближения внезапных возмущений [26] можно получить выражения для расчета спектров рассеяния с учетом длительности падающего УКИ [15] и разработанная теория может быть использована в рентгеноструктурном анализе [27, 28]. Обычно считается, что приближение внезапных возмущений хорошо работает, когда длительность импульса  $\tau$  во много раз меньше характерных времен самой системы  $\tau_a$ , т.е. при  $\tau \ll \tau_a$ , но в случае рентгеновских УКИ это приближение работает и для более длительных импульсов, где  $\tau \sim \tau_a$ , и даже при  $\tau \gg \tau_a$ , хотя для этого необходимо, чтобы несущая частота УКИ  $\omega_0$  была  $\omega_0 \gg 1/\tau_a$ , см. [26]. Далее везде будет использоваться атомная система единиц:  $\hbar = 1$ ,  $|e| = 1$ ,  $m_e = 1$ , где  $\hbar$  – приведенная постоянная Планка,  $e$  – заряд электрона,  $m_e$  – масса электрона.

Поскольку мы рассматриваем рентгеновские УКИ, то для расчетов необходимо использовать пространственно-неоднородный импульс, т.е. напряженность электромагнитного поля в общем виде  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 h(t - \mathbf{n}_0 \mathbf{r}/c)$ , где  $\mathbf{E}_0$  – амплитуда поля, а  $h(t - \mathbf{n}_0 \mathbf{r}/c)$  – произвольная функция, определяющая форму УКИ,  $c$  – скорость света (в а.е.  $c \approx 137$ ). В этом случае спектр рассеяния (рассеянная энергия в телесный угол) будет выражаться в виде

$$\frac{d\varepsilon}{d\Omega_{\mathbf{k}}} = \frac{\tau [\mathbf{E}_0 \mathbf{n}]^2 \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{f}(x)|^2 dx}{(2\pi)^2 c^3} \left[ \sum_{i=1}^s N_{e,i} N_{A,i} (1 - |F_i|^2) + \sum_{i,j=1}^s \gamma_{i,j} N_{e,i} N_{e,j} F_i F_j^* \right],$$

$$\gamma_{i,j} = \sum_{Ai, A'j} e^{-i\mathbf{p}_0 \Delta \mathbf{R}_{Ai, A'j}} \frac{\int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{f}(x)|^2 e^{-ix\mathbf{p}_\tau \Delta \mathbf{R}_{Ai, A'j}} dx}{\int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{f}(x)|^2 dx}, \quad (1)$$

где  $\Delta \mathbf{R}_{Ai, A'j} = \mathbf{R}_{Ai} - \mathbf{R}_{A'j}$ , а  $\mathbf{R}_{Ai}$  – радиус-вектор, определяющий положение центра атома типа  $i$  и чис-

ло атомов  $Ai$  этого типа,  $s$  – это число различных типов атомов в рассматриваемой системе,  $N_{e,i}$  – число электронов в атомах типа  $i$ ,  $N_{A,i}$  – число атомов типа  $i$ ,  $\mathbf{p}_\tau = \frac{1}{c\tau}(\mathbf{n} - \mathbf{n}_0)$  и  $\mathbf{p}_0 = \frac{\omega_0}{c}(\mathbf{n} - \mathbf{n}_0)$  имеют смысл импульса отдачи на несущей частоте  $\omega_0$  при рассеянии УКИ,  $F_i = \frac{1}{N_{e,i}} \int \rho_{e,i}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{p}_0 \mathbf{r}} d^3 \mathbf{r}$  – формфактор атома типа  $i$  с электронной плотностью  $\rho_{e,i}(\mathbf{r})$ . Если форму УКИ представить в виде  $h = e^{-i(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \mathbf{r}/c)/\tau} f((t - \mathbf{n}_0 \mathbf{r}/c)/\tau)$ , где функция  $f$  определяет профиль УКИ (огибающую), тогда получаем  $\tilde{f}((\omega - \omega_0)\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\omega - \omega_0)\tau\eta} f(\eta) d\eta$  – преобразование Фурье функции  $f(\eta)$ .

Рассмотрим две алмазные пластины с NV-центрами, разделенные между собой расстоянием  $L$ , см. рис. 1. Для того, чтобы провести необходимые

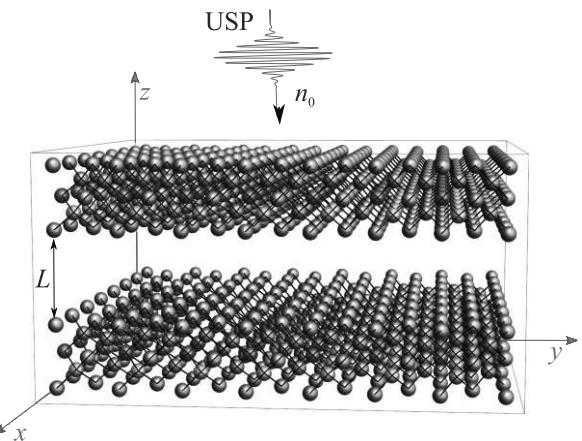


Рис. 1. (Цветной онлайн) Представлены две алмазные пластины с NV-центрами, расположенные друг от друга на расстоянии  $L = 5 \text{ \AA}$ . Каждая из пластин состоит из  $7 \times 7$  элементарных ячеек, в каждую из которых встроен один NV-центр. Фиолетовые шары – атомы азота, желтые шары – вакансии. УКИ падает на эту систему под некоторым углом к поверхности одной из пластин

расчеты, будем использовать модель независимых атомов. В этой модели все атомы состоят из отдельных нейтральных и невзаимодействующих друг с другом атомов. Несмотря на такое приближение эта модель достаточно точно описывает рассеяние на электронах, где центры электронной плотности расположены в ядрах атомов. Действительно, центры электронной плотности с учетом образования связей располагаются там же, где и центры ядер в этой модели. Это означает, что если проводить расчеты с учетом межатомных связей или без них (в модели независимых атомов), то информация, содержащаяся в спектрах о центрах электронной плотности, будет одинаковая. В результате можно

воспользоваться известной моделью распределения электронной плотности в атомах [36], где  $\rho_{e,i}(\mathbf{r}) = \frac{N_{e,i}}{4\pi r} \sum_{k=1}^3 A_{k,i} \alpha_{k,i}^2 e^{-\alpha_{k,i} r}$ , где  $A_{k,i}, \alpha_{k,i}$  – постоянные коэффициенты (для всех типов атомов с номером  $i$ ), определенные в [36]. Результатом является простое выражение для  $F_i = \sum_{k=1}^3 \frac{A_{k,i} \alpha_{k,i}^2}{p_0^2 + \alpha_{k,i}^2}$ . Для расчетов выбираем УКИ в виде гауссовой формы  $f((t - \mathbf{n}_0 \mathbf{r}/c)/\tau) = e^{-(t - \mathbf{n}_0 \mathbf{r}/c)/\tau^2}$ . Следует заметить, что выражение (1) можно использовать для любых форм УКИ и выбирать произвольно в зависимости от рассматриваемой задачи. Здесь будет выбрана гауссова форма УКИ, поскольку она хорошо известна и широко используется в теоретическом анализе [37]. Также для расчетов будем считать, что импульсы многоцикловые, т.е. число колебаний, входящих в УКИ, велико, т.е.  $\omega_0 \tau \gg 1$ . Следует добавить, что в случае  $\omega_0 \tau \gg 1$  интеграл по полю  $\int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) dt \rightarrow 0$  стремится к нулю. Таким образом, в случае многоциклового импульса получаем  $\tilde{f}((\omega - \omega_0)\tau) = \sqrt{\pi} e^{-(\tau(\omega - \omega_0))^2/4}$ , затем с помощью уравнений (1) получаем спектр в виде

$$\begin{aligned} \frac{d\varepsilon}{d\Omega_{\mathbf{k}}} &= \tau \frac{[\mathbf{E}_0 \mathbf{n}]^2}{2c^3 \sqrt{2\pi}} \left[ \sum_{i=1}^2 N_{e,i} N_{A,i} (1 - |F_i|^2) + \right. \\ &\quad \left. + \sum_{i,j=1}^2 \gamma_{i,j}(\mathbf{p}_0, \mathbf{p}_{\tau}) N_{e,i} N_{e,j} F_i F_j^* \right], \\ \gamma_{i,j}(\mathbf{p}_0, \mathbf{p}_{\tau}) &= \sum_{Ai, A'j} e^{-i\mathbf{p}_0 \Delta \mathbf{R}_{Ai, Aj}} e^{-\frac{1}{2}(\mathbf{p}_{\tau} \Delta \mathbf{R}_{Ai, Aj})^2}. \end{aligned} \quad (2)$$

Суммирование в выражении (2) идет по двум типам атомов – это углерод C и азот N, входящий в состав NV-центра. Можно увидеть из выражения (2), что параметр длительности УКИ  $\tau$  входит в параметр  $\gamma_{i,j}(\mathbf{p}_0, \mathbf{p}_{\tau})$  и если  $\tau \rightarrow \infty$ , и учитывать только когерентный член в рассеянии, то можно получить известное выражение для рассеяния длинных (монохроматических) рентгеновских лучей, которое используется в рентгеноструктурном анализе [1, 4, 16]. Также видно, что, варьируя параметр  $\tau$ , можно менять дифракционную картину, и особенно это будет заметно там, где есть неоднородности в кристаллической решетке. Действительно, если рассмотреть случай, когда кристалл идеальный, то длительность импульса  $\tau$  не будет существенно менять дифракционную картину, так как рассеяние от атомов, находящихся внутри области  $\sim c\tau$ , при варьировании параметра  $\tau$  будет давать одну и ту же дифракционную картину, но с различиями в амплитуде. Если рассматривать случай, когда в структуре кристалла появляется нерегулярность, то в этом случае в про-

странственной области УКИ  $c\tau$  при варьировании  $\tau$  дифракция может идти от атомов регулярной и нерегулярной области, что даст новую дифракционную картину. Простейший практически полезный пример появления нерегулярности в кристалле – это его разрыв. Например, рассмотрим случай, когда имеются две одинаковые алмазные пластины с NV-центрами (см. рис. 1), расположенные близко друг к другу, так что при их соединении получится один кристалл. Если рассмотреть в этом случае импульс с пространственной длительностью  $c\tau \gg L$ , то рассеяние на таких кристаллах будет происходить так, как будто оно исходит от одного кристалла, и нерегулярность будет незаметна. Если же  $c\tau \sim L$  или  $c\tau \ll L$ , то спектры рассеяния от электронов в атомах первого и второго кристаллов уже не будут когерентно рассеянными, т.е. не будут складываться. Такая ситуация приведет к резкому уменьшению дифракционных пиков и изменению дифракционной картины. В итоге, варьируя параметр  $\tau$ , можно увидеть изменения дифракционной картины, а значит, можно определить размер области между кристаллами, который будет примерно равен  $c\tau$ .

Далее проведем расчеты спектров рассеяния на алмазных пластинах с NV-центрами, представленными на рис. 1, используя выражение (2). По результатам расчетов представим методику определения толщины  $L$  между 2 алмазными пластинами с NV-центрами. Выберем падающий импульс (в направлении  $\mathbf{n}_0$ ), направленный на одну из сторон алмазной пластины, как на рис. 1. Расстояние между пластинами будем считать равным 5 Å, а энергию падающего фотона на несущей частоте  $\hbar\omega_0 = 19$  кэВ. Добавим, что выбор энергии в 19 кэВ был случаен и главное, чтобы энергия фотонов была в рентгеновском диапазоне частот и выполнялось условие многоциклового импульса. Поскольку нас интересуют дифракционные максимумы в зависимости от  $\tau$ , то проведем расчеты для различных значений  $\tau$  и построим 2D контурный график для этих значений. Следует добавить, что наиболее удобная характеристика для расчетов – это не спектр рассеяния, а  $N_{\tau} = [\frac{1}{\tau} \frac{d\varepsilon}{d\Omega_{\mathbf{k}}}]_{\text{norm}}$ , где  $[\dots]_{\text{norm}}$  – это нормировка на единицу, т.е. делится на максимальное значение  $\frac{1}{\tau} \frac{d\varepsilon}{d\Omega_{\mathbf{k}}}$ . Действительно, в случае монохроматического падающего излучения  $\frac{d\varepsilon}{d\Omega_{\mathbf{k}}} \sim \tau$  и выражение  $\frac{1}{\tau} \frac{d\varepsilon}{d\Omega_{\mathbf{k}}}$  будет постоянной, что удобно для анализа. Нормировка на единицу нужна для простоты, поскольку для анализа не нужны абсолютные значения  $\frac{1}{\tau} \frac{d\varepsilon}{d\Omega_{\mathbf{k}}}$ , а нужно увидеть только изменение дифракционной картины, по которой можно будет судить о межплоскостном расстоянии. Результаты расчетов представлены на рис. 2.

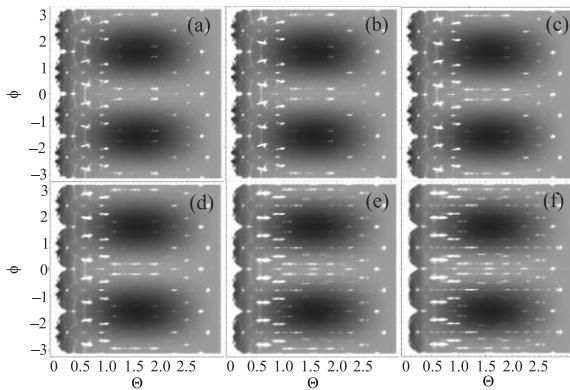


Рис. 2. (Цветной онлайн) Представлены 2D контурные карты величины  $N_\tau$  в сферической системе координат, где  $\phi$  и  $\theta$  – это азимутальный и полярный углы соответственно. Расчеты приведены на рисунках: (а) – при  $c\tau = \infty$ ; (б) – при  $c\tau = 10 \text{ \AA}$ ; (в) – при  $c\tau = 5 \text{ \AA}$ ; (д) – при  $c\tau = 3.5 \text{ \AA}$ ; (е) – при  $c\tau = 2 \text{ \AA}$ , (ж) при  $c\tau = 1 \text{ \AA}$

Можно увидеть, что отличия в дифракционных картинах начинают появляться при  $c\tau \approx 5 \text{ \AA}$ , что соответствует выбранному нами межплоскостному расстоянию. Несмотря на это, четко определить границу, анализируя рис. 2, тяжело. В первую очередь это связано с тем, что каждый из дифракционных пиков (белые пятна на рис. 2) в зависимости от  $\tau$  меняется не одинаково, но в целом при  $c\tau \approx 5 \text{ \AA}$  наблюдается общее изменение дифракционных пиков. Из этого анализа следует, что необходимо найти некоторую усредненную величину  $N_\tau$  при заданном  $\tau$ , причем усреднение должно учитывать все дифракционные пики. Такой усредненной величиной, имеющей физический смысл, может быть полная расеянная энергия, т.е. необходимо проинтегрировать по всему телесному углу спектр рассеяния. Таким образом, введем еще одну величину  $\bar{N}_\tau = [\varepsilon/\tau]_{\text{норм}}$  ( $\varepsilon = \int \frac{d\varepsilon}{d\Omega_k} d\Omega_k$ ), где  $[\dots]_{\text{норм}}$  – это нормировка в виде  $\bar{N}_\tau = (\varepsilon/\tau) / (\varepsilon/\tau)_{\tau \rightarrow \infty}$ . Действительно, в случае монохроматического ( $\tau \rightarrow \infty$ ) падающего излучения  $\varepsilon \sim \tau$  и выражение  $\varepsilon/\tau$  будет постоянной, что удобно для анализа. Нормировка на единицу при  $\tau \rightarrow \infty$  также нужна для простоты, поскольку для анализа не нужны абсолютные значения  $\varepsilon/\tau$ , а нужно увидеть только изменение энергии рассеяния, по которой можно будет судить о межплоскостном расстоянии.

Проведем аналогичные расчеты и выберем падающий импульс  $\mathbf{n}_0$  не только перпендикулярно плоскости кристалла, но и еще в 3-х направлениях, а именно в системе отсчета, показанной на рис. 1, – это углы  $\theta_0 = 0; \theta_0 = \pi/6; \theta_0 = \pi/4; \theta_0 = \pi/3$  при  $\phi_0 = 0$  ( $\theta_0$  и  $\phi_0$  – полярный и азимутальный угол в сферической системе координат). Результаты расчетов пред-

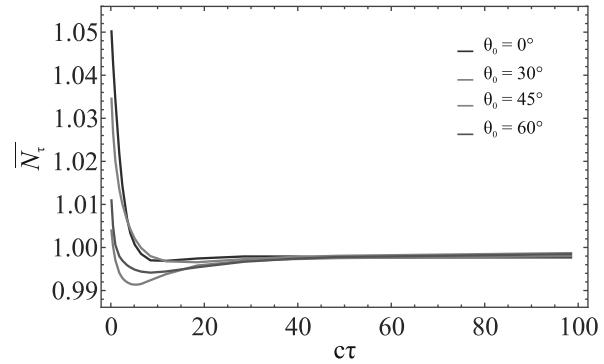


Рис. 3. (Цветной онлайн) На рисунке показано изменение  $\bar{N}_\tau$  в зависимости от длительности импульса  $c\tau$  для 4-х углов падения на плоскость алмаза

ставлены на рис. 3. Можно увидеть из рис. 3, что при  $c\tau \approx 10$  (что соответствует примерно  $5 \text{ \AA}$ ) появляется изменение в величине  $\bar{N}_\tau$ . Следует добавить, что изменение в  $\bar{N}_\tau$  при  $c\tau \approx 10$  появляется не только при прямом угле падения импульса, но и при всех других. Это вполне объяснимо, поскольку область  $c\tau$ , где может происходить когерентное рассеяние, не имеет выделенного направления, хотя дифракционная картина и зависит от углов падения на объект исследования.

При анализе двух представленных методов определения межплоскостного расстояния нет четкой границы, где можно было бы считать  $c\tau = L$ , здесь всегда получается  $c\tau \approx L$ . Это вполне ясно и обусловлено тем, что мы выбрали форму УКИ как гауссовский импульс, форма которого не имеет четких границ. Это означает, что область когерентного рассеяния  $c\tau$  не является четкой, а примерной. С другой стороны, выбрав УКИ другой формы, где такая граница будет достаточно четкой, например, как у тета-функции Хевисайда, можно получить более точные критерии межплоскостного расстояния, т.е. когда  $c\tau = L$ . Выбор различных форм реальных импульсов УКИ таким образом, чтобы  $c\tau$  стремился именно к  $L$ , может стать интересным теоретическим направлением для изучения данной проблемы. Несмотря на это, можно использовать и импульсы, имеющие гладкую огибающую, но в этом случае необходимо определить, что является межплоскостным расстоянием при графическом анализе. В представленном случае  $c\tau$  можно считать равным  $L$ , когда  $L = \int_0^\infty \frac{|\bar{N}_\tau - \bar{N}_{\tau,\text{рег}}|}{[(\bar{N}_\tau - \bar{N}_{\tau,\text{рег}})_{\text{ макс}}]} d(c\tau)$ , где  $\bar{N}_{\tau,\text{рег}}$  – та же функция, что и ранее, но для регулярной структуры, т.е. структуры без разрывов. Такой выбор  $L$  вполне естественный, поскольку  $\int_0^\infty \frac{|\bar{N}_\tau - \bar{N}_{\tau,\text{рег}}|}{[(\bar{N}_\tau - \bar{N}_{\tau,\text{рег}})_{\text{ макс}}]} d(c\tau)$  определяет площадь под графиком, отвечающей за изме-

нение рассеянной энергии за счет нерегулярности кристаллической структуры (при регулярной – изменения не будет). Добавим, что в этом выражении  $\overline{N}_{\tau \rightarrow 0, \text{reg}} = \overline{N}_{\tau \rightarrow 0}$  и  $\overline{N}_{\tau \rightarrow \infty, \text{reg}} = \overline{N}_{\tau \rightarrow \infty}$  (см. выражение (2)). Нами были проведены такие расчеты и, действительно,  $L$  была близка к 5 Å с точностью до 5 %.

**3. Заключение.** В заключении можно сказать, что здесь была развита методика определения межплоскостного расстояния с ангстремной точностью в пластинках алмаза с NV-центрами. Очевидно, что данная теория будет применима не только для алмазов с NV-центрами, но и для любых других веществ, обладающих кристаллической структурой. Разработанная методика позволяет с хорошей точностью находить расстояния между пластинами по спектрам рассеяния УКИ,арьируя параметр длительности импульса  $\tau$ . Данная методика может послужить основой для дальнейшего исследования проблемы 3D-томографии с ангстремной точностью в кристаллических структурах.

**Финансирование работы.** Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда № 23-12-20014.

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

1. N. Jones, Nature **505**(7485), 602 (2014).
2. A. Benediktovich, I. Feranchuk, and A. Ulyanenkov, *Theoretical Concepts of X-Ray Nanoscale Analysis*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2014).
3. M. K. Eseev, V. I. Matveev, and D. N. Makarov, JETP Lett. **114**, 387 2021.
4. C. Suryanarayana and M. Grant Norton, *X-Ray Diffraction: A Practical Approach*, Springer Science + Business Media, N.Y. (1998).
5. F. Canova Luca Poletto, *Optical Technologies for Extreme-Ultraviolet and Soft X-ray Coherent Sources*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2015).
6. U. Pietsch, V. Holy, and Baumbach, *High-Resolution X-Ray Scattering*, Springer Science + Business Media, N.Y. (2004).
7. N. W. Ashcroft, *Mermin ND*, Solid State Physics, Saunders College, N.Y. (1979).
8. R. W. James, *The Optical Principles of the Diffraction of X-rays (Ox Bow)*, Woodbridge, Connecticut (1982).
9. G. Dixit, O. Vendrell, and R. Santra, PNAS **109**(29), 11636 (2012).
10. N. E. Henriksen and K. B. Moller, J. Phys. Chem. B **112**, 558 (2008).
11. V. A. Astapenko and E. V. Sakhno, Appl. Phys. B **126**, 23 (2020).
12. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, V. S. Lisitsa, X. D. Li, and E. S. Khramov, Contrib. Plasma Phys. **59**, 189 (2019).
13. V. A. Astapenko, Physics Letters, Section A: General, Atomic and Solid State Physics **483**, 129050 (2023).
14. V. A. Astapenko, N. N. Moroz, and M. I. Mutafyan, JETP Lett. **108**(3), 165 (2018).
15. D. N. Makarov, Opt. Express **27**(22), 31989 (2019).
16. M. Eseev, K. Makarova, and D. Makarov, Crystals **12**, 1417 (2022).
17. K. B. Moller and N. E. Henriksen, Struc. Bond. **142**, 185 (2012).
18. S. Tanaka, V. Chernyak, and S. Mukamel, Phys. Rev. A **63**, 63405 (2001).
19. G. Dixit, J. M. Slowik, and R. Santra, Phys. Rev. Lett. **110**, 137403 (2013).
20. P. M. Kraus, M. Zurch, S. K. Cushing, D. M. Neumark, and S. R. Leone, Nat. Rev. Chem. **2**, 82 (2018).
21. P. Peng, C. Marceau, and D. M. Villeneuve, Nat. Rev. Phys. **1**, 144 (2019).
22. F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009).
23. F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, and M. Nisoli, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **49**, 062001 (2016).
24. R. Schoenlein, T. Elsaesser, K. Holldack, Z. Huang, H. Kapteyn, M. Murnane, and M. Woerner, Philos. Trans. R. Soc. A **377**, 20180384 (2019).
25. J. Duris, S. Li, T. Driver et al. (Collaboration), Nat. Photonics **14**, 30 (2020).
26. D. N. Makarov, M. K. Eseev, and K. A. Makarova, Opt. Lett. **44**(12), 3042 (2019).
27. D. N. Makarov, K. A. Makarova, and A. A. Kharlamova, Sci. Rep. **12**, 1 (2022).
28. D. Makarov and A. Kharlamova, Int. J. Mol. Sci. **24**, 15574 (2023).
29. J. Barry, J. Schloss, E. Bauch, M. Turner, C. Hart, L. Pham, and R. Walsworth, Rev. Mod. Phys. **92**, 015004 (2020).
30. M. Mrozek, M. Schabikowski, M. Mitura-Nowak, J. Lekki, M. Marsza, A. Wojciechowski, and W. Gawlik, Materials **14**, 833 (2021).
31. V. Popov, S. Podlesny, I. Kartashov, I. Kupriyanov, and Y. Palyanov, Diam. Relat. Mater. **120**, 108675 (2021).
32. A. Takeuchi, K. Uesugi, H. Takano, and Y. Suzuki, Rev. Sci. Instrum. **73**, 4246 (2002).
33. A. Tkachuk, F. Duewer, H. Cui, M. Feser, S. Wang, and W. Yun, Z. Kristallogr. **222**, 650 (2007).
34. P. J. Withers, Mater. Today **10**(12), 26 (2007).
35. M. Du, Y. S. G. Nashed, S. Kandel, D. Gursoy, and Ch. Jacobsen, Sci. Adv. **6**(13), eaay3700 (2020).
36. F. Salvat, J. D. Martnez, R. Mayol, and J. Parellada, Phys. Rev. A **36**(2), 467 (1987).
37. Q. Lin, J. Zheng, and W. Becker, Phys. Rev. Lett. **97**, 253902 (2006).

## Квантовые корреляции в коллективных стратегиях взаимного поиска/антипоиска для трех партнеров

А. М. Ростом<sup>+</sup>\*, В. А. Томилин<sup>+1)</sup>, Л. В. Ильичев<sup>+</sup>

<sup>+</sup> Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

\* Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 29 июля 2024 г.

После переработки 24 сентября 2024 г.

Принята к публикации 26 сентября 2024 г.

Рассматриваются модели стратегий совместного случайного блуждания трех участников на бесконечной плоскости. Они лишены связи, внешних ориентиров и какой-либо информации о взаимном положении, но могут использовать ресурс распределенной между ними трехчастичной квантовой спиновой спутанности в рамках предварительно согласованного протокола. Хотя в среднем всегда происходит взаимное удаление участников блуждания, выбором деталей протокола можно увеличить или уменьшить его темп.

DOI: 10.31857/S0370274X24110115, EDN: SEKAPW

**Введение.** Квантовые подходы к задачам обработки информации составляют основное содержание так называемой “второй квантовой революции”. В приложении к проблемам, решаемым при заданных ресурсах (например, за ограниченное время) с некоторой неединичной вероятностью, квантовые стратегии способны зачастую существенно увеличить шансы на успех. Во многих случаях необходимым ингредиентом в квантовых стратегиях оказывается запутанность [1] – специфические квантовые корреляции между частями единой системы. Изучение роли запутанности в сценариях решения задач коллективом участников составляет предмет так называемых нелокальных квантовых игр [2, 3], основным условием которых является невозможность обмена информацией между участниками после начала игры.

В ряде случаев разнесенность пространственных областей, где проводятся измерения, принципиально важна. Например, при реализации некоторой коллективной стратегии, когда каждому участнику необходимо осуществлять выбор своего действия из ряда возможных в отсутствие связи с партнерами. В этой ситуации исходы специально подобранных измерений над фрагментами единой системы, которыми заранее обзавелись участники, могут оказаться цennymi инструкциями при осуществлении выборов, что повысит вероятность достижения цели стратегии [4]. Более сильные квантовые корреляции при-

водят к большей согласованности действий и, соответственно, большей вероятности успеха. В [5, 6] рассмотрена задача взаимного поиска двух участников, находящихся на противоположных полюсах сферы. Каждый из них выбирает путь к противоположному полюсу по одной из трех заранее определенных больших окружностей. Выбор окружностей осуществляется каждым участником независимо и случайно, однако направление обхода выбирается в зависимости от исхода измерения поляризации одного фотона из максимально запутанной пары. При этом угол измерения поляризации зависит от предшествовавшего выбора пути. Показано, что это приводит к повышению вероятности встречи с 7/9 в классическом случае до 5/6. Похожая задача, но в плоской геометрии, рассмотрена в [7]. Два участника осуществляют совместное дискретное случайное блуждание на плоскости, выбирая направление каждого смещения случайным образом из 16 возможных направлений. При этом распределение вероятности выбора не полностью случайно, а зависит от расстояния до фиксированной точки на плоскости. От результата квантового измерения зависит лишь то, останется ли участник в покое или сделает движение в выбранном направлении. Преимущество квантовой стратегии показано и в этом случае, однако лишь в рамках численного эксперимента.

В работе [8] был рассмотрен квантовый выигрыш в стратегиях уменьшения или увеличения темпов взаимного удаления при случайном блуждании двух партнеров, А и В, на бесконечной

<sup>1)</sup>e-mail: 8342tomilin@mail.ru

плоскости. Интуитивно ясно, что, если они имеют цель увеличить/уменьшить шансы случайного сближения/удаления, т.е. осуществляют взаимный поиск/антипоиск, данные стратегии могут оказаться полезными. По предположению партнеры лишены возможности общения и лишены общих ориентиров в пространстве, однако имеют ресурс корреляций в виде запаса пронумерованных пар частиц со спином  $1/2$ , причем каждый партнер обладает только одной частицей из каждой пары. Отсутствие любых общих ориентиров делает естественным требование равноправия всех направлений в плоскости блуждания, что, в свою очередь, налагает дополнительное требование на состояния пар частиц – они должны быть инвариантны относительно любых поворотов в пространстве. Естественным выбором в такой ситуации является синглетное состояние  $|\Psi_0\rangle$ . А и В руководствуются исходами измерений над своими частицами при выборе направлений шагов случайного блуждания. А именно, выбрав произвольные направления  $\mathbf{n}_A$  и  $\mathbf{n}_B$ , партнеры измеряют удвоенные проекции спинов имеющихся у них частиц вдоль выбранных направлений. Получив исходы  $\sigma_A$  и  $\sigma_B$  (равные 1 или  $-1$ ), А и В смещаются в пространстве на  $\sigma_A \mathbf{n}_A l$  и  $\sigma_B \mathbf{n}_B l$  соответственно, где  $l$  – стандартная длина шага. Дальнейшие шаги партнеров осуществляются по тому же самому алгоритму, т.е. с проведением измерений над частицами из следующей по порядку запутанной пары. В [8] показано, что средний квадрат расстояния между А и В после очередного шага при блуждании по плоскости

$$\langle r'^2 \rangle_+ = r^2 + l^2. \quad (1)$$

Здесь  $r$  – расстояние между партнерами до осуществления шага; усреднение осуществлено по случайным направлениям  $\mathbf{n}_A$  и  $\mathbf{n}_B$  и по распределению вероятности исходов  $\sigma_A$  и  $\sigma_B$ . Правая часть оказывается меньше, чем в ситуации с отсутствием всяких корреляций между исходами (т.е. если состояния пар частиц максимально смешанные):

$$\langle r'^2 \rangle_0 = r^2 + 2l^2. \quad (2)$$

В среднем А и В удаляются друг от друга более медленно при использовании спиновых корреляций синглетного состояния. Как показано в [8], модификация квантовой стратегии позволяет в случае необходимости ускорить взаимное удаление партнеров (в сравнении с (2)). Для этого партнер В (для определенности) должен смещаться на  $-\sigma_B \mathbf{n}_B l$ . Вместо (1) имеем

$$\langle r'^2 \rangle_- = r^2 + 3l^2. \quad (3)$$

Эффект использования корреляций спинов синглетного состояния, являющегося максимально запутанным [1], при сравнении (1) и (3) с (2) очевиден.

Представляет интерес сравнение полученных результатов со случаем, когда в распоряжении партнеров находится ресурс классических корреляций. Под этим термином здесь и далее в статье мы подразумеваем корреляции спинов частиц в незапутанном состоянии пары как антипод квантовых корреляций, демонстрируемых запутанными состояниями. Для случая пар частиц со спином  $1/2$  наиболее общим классом состояний, инвариантных относительно вращений, являются состояния Вернера [9]:

$$\hat{\rho}_W(p) = \frac{1-p}{4} \hat{1}_A \otimes \hat{1}_B + p |\Psi_0\rangle\langle\Psi_0|. \quad (4)$$

Синглетному состоянию отвечает случай  $p = 1$  – хрестоматийный пример максимально запутанного состояния. При  $p \leq 1/3$  это состояние не является запутанным, т.е. представимо как взвешенные комбинации факторизованных и в общем случае смешанных состояний частиц [1]. Границное значение  $p = 1/3$  определяет незапутанное состояние Вернера, максимально близкое к синглетному и, следовательно, даваемые им корреляции самые сильные среди классических. В этом состоянии вместо (1) и (3) мы получаем  $\langle r'^2 \rangle_+ = r^2 + 5l^2/3$  и  $\langle r'^2 \rangle_- = r^2 + 7l^2/3$ .

Соотношения (1) и (3) получены в рамках простейшего подхода к описанию случайного блуждания двух участников “игр” взаимного поиска и антипоиска. Цель настоящей работы – рассмотрение соответствующих стратегий для трех партнеров. Появление еще одного участника существенно меняет и усложняет рассмотрение, делая его более интересным. Будут найдены соотношения, аналогичные (1)–(3) и открывающие перспективы дальнейших обобщений при расширении коллектива участников “игры”.

**Модели стратегий.** В ситуации с двумя участниками они обзаводились ресурсом в виде упорядоченных массивов разделенных синглетных пар частиц со спином  $1/2$ . Для случая трех участников, А, В и С, необходимы синглетные тройки частиц со спином 1:

$$\begin{aligned} |\Psi_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{6}} & \left[ | -1 \rangle_A \otimes | 0 \rangle_B \otimes | 1 \rangle_C + \right. \\ & + | 0 \rangle_A \otimes | 1 \rangle_B \otimes | -1 \rangle_C + | 1 \rangle_A \otimes | -1 \rangle_B \otimes | 0 \rangle_C - (5) \\ & - | 1 \rangle_A \otimes | 0 \rangle_B \otimes | -1 \rangle_C - | 0 \rangle_A \otimes | -1 \rangle_B \otimes | 1 \rangle_C - \\ & \left. - | -1 \rangle_A \otimes | 1 \rangle_B \otimes | 0 \rangle_C \right]. \end{aligned}$$

Здесь  $|\sigma\rangle$  ( $\sigma = 0, \pm 1$ ) – состояния частиц с проекцией спина  $\sigma$  вдоль любого, но единого для всех трех частиц направления. Нижние индексы у кет-символов показывают, у какого партнера находится соответствующая частица. При измерении всеми партнерами проекций спинов их частиц вдоль свободно выбранных направлений  $\mathbf{n}_A$ ,  $\mathbf{n}_B$  и  $\mathbf{n}_C$  статистика получаемых исходов дается распределением вероятностей

$$p(\sigma_A, \sigma_B, \sigma_C | \mathbf{n}_A, \mathbf{n}_B, \mathbf{n}_C) = \langle \Psi_0 | \hat{P}_{\sigma_A}(\mathbf{n}_A) \otimes \hat{P}_{\sigma_B}(\mathbf{n}_B) \otimes \hat{P}_{\sigma_C}(\mathbf{n}_C) | \Psi_0 \rangle, \quad (6)$$

где

$$\hat{P}_\sigma(\mathbf{n}) = 1 - \sigma^2 + \frac{1}{2}\sigma(\mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{S}}) + \left(\frac{3}{2}\sigma^2 - 1\right)(\mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{S}})^2 \quad (7)$$

– проектор на собственное состояние оператора  $\mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{S}}$  ( $\hat{\mathbf{S}}$  – спин частицы) с собственным значением  $\sigma$ . При выводе (7) использована универсальная связь произведения трех операторных проекций единичного квантового углового момента на оси ортонормированного репера с комбинацией слагаемых, линейных и квадратичных по проекциям. Соответствующее соотношение приведено в Приложении, как и явная громоздкая форма вероятности (6).

Суммирование по исходам одного из измерений (для определенности по исходам  $\sigma_C$ ) приводит к парным распределениям вида

$$p(\sigma_A, \sigma_B | \mathbf{n}_A, \mathbf{n}_B) = \frac{1}{6} - \frac{1}{12}\left(\sigma_A^2 + \sigma_B^2\right) + \frac{1}{8}\sigma_A^2\sigma_B^2 - \frac{1}{12}\sigma_A\sigma_B(\mathbf{n}_A \cdot \mathbf{n}_B) - \frac{1}{6}\left(\frac{3}{2}\sigma_A^2 - 1\right)\left(\frac{3}{2}\sigma_B^2 - 1\right)(\mathbf{n}_A \cdot \mathbf{n}_B)^2. \quad (8)$$

Еще одно суммирование приводит к тривиальным однородным распределениям исходов измерений, рассматриваемых по отдельности:

$$p(\sigma_A | \mathbf{n}_A) = p(\sigma_B | \mathbf{n}_B) = p(\sigma_C | \mathbf{n}_C) = \frac{1}{3}. \quad (9)$$

Однородность распределений обусловлена инвариантностью состояния (5) относительно любых пространственных поворотов.

Знание парных распределений (8) достаточно для получения соотношений типа (1)–(3). Их комбинация позволяет связать среднее значение суммы квадратов расстояний между всеми партнерами (естественное обобщение случая с двумя партнерами)

$$|\mathbf{r}_A - \mathbf{r}_B|^2 + |\mathbf{r}_B - \mathbf{r}_C|^2 + |\mathbf{r}_C - \mathbf{r}_A|^2 \quad (10)$$

после очередного совместного шага с ее исходным значением. Заметим, однако, что при переходе от полного распределения (6) к парным распределениям (8) была утрачена некоторая информация о трехчастичной спутанности. Чтобы не терять эту информацию, желательно найти способ характеризовать взаимное движение всех трех участников “игры”, отражающий трехчастичные корреляции. Для этой цели годится площадь треугольника, образованного точками расположения участников А, В и С. Этот выбор подходит и для случая движения игроков в трехмерном пространстве. Формула Герона Александрийского

$$16S^2 = (2b^2c^2 - a^4) + (2c^2a^2 - b^4) + (2a^2b^2 - c^4) \quad (11)$$

связывает квадрат площади треугольника с длинами его сторон  $a \doteq |\mathbf{r}_B - \mathbf{r}_C|$ ,  $b \doteq |\mathbf{r}_C - \mathbf{r}_A|$  и  $c \doteq |\mathbf{r}_A - \mathbf{r}_B|$ .

Все три участника осуществляют измерения проекций спинов их частиц (находящихся в состоянии (5)) вдоль произвольно выбранных направлений  $\mathbf{n}_A$ ,  $\mathbf{n}_B$  и  $\mathbf{n}_C$  на плоскости. Получив исходы  $\sigma_A, \sigma_B, \sigma_C$ , участники смещаются. Новый треугольник имеет стороны  $a' \doteq |\mathbf{r}_B + l\sigma_B \mathbf{n}_B - \mathbf{r}_C - l\sigma_C \mathbf{n}_C|$ ,  $b' \doteq |\mathbf{r}_C + l\sigma_C \mathbf{n}_C - \mathbf{r}_A - l\sigma_A \mathbf{n}_A|$  и  $c' \doteq |\mathbf{r}_A + l\sigma_A \mathbf{n}_A - \mathbf{r}_B - l\sigma_B \mathbf{n}_B|$ . Площадь нового треугольника оказывается функцией направлений смещений и исходов измерений:

$$S' = S(\sigma_A \mathbf{n}_A, \sigma_B \mathbf{n}_B, \sigma_C \mathbf{n}_C). \quad (12)$$

Усреднение квадрата площади производится по распределению (6) с учетом полной случайности выбора направлений участниками “игры”:

$$\begin{aligned} & \langle S'^2 \rangle = \\ & \sum_{\sigma_A=0,\pm 1} \sum_{\sigma_B=0,\pm 1} \sum_{\sigma_C=0,\pm 1} \iiint S^2(\sigma_A \mathbf{n}_A, \sigma_B \mathbf{n}_B, \sigma_C \mathbf{n}_C) \times \\ & \times p(\sigma_A, \sigma_B, \sigma_C | \mathbf{n}_A, \mathbf{n}_B, \mathbf{n}_C) \frac{d^2 \mathbf{n}_A}{2\pi} \frac{d^2 \mathbf{n}_B}{2\pi} \frac{d^2 \mathbf{n}_C}{2\pi}. \end{aligned} \quad (13)$$

Следует отметить, что первые слагаемые в круглых скобках правой части (11) требуют при своем усреднении знания полного распределения (6). В получаемом результате усреднения отражено трехчастичное спутывание.

Вычисление интеграла (13) дает

$$16\langle S'^2 \rangle - 16S^2 = \frac{15}{9}l^2(a^2 + b^2 + c^2) + \frac{153}{12}l^4. \quad (14)$$

Вид числовых коэффициентов в правой части выбран для удобства сравнения с результатами других стратегий. В случае полного отсутствия корреляций

под интегралом (13) вместо  $p(\sigma_A, \sigma_B, \sigma_C | \mathbf{n}_A, \mathbf{n}_B, \mathbf{n}_C)$  стоит  $p(\sigma_A | \mathbf{n}_A)p(\sigma_B | \mathbf{n}_B)p(\sigma_C | \mathbf{n}_C) = 1/27$ , что дает

$$16\langle S'^2 \rangle - 16S^2 = \frac{12}{9}l^2(a^2 + b^2 + c^2) + \frac{32}{12}l^4. \quad (15)$$

Сравнение (14) с этим нейтральным реперным вариантом обнаруживает увеличение темпа взаимного удаления участников “игры” за счет ресурса распределенной спутанности.

Существует стратегия уменьшения темпа рассредоточения и, как следствие, повышения вероятности случайного сближения партнеров. Ориентируясь на известный более простой случай двух участников, естественно ожидать, что для этого необходима замена  $\sigma$  на  $-\sigma$  при выборе направления смещения одним из участников. В то же время должна сохраниться симметрия участия в стратегии всех трех партнеров. Эти требования можно совместить, если по условиям стратегии A осуществляет замену  $\sigma_A$  на  $-\sigma_A$  на каждом шаге с номером 1(mod 3), В меняет  $\sigma_B$  на  $-\sigma_B$  на каждом шаге с номером 2(mod 3) и С, соответственно, меняет  $\sigma_C$  на  $-\sigma_C$  на каждом шаге с номером 0(mod 3). Случайно выбранный для рассмотрения шаг с равной вероятностью принадлежит к одному из трех возможных типов. Следовательно, в (13) должна быть осуществлена замена

$$\begin{aligned} & S^2(\sigma_A \mathbf{n}_A, \sigma_B \mathbf{n}_B, \sigma_C \mathbf{n}_C) \rightarrow \\ & \rightarrow \frac{1}{3}S^2(-\sigma_A \mathbf{n}_A, \sigma_B \mathbf{n}_B, \sigma_C \mathbf{n}_C) + \\ & + \frac{1}{3}S^2(\sigma_A \mathbf{n}_A, -\sigma_B \mathbf{n}_B, \sigma_C \mathbf{n}_C) + \\ & + \frac{1}{3}S^2(\sigma_A \mathbf{n}_A, \sigma_B \mathbf{n}_B, -\sigma_C \mathbf{n}_C). \end{aligned} \quad (16)$$

В результате получаем

$$16\langle S'^2 \rangle - 16S^2 = \frac{11}{9}l^2(a^2 + b^2 + c^2) + \frac{25}{12}l^4. \quad (17)$$

Взаимное удаление участников оказывается в среднем замедленным в сравнении с реперным вариантом (15).

**Обсуждение.** Мы показали, что, как и в случае двух участников, существуют стратегии увеличения и уменьшения среднего темпа взаимного удаления трех партнеров при их случайном блуждании<sup>2)</sup>. В контексте этого обобщения можно высказать ряд соображений и наметить возможные направления дальнейших исследований.

<sup>2)</sup>Как и в работе [8], возможен “геометродинамический” взгляд на данные явления. Если рассматривать реперный вариант случайного блуждания как своего рода броуновское движение партнеров под действием эффективных случайных сил, то стратегии с использованием корреляций следует ас-

Как обобщение квадрата расстояния между двумя партнерами, мы использовали площадь треугольника, образованного положениями трех партнеров. Для случая стратегии с четырьмя участниками, разворачивающейся в пространстве, очевидным обобщением оказывается объем трехмерного симплекса. Дальнейшее увеличение числа участников побуждает обращение к объемам выпуклых многогранников – проекциям на 2-х или 3-х мерные пространства симплексов высших размерностей. Однако практическая реализация такого обобщения может оказаться весьма непростой ввиду более сложных многочастичных распределений вероятностей исходов измерений, аналогичных (6).

При числе партнеров более трех встает вопрос правильного выбора формы распределяемого ресурса корреляций – вида синглетных состояний. Мы использовали синглетные пары частиц со спином 1/2 и синглетные тройки со спином 1, ориентируясь на выбор наименьшей возможной величины спина. При этом состояния автоматически оказались полностью антисимметричными по перестановкам частиц, что обеспечивает естественное требование равных условий для всех участников “игры”. Если число участников  $N$ , аналогичными свойствами обладают синглетные состояния, построенные из  $N$  частиц спина  $(N-1)/2$ . В иных случаях в коллективе участников могут возникать кластеры, для входящих в которые условия игры отличаются от средних<sup>3)</sup>.

Площади треугольника  $S$  как параметру, характеризующему близость частиц, было отдано предпочтение перед простой суммой квадратов длин его сторон  $a^2 + b^2 + c^2$ . Мотивом послужила чувствительность  $S$  к трехчастичным корреляциям, в то время как изменение  $a^2 + b^2 + c^2$  можно анализировать в рамках парных маргинальных распределений типа (8). Пользуясь принципом максимума энтропии,

социровать с появлением дополнительных эффективных сил отталкивания (в (14)) и притяжения (в (17)). В [8] показано, что эти силы можно описать в рамках эффективных геометрий, заменяющих геометрию обычной плоскости, т.е. как “гравитацию” (для притяжения) и “антагравитацию” (для отталкивания).

<sup>3)</sup>Например, оба синглетных состояния четырех частиц со спином 1/2 антисимметричны по перестановке частиц, входящих в две выделенные пары. При этом состояния не являются ни симметричными, ни антисимметричными по перестановке частиц из разных пар. В то же время для четырех частиц со спином 3/2 существует полностью антисимметричное синглетное состояние. В случае четырех частиц со спином 1 одно из трех синглетных состояний также будет обладать одинаковой симметрией относительно любых перестановок частиц – однако оно будет полностью симметричным, а не полностью антисимметричным [10].

потенциально возможно на основе этих парных распределений построить эффективное распределение  $p_{\text{eff}}(\sigma_A, \sigma_B, \sigma_C | \mathbf{n}_A, \mathbf{n}_B, \mathbf{n}_C)$  для трех исходов. Это позволило бы, заменив при всех усреднениях истинное распределение  $p(\sigma_A, \sigma_B, \sigma_C | \mathbf{n}_A, \mathbf{n}_B, \mathbf{n}_C)$  полученным эффективным распределением, в явном виде выделить эффект трехчастичной спутанности в (14) и (17). Таким образом, получилось бы сформулировать оригинальный операционный подход к анализу многочастичной запутанности, альтернативный традиционному подходу, основанному на анализе частичных матриц плотности [1, 4]. Это позволило бы также, аналогично случаю с двумя партнерами, найти границы эффективности стратегий, использующих корреляции только классического типа.

### Приложение

При вычислениях в данной работе используется обобщение известного выражения, связывающего произведения пар операторов проекций спина 1/2 (пропорциональных матрицам Паули) с комбинацией членов первой и нулевой степени по таким операторам, на случай операторных проекций спина 1:

$$\begin{aligned} \hat{S}_i \hat{S}_j \hat{S}_k = & \frac{1}{2} (\delta_{ij} \hat{S}_k + \hat{S}_i \delta_{jk}) + \frac{i}{4} \varepsilon_{ijk'} (\hat{S}_{k'} \hat{S}_k + \hat{S}_k \hat{S}_{k'}) + \\ & + \frac{i}{4} \varepsilon_{ij'k} (\hat{S}_{j'} \hat{S}_j + \hat{S}_j \hat{S}_{j'}) + \frac{i}{4} \varepsilon_{i'jk} (\hat{S}_{i'} \hat{S}_i + \hat{S}_i \hat{S}_{i'}). \end{aligned}$$

Выражение для распределения вероятностей (6) исходов измерений проекций спинов частиц:

$$\begin{aligned} p(\sigma_A, \sigma_B, \sigma_C | \mathbf{n}_A, \mathbf{n}_B, \mathbf{n}_C) = & (1 - \sigma_A^2)(1 - \sigma_B^2)(1 - \sigma_C^2) + \\ & + \left( \frac{3}{2} \sigma_A^2 - 1 \right) \left( \frac{3}{2} \sigma_B^2 - 1 \right) \left( \frac{3}{2} \sigma_C^2 - 1 \right) \times \\ & \times \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A)^2 (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B)^2 (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C)^2 \rangle + \\ & + \left[ \left( \frac{3}{2} \sigma_A^2 - 1 \right) (1 - \sigma_B^2)(1 - \sigma_C^2) \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A)^2 \rangle + \right. \\ & + \frac{1}{4} \left( \frac{3}{2} \sigma_A^2 - 1 \right) \sigma_B \sigma_C \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A)^2 (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B) (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C) \rangle + \\ & + \frac{1}{4} (1 - \sigma_A^2) \sigma_B \sigma_C \langle (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B) (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C) \rangle + \\ & + (1 - \sigma_A^2) \left( \frac{3}{2} \sigma_B^2 - 1 \right) \left( \frac{3}{2} \sigma_C^2 - 1 \right) \langle (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B)^2 (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C)^2 \rangle + \\ & + \left. \left[ A \rightarrow B \rightarrow C \rightarrow A \right] + \left[ A \rightarrow C \rightarrow B \rightarrow A \right] \right]. \end{aligned}$$

Две последние пары квадратных скобок символизируют комбинации слагаемых, получаемых из явно

выписанных в первой паре квадратных скобок, отмеченной заменой индексов. Здесь использована более короткая форма записи усредняемых операторных выражений, например,  $\langle (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B)^2 (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C)^2 \rangle \equiv \langle \Psi_0 | \hat{1} \otimes (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}})^2 \otimes (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}})^2 | \Psi_0 \rangle$ .

Ниже приведены результаты вычисления всех возможных типов усредняемых операторов

$$\begin{aligned} \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A) \rangle &= \langle (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B) \rangle = \langle (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C) \rangle = 0 \\ \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A) (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B) (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C) \rangle &= 0 \\ \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A)^2 \rangle &= \langle (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B)^2 \rangle = \langle (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C)^2 \rangle = \frac{2}{3} \\ \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A) (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B) \rangle &= -\frac{1}{3} (\mathbf{n}_A \cdot \mathbf{n}_B) \\ \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A) (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B) (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C)^2 \rangle &= \\ &= -\frac{1}{3} (\mathbf{n}_A \cdot \mathbf{n}_B) + \frac{1}{3} (\mathbf{n}_C \cdot \mathbf{n}_A) (\mathbf{n}_B \cdot \mathbf{n}_C) \\ \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A)^2 (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B)^2 \rangle &= \frac{1}{2} - \frac{1}{6} (\mathbf{n}_A \cdot \mathbf{n}_B)^2 \\ \langle (\mathbf{n}_A \cdot \hat{\mathbf{S}}_A)^2 (\mathbf{n}_B \cdot \hat{\mathbf{S}}_B)^2 (\mathbf{n}_C \cdot \hat{\mathbf{S}}_C)^2 \rangle &= \frac{1}{2} - \frac{1}{6} \times \\ &\times \left[ (\mathbf{n}_A \cdot \mathbf{n}_B)^2 + (\mathbf{n}_B \cdot \mathbf{n}_C)^2 + (\mathbf{n}_C \cdot \mathbf{n}_A)^2 + (\mathbf{n}_A \mathbf{n}_B \mathbf{n}_C)^2 \right]. \end{aligned}$$

Здесь  $(\mathbf{n}_A \mathbf{n}_B \mathbf{n}_C) \doteq \mathbf{n}_A \cdot (\mathbf{n}_B \times \mathbf{n}_C)$  – тройное произведение. Оно начинает играть роль при блуждании в трехмерном пространстве.

**Финансирование работы.** Работа выполнена в рамках Государственного задания (проект № 124041700105-5) в Институте автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук.

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

- 
1. R. Horodecki, P. Horodecki, M. Horodecki, and K. Horodecki, Rev. Mod. Phys. **81**, 865 (2009).
  2. J. Eisert, M. Wilkens, and M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **83**, 3077 (1999).
  3. D. A. Meyer, Phys. Rev. Lett. **82**, 1052 (1999).
  4. N. Brunner, D. Cavalcanti, S. Pironio, V. Scarani, and S. Wehner, Rev. Mod. Phys. **86**, 419 (2014).
  5. C. Brukner, N. Paunkovic, T. Rudolph, and V. Vedral, Int. J. Quant. Inform. **4**, 219 (2006).
  6. F.A. Bovino and M. Giardina, Int. J. Quantum Inf. **5**, 43 (2007).
  7. J. Summhammer, arXiv:quant-ph/0503136v2 (2006).
  8. A. M. Rostom, V. A. Tomilin, and L. V. Il'ichov, Chin. J. Phys. **90**, 1095 (2024).
  9. R. F. Werner, Phys. Rev. A **40**, 4277 (1989).
  10. М. Хамермеш, *Теория групп и ее приложения к физическим проблемам*, Мир, М. (1966).

# Метод стохастического уравнения обновления в определении статистики времени ожидания первого появления определенной последовательности состояний, последовательно посещенных чередующимся процессом обновления

С. А. Белан<sup>1)</sup>

Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Национальный исследовательский университет Высшая школа экономики, факультет физики, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 августа 2024 г.

После переработки 25 сентября 2024 г.

Принята к публикации 26 сентября 2024 г.

В работе демонстрируются преимущества метода стохастического уравнения обновления для описания статистики времени ожидания первого наблюдения периода времени фиксированной длины, в течение которого обновляемый процесс стохастических прыжков между двумя состояниями не покидает заданного состояния. Рассматриваются как марковские, так и произвольные распределения интервалов времени между прыжками. Сравнение аналитических предсказаний со случаем декоррелированного во времени процесса показывает, что корреляции могут как уменьшать, так и увеличивать соответствующее среднее время ожидания. Кроме того, сопоставляя экспоненциальные, субэкспоненциальные и модели с тяжелыми хвостами, характеризующиеся равными вероятностями наблюдения интересующего нас события, мы показываем, что более быстрое убывание плотности вероятности интервалов времени между прыжками подразумевает меньшее среднее время ожидания. Интересно, что независимо от деталей конкретной модели для рассматриваемых здесь прыжковых процессов как с дискретным, так и непрерывным временем, случайное время ожидания демонстрирует универсальность, становясь экспоненциально распределенным в пределе большой длительности ожидаемого события.

DOI: 10.31857/S0370274X24110124, EDN: RCRVEV

**Введение.** В стандартной формулировке задачи первого прохождения [1] событие прохождения связано с моментом первого входа процесса в определенное состояние или первого касания им границы некоторого множества состояний и, таким образом, характеризуется нулевой длительностью. Скажем, для процесса Бернуlli событие первого прохождения соответствует появлению первого успеха (или неудачи) в серии испытаний, а плотность вероятности времени ожидания такого события описывается геометрическим распределением [2]. В качестве еще одного классического примера приведем одномерное броуновское движение, где событие первого прохождения связано с попаданием частицы в поглощающую точку, а результирующая статистика описывается распределением Леви–Смирнова [3, 4].

В более сложных модификациях обсуждаемой задачи рассматривается время ожидания некоторого “неточечного” события прохождения. Под последним понимается первое прохождение случайного процес-

са через заданную последовательность состояний за интервал времени фиксированной продолжительности. К примеру, автор работы [5] применил теорию мартингалов для вычисления среднего времени ожидания первого появления слова ABRACADABRA в случайной последовательности букв, генерируемой в мысленном эксперименте с печатающей обезьяней. Совсем недавно в работе [6] при помощи более прозрачного обратного метода Колмогорова была рассмотрена статистика времени ожидания некоторых простых серий исходов фиксированной длины в эксперименте с подбрасыванием симметричной монеты. В качестве схожего примера, но с непрерывным временем, можно вспомнить исследование статистики времени ожидания первого интервала заданной длины в пуассоновском потоке, что имеет значение для моделирования времени, требуемого пешеходам для пересечения транспортного потока, и для моделирования продолжительности мертвой эпохи в работе счетчиков Гейгера, см., например, классический учебник [7] и [8].

<sup>1)</sup>e-mail: sergb27@yandex.ru

Вышеупомянутые сценарии являются наиболее простыми с точки зрения аналитических вычислений, поскольку и испытания Бернулли, и поток Пуассона, представляют собой декоррелированные во времени процессы. Существует также ряд работ, посвященных времени ожидания первого наблюдения паттерна определенной продолжительности в моделях с временными корреляциями, простейшими примерами которых являются цепи Маркова первого порядка и системы с восстановлением. В частности, статистика времени ожидания некоторых достаточно простых цепочек исходов в последовательности, генерируемой цепью Маркова первого порядка с двумя состояниями, была рассмотрена в [9] путем построения аналогии с азартными играми. Более обще, работа [10] предлагает решение задачи определения статистического распределения времени ожидания любой наперед заданной цепочки исходов в дискретных коррелированных во времени данных, генерируемых цепями Маркова первого порядка и процессами восстановления (также известными как полумарковские процессы) с произвольным числом состояний. Основной областью применения этих результатов является анализ распределения определенных паттернов в длинных последовательностях ДНК [11]. Важным является также вклад работы [12], где исследовалась статистика времени ожидания достаточно длительного периода непрерывного пребывания в заданном состоянии чередующегося (т.е. обладающего двумя состояниями) процесса восстановления, представляющего популярную модель в анализе надежности.

Подводя итог, можно сказать, что различные версии задачи описания статистики времени ожидания события ненулевой длительности рассматривались разными методами в чисто математической литературе, в прикладной теории вероятностей и в физических журналах.

Целью данной статьи является демонстрация наиболее прямого и интуитивно понятного (по крайней мере для исследователей, работающих в области статистической физики) аналитического метода определения статистики времени ожидания в моделях прыжковых процессов со статистически независимыми интервалами между прыжками. Чтобы сделать изложение ключевых идей и вычислительных аспектов максимально простым, мы выбрали модель с всего двумя состояниями и рассматриваем самое простое возможное событие в качестве порогового – постоянное пребывание процесса в заданном состоянии в течение интервала времени фиксированной длины. Статистические характеристики времени ожидания в такой постановке задачи могут быть по-

лучены путем усреднения специфического представления случайной реализации этой величины – подход, который может быть назван методом стохастического уравнения обновления. Помимо методологических вопросов, особое внимание в данной работе уделяется пределу событий большой длительности, в котором, как будет показано ниже, возникает универсальное статистическое поведение. Другим важным аспектом предлагаемого анализа является сравнение результатов для различных типов распределений интервалов времени между прыжками. В заключительной части работы мы обсуждаем потенциальные приложения полученных результатов в областях исследований, где подобные вопросы, насколько нам известно, пока не рассматривались.

**Марковская динамика.** Рассмотрим цепь Маркова с двумя состояниями, характеризующуюся вероятностями перехода  $p$  и  $q$  за один шаг дискретного времени, как показано на рис. 1а. Траектория такого прыжкового процесса может быть закодирована бинарной динамической переменной  $x_t$ . Более конкретно, мы будем говорить, что  $x_t = 1$ , где  $t = 0, 1, 2, \dots$ , если процесс находится в состоянии 1 на шаге  $t$ , и  $x_t = 0$ , если процесс в состоянии 2. Через  $k$  обозначим время, требуемое чтобы впервые встретить  $N$  единиц подряд в ряду значений переменной  $x_t$ . Среднее значение случайной величины  $k$  для произвольного начального состояния было вычислено в работе [9], в то время как полная статистика  $k$  может быть, в принципе, извлечена из более общих результатов, содержащихся в [10].

В этом разделе мы показываем, как получить статистику  $k$  на основе метода стохастического уравнения обновления. Кратко опишем суть данного метода. Вводя индикаторные функции, аргументы которых задают условия на начальное состояние и на момент первого перехода между парой состояний, мы можем разделить множество возможных наблюдений на взаимно исключающие сценарии, которые, будучи вместе взятыми, учитывают все возможные траектории процесса. Такое представление приводит к набору так называемых уравнений обновления на случайное время ожидания, а также на случайные переменные, входящие в декомпозицию этого времени по альтернативным историям динамики процесса. Благодаря марковскому свойству процесса, эти уравнения рекурсивны в том смысле, что они выражают некоторые случайные переменные через их статистически независимые копии. Строго говоря, число неизвестных при этом превосходит число уравнений, однако используя статистическую независимость можно получить замкнутые выражения

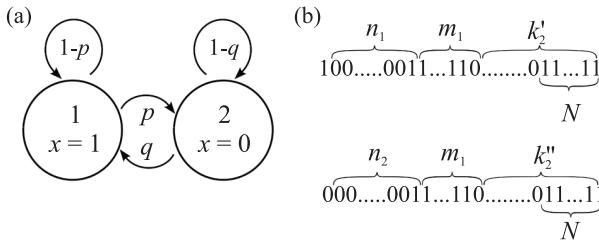


Рис. 1. (а) – Марковский процесс с двумя состояниями в дискретном времени с вероятностями перехода за отдельный шаг  $p$  и  $q$ . Состояния 1 и 2 соответствуют значениям  $x = 1$  и  $x = 0$  динамической переменной  $x_t$ . (б) – Представление случайного времени  $k$  ожидания первого появления серии из  $N$  единиц подряд в последовательности значений, принимаемых переменной  $x_t$ . Предположим, что в нулевой момент времени процесс находился в состоянии 0 (нижняя часть рис. (б)). Поскольку желаемая серия начинается с 1, процесс сперва должен оказаться в состоянии 1, что требует некоторого случайного числа шагов, которое на рисунке и в тексте обозначено как  $n_2$ . Далее, число шагов, спустя которое процесс затем покинет состояние 1, обозначено через  $m_1$ . Если  $m_1 > N - 1$ , то интересующая нас серия из  $N$  единиц подряд появится в течении этих  $m_1$  шагов, т.е. спустя  $n_1 + N - 1$  шагов спустя начала наблюдения. В противном случае, если  $m_1 \leq N - 1$ , процесс покинет состояние 1 слишком рано, так что необходимо будет подождать еще  $k'_2$  шагов, пока желаемая последовательность наконец не встретится. Благодаря марковскому свойству и статистической однородности, величины  $k_2$  и  $k'_2$  независимы и одинаково распределены. Аналогичное представление может быть построено, если процесс стартует из состояния 2 (верхняя часть рисунка (б)). Вышеописанные соображения формализованы в ур. (1), (2) и (3)

для усредненных характеристик случайного времени ожидания. Следуя этой логике ниже мы вычисляем характеристическую функцию, определенную как среднее  $\langle e^{isk} \rangle$ , и математическое ожидание  $\langle k \rangle$ .

Итак, очевидно,  $k$  может быть представлено как

$$k = k_1 I(x_0 = 1) + k_2 I(x_0 = 0), \quad (1)$$

где  $I(\dots)$  – это индикаторная функция, которая равна единице, если выполнено условие, заданное ее аргументом, и нулю в противоположном случае, в то время как  $k_1$  и  $k_2$  обозначают случайное время ожидания в эксперименте, где процесс исходно находился в состояниях 1 и 2 соответственно. Благодаря марковскому свойству процесса  $x_t$ , условные времена ожидания  $k_1$  и  $k_2$  удовлетворяют следующей системе сцепленных уравнений обновления

$$k_1 = n_1 + (N-1)I(m_1 > N-1) + (m_1 + k'_2)I(m_1 \leq N-1), \quad (2)$$

$$k_2 = n_2 + (N-1)I(m_1 > N-1) + (m_1 + k''_2)I(m_1 \leq N-1), \quad (3)$$

где  $k'_2$  и  $k''_2$  обозначают статистически независимые копии  $k_2$ ;  $n_1 \geq 1$  – это момент времени, когда впервые наблюдается 1 при условии  $x_0 = 1$ ;  $m_1 \geq 1$  – это момент времени, когда впервые наблюдается 0, если  $x_0 = 1$ ;  $n_2 \geq 1$  – это момент времени, когда впервые наблюдается 1 при условии  $x_0 = 0$ , см. рис. 1б и подпись к нему.

**Характеристическая функция.** Полная статистика случайной переменной  $T$  может быть извлечена из характеристической функции, которая определена как  $\langle e^{isT} \rangle$ . Уравнение (1) позволяет нам записать  $e^{isk} = e^{isk_1} I(x_0 = 1) + e^{isk_2} I(x_0 = 0)$ , и, следовательно,

$$\begin{aligned} \langle e^{isk} \rangle &= \langle e^{isk_1} I(x_0 = 1) \rangle + \langle e^{isk_2} I(x_0 = 0) \rangle = \\ &= \langle e^{isk_1} \rangle Pr[x_0 = 1] + \langle e^{isk_2} \rangle Pr[x_0 = 0] = \\ &= \frac{q}{p+q} \langle e^{isk_1} \rangle + \frac{p}{p+q} \langle e^{isk_2} \rangle. \end{aligned} \quad (4)$$

Мы предполагаем статистически-стационарное начальное условие, так что  $Pr[x_0=1] = \frac{q}{p+q}$  и  $Pr[x_0=0] = \frac{p}{p+q}$ .

Далее, из ур. (2) и (3) находим

$$\begin{aligned} e^{isk_1} &= e^{is(n_1+N-1)} I(m_1 > N-1) + \\ &+ e^{is(n_1+m_1+k'_2)} I(m_1 \leq N-1), \end{aligned} \quad (5)$$

и

$$\begin{aligned} e^{isk_2} &= e^{is(n_2+N-1)} I(m_1 > N-1) + \\ &+ e^{is(n_2+m_1+k''_2)} I(m_1 \leq N-1). \end{aligned} \quad (6)$$

Используя статистическую независимость переменных  $n_1$ ,  $m_1$  и  $k_2$  в ур. (5), мы получаем

$$\begin{aligned} \langle e^{isk_1} \rangle &= e^{is(N-1)} \langle e^{isn_1} \rangle \langle I(m_1 > N-1) \rangle + \\ &+ \langle e^{isn_1} \rangle \langle e^{isk'_2} \rangle \langle e^{ism_1} I(m_1 \leq N-1) \rangle. \end{aligned} \quad (7)$$

Схожим образом, статистическая независимость переменных  $n_2$ ,  $m_1$  и  $k_2$  в ур. (6) позволяет нам записать

$$\begin{aligned} \langle e^{isk_2} \rangle &= \langle e^{is(N-1)} \rangle \langle e^{isn_2} \rangle \langle I(m_1 > N-1) \rangle + \\ &+ \langle e^{isn_2} \rangle \langle e^{isk''_2} \rangle \langle e^{ism_1} I(m_1 \leq N-1) \rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

Очевидно,  $\langle e^{isk_2} \rangle = \langle e^{isk'_2} \rangle = \langle e^{isk''_2} \rangle$ . Тогда, решая систему сцепленных ур. (7) и (8) для  $\langle e^{isk_1} \rangle$  и  $\langle e^{isk_2} \rangle$ , имеем

$$\langle e^{isk_1} \rangle = \frac{e^{is(N-1)} \langle e^{isn_1} \rangle \langle I(m_1 > N-1) \rangle}{1 - \langle e^{isn_2} \rangle \langle e^{ism_1} I(m_1 \leq N-1) \rangle}, \quad (9)$$

$$\langle e^{isk_2} \rangle = \frac{e^{is(N-1)} \langle e^{isn_2} \rangle \langle I(m_1 > N-1) \rangle}{1 - \langle e^{isn_2} \rangle \langle e^{ism_1} I(m_1 \leq N-1) \rangle}. \quad (10)$$

Подстановка ур. (9) и (10) в ур. (4) дает

$$\langle e^{isk} \rangle = \frac{(q \langle e^{isn_1} \rangle + p \langle e^{isn_2} \rangle) e^{is(N-1)} \langle I(m_1 > N-1) \rangle}{(p+q)(1 - \langle e^{isn_2} \rangle \langle e^{ism_1} I(m_1 \leq N-1) \rangle)}. \quad (11)$$

Средние значения в правой части ур. (11) могут быть вычислены при помощи следующих вероятностных распределений

$$p_1(m_1) = p(1-p)^{m_1-1}, \quad (12)$$

и

$$p_2(n_2) = q(1-q)^{n_2-1}. \quad (13)$$

Тогда

$$\langle e^{ism_1} \rangle = \sum_{m_1=1}^{\infty} e^{ism_1} p_1(m_1) = \frac{pe^{is}}{1-(1-p)e^{is}}, \quad (14)$$

$$\langle I(m_1 > N-1) \rangle = \sum_{m_1=N}^{\infty} p_1(m_1) = (1-p)^{N-1}, \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \langle e^{ism_1} I(m_1 \leq N-1) \rangle &= \sum_{m_1=1}^{N-1} e^{ism_1} p_1(m_1) = \\ &= \frac{p((1-p)^N e^{iNs} - (1-p)e^{is})}{(p-1)(1+(p-1)e^{is})}, \end{aligned} \quad (16)$$

и

$$\langle e^{isn_2} \rangle = \frac{qe^{is}}{1-(1-q)e^{is}}. \quad (17)$$

Для выполнения усреднения по статистике случайной величины  $n_1$ , заметим что

$$n_1 = 1 \cdot I(b=1) + (1+n_2) \cdot I(b=0), \quad (18)$$

где  $b$  – это переменная Бернулли, которая равна единице с вероятностью  $1-p$ , и нулю с вероятностью  $p$ . Из ур. (18) следует, что

$$e^{isn_1} = I(x=1)e^{is} + I(x=0)e^{is(1+n_2)}, \quad (19)$$

и, поэтому,

$$\begin{aligned} \langle e^{isn_1} \rangle &= (1-p)e^{is} + pe^{is}\langle e^{isn_2} \rangle = \\ &= \frac{e^{is}(1-p+(p+q-1)e^{is})}{1-(1-q)e^{is}}, \end{aligned} \quad (20)$$

где мы использовали ур. (17).

Подстановка выражений (14), (15), (16), (17) и (20) в ур. (11) дает окончательный ответ для характеристической функции времени ожидания  $k$

$$\langle e^{isk} \rangle = \frac{q(1-p)^N e^{iNs} (1 - (1-p-q)e^{is})(1 - (1-p)e^{is})}{(p+q)[(1-p)(1-(1-q)e^{is})(1-(1-p)e^{is}) - qpe^{is}((1-p)e^{is} - (1-p)^N e^{iNs})]}. \quad (21)$$

*Среднее время ожидания.* Точное распределение  $p(k)$ , являющееся обратным преобразованием Фурье от  $\langle e^{isk} \rangle$ , не может быть получено аналитически. Тем не менее ур. (21) может быть использовано для вычисления среднего значения  $\langle k \rangle$ , поскольку статистические моменты  $k$  определяются коэффициентами разложения характеристической функции  $\langle e^{isk} \rangle$  в ряд по степеням  $s$ .

Из разложения до линейных членов  $\langle e^{isk} \rangle = 1 + is\langle k \rangle + O(s^2)$ , мы находим следующее достаточно простое выражение

$$\langle k \rangle = \frac{p+q}{pq}(1-p)^{-N+1} - \frac{1}{p+q} - \frac{1-p}{p}, \quad (22)$$

которое в пределе больших  $N$  принимает вид

$$\langle k \rangle_{\infty} = \frac{p+q}{pq}(1-p)^{-N+1}. \quad (23)$$

Исследуем, как общий ответ, заданный ур. (22), упрощается при  $q = 1-p$ . В этом случае исходы

$x_0, x_1, x_2, \dots$  становятся статистически независимыми, так что процесс  $x_t$  сводится к простому процессу Бернулли. Из ур. (22) получаем

$$\langle k \rangle^{\text{Bern}} = \frac{1}{p(1-p)^N} - \frac{1}{p}. \quad (24)$$

Отметим, что после подстановки  $p = q = 1/2$ , которая соответствует эксперименту с подбрасыванием симметричной монеты, ур. (24) воспроизводит результат

$$\langle k \rangle^{\text{f.c.}} = 2^{N+1} - 2, \quad (25)$$

ранее известный из работы [6].

Уравнение (22) показывает, что корреляции могут как увеличивать, так и уменьшать среднее время ожидания в сравнении со случаем отсутствия корреляций. Действительно, давайте сравним эксперимент по подкидыванию честной монеты и марковский процесс с двумя состояниями, характеризующиеся одинаковой вероятностью получения  $N$  единиц подряд

в  $N \gg 1$  последовательных исходах. Приравнивая соответствующие вероятности в этих двух моделях,  $\frac{1}{2^N}$  и  $\frac{q}{p+q}(1-p)^{N-1}$ , и, учитывая ур. (23), мы получаем условие  $\langle k \rangle_\infty = \frac{2^N}{p}$ . Вместе с ур. (25) это дает

$$\frac{\langle k \rangle_\infty}{\langle k \rangle_{\infty}^{f.c.}} \approx \frac{1}{2p}, \quad (26)$$

так что  $\langle k \rangle_\infty / \langle k \rangle_{\infty}^{f.c.} < 1$ , где  $p > 1/2$ , и  $\langle k \rangle_\infty / \langle k \rangle_{\infty}^{f.c.} > 1$  при  $p < 1/2$ . Интересно заметить, что, как следует из (26) марковские корреляции первого порядка не могут уменьшить среднее время ожидания более чем в два раза.

*Предел больших  $N$ .* Используя  $\langle k \rangle$  как оценку для характерной ширины функции распределения  $p(k)$ , мы можем заключить, что для описания “тела” этой функции достаточно знать ее характеристическую функцию в области  $s \lesssim \langle k \rangle^{-1}$ . Примечательно, ур. (22) показывает, что для достаточно больших  $N$  имеет место разделение маштабов времени  $\langle k \rangle \gg N$ . Следовательно, для указанных выше релевантных значений  $s$  мы можем упростить ур. (21), раскладывая экспоненты в его правой части. Это приводит к следующему приближению для характеристической функции

$$\langle e^{isk} \rangle \approx \frac{pq(1-p)^N}{pq(1-p)^N - i(1-p)(p+q)s}, \quad (27)$$

откуда сразу же следует экспоненциальная предельная форма распределения вероятностей  $p(k) \approx \frac{1}{\langle k \rangle_\infty} \exp(-\frac{k}{\langle k \rangle_\infty})$  со средним значением  $\langle k \rangle_\infty = \frac{p+q}{pq}(1-p)^{-N+1}$  (см. ур. (23)), представляющим асимптотику общего выражения (22) при  $N \gg 1$ .

*Немарковская динамика.* Переядем теперь к случаю бинарного случайного процесса с немарковскими корреляциями. А именно, рассмотрим стохастические прыжки между двумя состояниями, см. рис. 2a, согласно следующим простым правилам. Если процесс перешел в состояние 1, то он остается там случайное время  $t_1$ , имеющее плотность распределения общего вида  $\rho_1(t_1)$ . Схожим образом, время пребывания  $t_2$  процесса в состоянии 2 также представляет собой случайную переменную с произвольной плотностью распределения  $\rho_2(t_2)$ . Случайные длительности интервалов времени между прыжками являются статистически независимыми. Прыжковые процессы с такими свойствами известны в литературе как полумарковские процессы или марковские процессы обновления.

Пусть  $x(t)$  – это бинарная функция, для которой значение  $x(t) = 1$  означает, что процесс находится

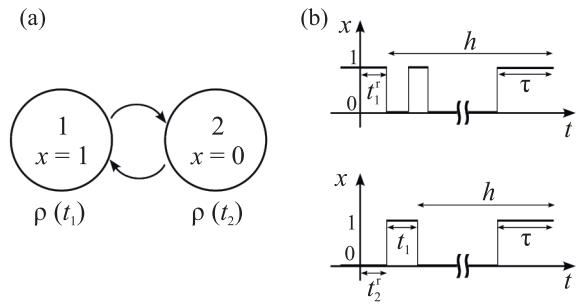


Рис. 2. Прыжковый процесс с двумя состояниями в непрерывном времени с произвольными плотностями вероятности  $\rho_1(t_1)$  и  $\rho_2(t_2)$  интервалов  $t_1$  и  $t_2$  между прыжками

в состоянии 1 в момент времени  $t$ , в то время как значение  $x(t) = 0$  соответствует состоянию 2. Мы начинаем наблюдать за этим процессом в случайный момент времени и хотим описать статистику времени ожидания  $T$  первого промежутка времени длины  $\tau$ , в течение которого процесс не покидает состояния 1. Для упрощения анализа, в этом разделе будет предполагаться, что  $\tau$  – это дискретная переменная. Отметим, что если исходно имеется дискретная модель, то переход к непрерывному пределу оправдан, если все релевантные масштабы времени велики в сравнении с дискретным шагом, т.е.  $\langle t_1 \rangle, \langle t_2 \rangle, \tau \gg 1$ .

Случайное время ожидания  $T$  может быть представлено следующим образом

$$T = T_1 I(x(0) = 1) + T_2 I(x(0) = 0), \quad (28)$$

где  $T_1$  и  $T_2$  обозначают случайные времена ожидания при условии, что в момент, когда мы начинаем наблюдать за процессом, он был в состоянии 1 и 2 соответственно. Эти случайные величины, в свою очередь, удовлетворяют следующей системе уравнений

$$T_1 = \tau I(t_1^r \geq \tau) + (t_1^r + t)I(t_1^r < \tau), \quad (29)$$

$$T_2 = t_2^r + \tau I(t_1 \geq \tau) + (t_1 + t)I(t_1 < \tau), \quad (30)$$

$$t = t_2 + \tau I(t_1' \geq \tau) + (t_1' + t')I(t_1' < \tau). \quad (31)$$

Здесь  $t_1^r$  ( $t_2^r$ ) обозначает остаточное время пребывания, т.е. время, оставшееся до ухода процесса из состояния 1 (2), если он был в этом состоянии в случайный момент, когда мы начали его наблюдать;  $t$  – это оставшееся время ожидания в ситуации, если процесс покидает состояние 1 до того, как произошло интересующее нас событие первого прохождения;  $t_1'$  и  $t'$  – это статистически-независимые копии  $t_1$  и  $t$  соответственно. Посредством введения индикаторных функций и переменной  $t$  мы учитываем в ур. (29),

(30) и (31) все возможные варианты динамики процесса, см. также рис. 2б.

*Среднее время ожидания.* Выполняя усреднение по статистике прыжков в ур. (28), мы получаем

$$\begin{aligned}\langle T \rangle &= \langle T_1 \rangle \Pr[x(0) = 1] + \langle T_2 \rangle \Pr[x(0) = 0] = \\ &= \frac{\langle t_1 \rangle \langle T_1 \rangle + \langle t_2 \rangle \langle T_2 \rangle}{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle},\end{aligned}\quad (32)$$

где учтено, что в статистически-стационарном режиме вероятность найти процесс в состоянии 1 (2) дается отношением  $\frac{\langle t_1 \rangle}{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle}$  ( $\frac{\langle t_2 \rangle}{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle}$ ), где  $\langle t_1 \rangle = \int_0^\infty dt_1 \rho_1(t_1) t_1$  и  $\langle t_2 \rangle = \int_0^\infty dt_2 \rho_2(t_2) t_2$  [13].

Далее, используя статистическую независимость случайных величин  $t_1$ ,  $t_1^r$ ,  $t'_1$ ,  $t$  и  $t'$ , входящих в ур. (29), (30) и (31), мы находим замкнутую систему уравнений для  $\langle T_1 \rangle$ ,  $\langle T_2 \rangle$  и  $\langle t \rangle$ . Решая эту систему, получаем

$$\begin{aligned}\langle T_1 \rangle &= \tau + \langle t_1^r I(t_1^r < \tau) \rangle + \\ &+ [\langle t_2 \rangle + \langle t_1 I(t_1 < \tau) \rangle] \frac{\langle I(t_1^r < \tau) \rangle}{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle},\end{aligned}\quad (33)$$

и

$$\begin{aligned}\langle T_2 \rangle &= \langle t_2^r \rangle + \tau + \langle t_1 I(t_1 < \tau) \rangle + \\ &+ [\langle t_2 \rangle + \langle t_1 I(t_1 < \tau) \rangle] \frac{\langle I(t_1 < \tau) \rangle}{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle}.\end{aligned}\quad (34)$$

Подстановка ур. (33) и (34) в ур. (32) дает

$$\begin{aligned}\langle T \rangle &= \tau + \frac{\langle t_1 \rangle}{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle} \times \\ &\times \left[ \langle t_1^r I(t_1^r < \tau) \rangle + (\langle t_2 \rangle + \langle t_1 I(t_1 < \tau) \rangle) \frac{\langle I(t_1^r < \tau) \rangle}{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle} \right] + \\ &+ \frac{\langle t_2 \rangle}{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle} \left[ \langle t_2^r \rangle + \frac{\langle t_1 I(t_1 < \tau) \rangle}{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle} + \langle t_2 \rangle \frac{\langle I(t_1 < \tau) \rangle}{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle} \right].\end{aligned}\quad (35)$$

Для средних значений в правой части вышеизложенного уравнения, включающих в себя случайный интервал  $t_1$ , мы легко находим

$$\langle I(t_1 < \tau) \rangle = \int_0^\tau \rho_1(t_1) dt_1,\quad (36)$$

$$\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle = \int_\tau^\infty \rho_1(t_1) dt_1,\quad (37)$$

и

$$\langle t_1 I(t_1 < \tau) \rangle = \int_0^\tau t_1 \rho_1(t_1) dt_1.\quad (38)$$

Касательно усреднения по  $t_1^r$  and  $t_2^r$ , заметим, что функции плотности вероятности этих случайных величин имеют вид  $p_1(t_1^r) = \frac{1}{\langle t_1 \rangle} \int_{t_1^r}^\infty dt_1 \rho_1(t_1)$  и  $p_2(t_2^r) = \frac{1}{\langle t_2 \rangle} \int_{t_2^r}^\infty dt_2 \rho_2(t_2)$  соответственно (см. [1]). Следовательно

$$\langle I(t_1^r < \tau) \rangle = \frac{\int_0^\tau dt_1^r \int_{t_1^r}^\infty dt_1 \rho_1(t_1)}{\int_0^\infty dt_1 \rho_1(t_1) t_1},\quad (39)$$

$$\langle t_1^r I(t_1^r < \tau) \rangle = \frac{\int_0^\tau dt_1^r t_1^r \int_{t_1^r}^\infty dt_1 \rho_1(t_1)}{\int_0^\infty dt_1 \rho_1(t_1) t_1},\quad (40)$$

и

$$\langle t_2^r \rangle = \frac{\int_0^\infty dt_2^r t_2^r \int_{t_2^r}^\infty dt_2 \rho_2(t_2)}{\int_0^\infty dt_2 \rho_2(t_2) t_2}.\quad (41)$$

Это означает, в частности, что  $\langle t_2^r \rangle = \langle t_2 \rangle / (2\langle t \rangle)$  в противоположность наивной оценке  $\langle t_1 \rangle / 2$  [14]. Несколько неожиданное поведение статистики оставшегося до очередного прыжка времени лежит в основе хорошо известного парадокса инспекции в теории обновляемых процессов [15].

Выражение (35) совместно с ур. (36)–(41) дает точный общий ответ для среднего времени ожидания  $\langle T \rangle$ . Важно отметить, этот результат отличается от представленного для аналогичной модели с двумя состояниями в работе [12]. Это объясняется тем, что наш анализ предполагает случайность выбора начального момента наблюдения (см. ур. (32)), в то время как автор работы [12] выполнил свои вычисления в предположении, что наблюдение за процессом начинается в момент его очередного входа в состояние 1.

Как видно из приведенных выше вычислений, в принятой нами формулировке задачи среднее  $\langle T \rangle$  конечно, если существуют статистические моменты  $\langle t_1 \rangle$ ,  $\langle t_2 \rangle$  и  $\langle t_2^2 \rangle$ . Заметьте, однако, что хотя среднее время ожидания расходится для распределений с достаточно тяжелыми хвостами, метод стохастического уравнения обновления тем не менее может быть применен для определения сходящихся статистических характеристик, например характеристической функции и производящей моменты функции.

*Предел больших  $\tau$ .* Сфокусируемся на случае экстремального события, когда процесс тратит в состоянии 1 время  $\tau$ , которое велико в сравнении со средним интервалом времени  $\langle t_1 \rangle$  между прыжками и средним временем  $\langle t_1^r \rangle = \langle t_1^2 \rangle / (2\langle t_1 \rangle)$ , оставшимся до очередного прыжка (предполагаем, что соответствующее среднее конечно). Тогда ведущие вклады в  $\langle T_1 \rangle$  и  $\langle T_2 \rangle$  связаны с последними членами в правых частях ур. (33) и (34). То есть  $\langle T_1 \rangle \approx \langle T_2 \rangle \approx \frac{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle}{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle}$ , и, следовательно, среднее время ожидания оценивается как

$$\langle T \rangle_\infty \approx \frac{\int_0^\infty dt_1 \rho_1(t_1) t_1 + \int_0^\infty dt_2 \rho_2(t_2) t_2}{\int_\tau^\infty dt_1 \rho_1(t_1)},\quad (42)$$

где мы учли ур. (32).

Информативно сравнить среднее время, предсказываемое ур. (42) для экспоненциального, субэкспоненциального и распределения с тяжелыми хвостами. В экспоненциальном случае,  $\rho_1(t_1) = \lambda_1 e^{-\lambda_1 t_1}$  и  $\rho_2(t_2) = \lambda_2 e^{-\lambda_2 t_2}$ , мы находим из ур. (42)

$$\langle T \rangle_{\infty}^{\text{exp}} \approx \frac{\lambda_1 + \lambda_2}{\lambda_1 \lambda_2} e^{\lambda_1 \tau}. \quad (43)$$

Как простой пример субэкспоненциальной статистики мы выбираем полу-гауссов распределение  $\rho_1(t_1) = \sqrt{\frac{2}{\pi \sigma_1^2}} \exp(-\frac{t_1^2}{2\sigma_1^2})$  и  $\rho_2(t_2) = \sqrt{\frac{2}{\pi \sigma_2^2}} \exp(-\frac{t_2^2}{2\sigma_2^2})$ , получая

$$\langle T \rangle_{\infty}^{\text{norm}} \approx (1 + \frac{\sigma_2}{\sigma_1}) \tau e^{\frac{\tau^2}{2\sigma_1^2}}. \quad (44)$$

Наконец, используя распределение Парето,  $\rho_1(t_1) = \frac{\alpha_1 t_0^{\alpha_1}}{t_1^{\alpha_1+1}} I(t_1 \geq t_0)$  и  $\rho_2(t_2) = \frac{\alpha_2 t_0^{\alpha_2}}{t_2^{\alpha_2+1}} I(t_2 \geq t_0)$  с  $\alpha_1, \alpha_2 > 3$ , как основополагающий пример распределения с тяжелыми хвостами, мы находим

$$\langle T \rangle_{\infty}^{\text{pow.law}} \approx (\frac{\alpha_1}{\alpha_1 - 1} t_0 + \frac{\alpha_2}{\alpha_2 - 1} t_0) \frac{\tau_1^{\alpha}}{t_0^{\alpha-1}}. \quad (45)$$

Вероятность  $\pi$  наблюдения непрерывного пребывания процесса в состоянии 1 в течении интервала времени  $\tau$ , начиная с какого-то случайно выбранного момента, равна

$$\pi = \frac{\langle t_1 \rangle}{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle} Pr[t_1^r \geq \tau] = \quad (46)$$

$$= \frac{1}{\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle} \int_{\tau}^{\infty} dt_1^r \int_{t_1^r}^{\infty} dt_1 \rho_1(t_1). \quad (47)$$

Тогда получаем

$$\pi_{\text{exp}} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1 + \lambda_2} \exp(-\lambda_1 \tau),$$

$$\pi_{\text{norm.}} = \frac{\sigma_1^3}{(\sigma_1 + \sigma_2) \tau^2} \exp(-\frac{\tau^2}{2\sigma_1^2})$$

и

$$\pi_{\text{pow.law}} = \frac{\alpha_1 t_0^{\alpha_1} \tau^{2-\alpha_1} + \alpha_2 t_0^{\alpha_2} \tau^{2-\alpha_2}}{(\alpha_2 - 1) \alpha_1 t_0 + (\alpha_1 - 1) \alpha_2 t_0}$$

для экспоненциального, полу-гауссова и степенного распределений соответственно. В целях сравнения рассмотрим статистически симметричную ситуацию, с одинаково распределенными интервалами  $t_1$  и  $t_2$  и выберем параметры распределений (т.е. величины  $\lambda$ ,  $\sigma$ ,  $t_0$  и  $\alpha$ ) таким образом, что  $\pi_{\text{exp}} = \pi_{\text{norm.}} = \pi_{\text{pow.law}}$ . Легко тогда проверить, используя ур. (43)–(45), что в пределе больших  $\tau$  имеет место следующее упорядочение:  $\langle T \rangle_{\infty}^{\text{norm}} < \langle T \rangle_{\infty}^{\text{exp}} < \langle T \rangle_{\infty}^{\text{pow.law}}$ . Таким образом, более быстрое затухание плотности распределения

влечет за собой меньшее значение среднего времени ожидания периода экстремально затянувшегося пребывания процесса в заданном состоянии.

Помимо среднего значения  $\langle T \rangle_{\infty}$ , определенного ур. (42), выведем также предельную форму распределения вероятностей. Поскольку в рассматриваемом пределе как  $T_1$ , так и  $T_2$  определены преимущественно слагаемым  $t$  в ур. (29) и (30), то для времени ожидания  $T$  мы можем приближенно записать

$$T \approx t_2 + \tau I(t_1' \geq \tau) + (t_1' + T') I(t_1' < \tau), \quad (48)$$

и, следовательно,

$$e^{isT} \approx e^{is(t_2 + \tau)} I(t_1' \geq \tau) + e^{is(t_2 + t_1' + T')} I(t_1' < \tau). \quad (49)$$

Статистическая независимость переменных  $t_2$ ,  $t_1'$  и  $T'$  в ур. (49) позволяет прийти к следующему замкнутому результату для производящей моменты функции

$$\langle e^{isT} \rangle \approx \frac{e^{is\tau} \langle e^{ist_2} \rangle \langle I(t_1 \geq \tau) \rangle}{1 - \langle e^{ist_2} \rangle \langle e^{ist_1} I(t_1 < \tau) \rangle}. \quad (50)$$

“Тело” характеристической функции соответствует области  $s < \langle T \rangle_{\infty}^{-1}$ . Благодаря разделению маштабов времени  $\langle T \rangle_{\infty} \gg \tau, \langle t_1 \rangle, \langle t_2 \rangle$ , которое следует из ур. (42) (см. также ур. (43), (44) и (45)), мы можем упростить ур. (51), используя малость безразмерных параметров  $s\tau, st_1, st_2 \ll 1$  для типичных значений случайных переменных  $t_1$  и  $t_2$  и релевантных значений переменной Лапласа  $s$ . Оставляя члены нулевого порядка в числителе и первого порядка малости в знаменателе, получаем

$$\langle e^{isT} \rangle \approx \frac{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle}{\langle I(t_1 \geq \tau) \rangle - i(\langle t_1 \rangle + \langle t_2 \rangle)s}. \quad (51)$$

Наконец, выполняя обратное преобразование Фурье от  $\langle e^{isT} \rangle$  в рамках аппроксимации (51) и учитывая ур. (37), мы находим экспоненциальное распределение  $P(T) \approx \frac{1}{\langle T \rangle_{\infty}} \exp(-\frac{T}{\langle T \rangle_{\infty}})$  времени ожидания  $T$  в пределе больших значений  $\tau$ , с соответствующим средним значением  $\langle T \rangle_{\infty}$ , которое дается ур. (42).

**Заключение.** В заключении, мы хотели бы обсудить некоторые потенциальные применения результатов, полученных в ходе многолетних теоретических исследований статистики времени ожидания определенных паттернов в стохастической динамике.

Прежде всего, марковская цепь с двумя состояниями представляет собой полезный инструмент теоретического моделирования паттернов выпадения осадков [16–24]. Если, скажем, состояние 1 соответствует сухому дню в некоторой местности (отсутствие осадков), а состояние 2 – дождливому дню

(ненулевое количество выпавших осадков), то событие прохождения в контексте принятой нами здесь модели будет представлять собой засушливый период определенной длительности. Таким образом, представленный анализ вместе с предшествующими исследованиями аналогичной тематики (в особенности ссылкой [9], рассматривающей случай произвольного распределения начального состояния процесса) может дать предсказания касательно статистики времени ожидания периодов персистентных метеорологических условий, включая сценарий экстремально долгих засух, что представляет интерес для оценки рисков в агропромышленном планировании.

Во-вторых, мы ожидаем, что рассмотренный здесь прыжковый процесс с двумя состояниями в непрерывном времени может воспроизводить свойства статистически-стационарного турбулентного сигнала в рамках телеграфного приближения [25–28], представляющего собой разновидность огрубленного описания данных. При таком описании, из сигнала исключают информацию об его амплитуде, оставляя только информацию о знаке флюктуирующей переменной. Проще говоря, мы приписываем значение 1 телеграфной динамической переменной, если интересующая нас компонента поля скорости турбулентной жидкости в рассматриваемой точке положительна в заданный момент времени, и значение 0 – в противоположном случае. Пересечение сигналом нуля тогда соответствует переходу между парой огрубленных состояний турбулентной скорости. Аналогично, можно ввести телеграфное приближение для флюктуаций температуры в турбулентной конвекции и для флюктуаций концентрации пассивного скаляра, переносимого турбулентным течением [29]. Если известны плотности распределения интервалов времени между последовательными пересечениями нуля турбулентным сигналом, то результаты представленного анализа могут быть использованы для извлечения теоретических предсказаний касательно статистики времени ожидания периодов персистентности сигнала.

Следует иметь в виду, однако, что в обоих из вышеуказанных приложений для достижения более точного количественного соответствия между измеряемой статистикой времени ожидания и ее теоретическим описанием могут потребоваться более сложные статистические модели. В частности, марковские модели с не зависящими от времени вероятностями переходов не подходят для моделирования метеорологических наблюдений в местностях с выраженной сезонной зависимостью интенсивности осад-

ков (см. работу [30] и приведенные в ней ссылки). Что же касается телеграфного приближения турбулентных сигналов, то требуется предварительный анализ экспериментальных данных, чтобы проверить, является ли достаточно точным, существенное для использованной здесь модели предположение о статистической независимости интервалов времени между моментами смены знака компонентами флюктуационной составляющей поля скорости.

**Финансирование работы.** Работа была поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (проект FFWR-2024-0017.)

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

1. S. Redner, *A guide to first-passage processes*, Cambridge university press, Cambridge (2001).
2. R. G. Gallager, *Stochastic processes: theory for applications*, Cambridge University Press, Cambridge (2013), p. 17.
3. E. Schrödinger, Physikalische Zeitschrift **16**, 289 (1915).
4. S. Chandrasekhar, Rev. Mod. Phys. **15**(1), 1 (1943).
5. D. Ai, Martingales and the ABRACADABRA problem, (2011); <http://www.math.uchicago.edu/~may/VIGRE/VIGRE2011/REUPapers/Ai.pdf>.
6. S. Redner, Physica D: Nonlinear Phenomena, **442**, 133551 (2022).
7. W. Feller, Stochastic processes: theory for applications, John Wiley & Sons, N.Y. (1991), v. 2 (v. 81), VI. 7, p. 189.
8. J. C. Tanner, Biometrika, **40**(1/2), 58 (1953).
9. J. Glaz, M. Kulldorff, V. Pozdnyakov, and J. M. Steele, Journal of Applied Probability **43**(1), 127 (2006).
10. V. T. Stefanov, Journal of Applied Probability **40**(4), 881 (2003).
11. V. T. Stefanov, S. Robin, and S. Schbath, Discrete Appl. Math. **155**(6–7), 868 (2007).
12. T. Haynes and E. A. Davis, Technometrics **12**(3), 697 (1970).
13. W. Feller, Stochastic processes: theory for applications, John Wiley & Sons, N.Y. (1991), v. 2 (v. 81), XI. 9, p. 380.
14. P. J. Aston and P. K. Marriott, Phys. Rev. E **57**(1), 1181 (1998).
15. W. Feller, Stochastic processes: theory for applications, John Wiley & Sons, N.Y. (1991), v. 2 (v. 81), VI. 7, p. 187.
16. K. R. Gabriel and J. Neumann, Q. J. R. Meteorol. Soc. **88**(375), 90 (1962).
17. J. R. Green, Journal of the Royal Statistical Society Series B: Statistical Methodology **26**(2), 345 (1964).
18. R. W. Katz, Journal of Applied Meteorology **671**, 1962 (1977).

19. X. Lana and A. Burgueño, International Journal of Climatology: A Journal of the Royal Meteorological Society **18**(7), 793 (1998).
20. D. S. Wilks and R. L. Wilby, Prog. Phys. Geogr. **23**(3), 329 (1999).
21. W. O. Ochola and P. Kerkides, Irrigation and drainage: the journal of the International Commission on Irrigation and Drainage **52**(4), 327 (2003).
22. W. W. Ng and U.S. Panu, J. Hydrol. Journal of hydrology **380**(1–2), 222 (2010).
23. S. N. Majumdar, P. von Bomhard, and J. Krug, Phys. Rev. Lett. **122**(15), 158702 (2019).
24. R. D. Stern and R. Coe, Journal of the Royal Statistical Society Series A: Statistics in Society **147**(1), 1 (1984).
25. K. R. Sreenivasan and A. Bershadskii, J. Stat. Phys. **125**(5), 1141 (2006).
26. P. Kailasnath and K. R. Sreenivasan, Physics of Fluids A: Fluid Dynamics **5**(11), 2879 (1993).
27. D. Cava, G. G. Katul, A. Molini, and C. Elefante, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **117**(D1), 1 (2012).
28. M. Heisel, Phys. Rev. Fluids **7**(1), 014604 (2022).
29. A. Bershadskii, J.J. Niemela, A. Praskovsky, and K. R. Sreenivasan, Phys. Rev. E **69**(5), 056314 (2004).
30. P. V. Bomhard, *Development of a statistical daily precipitation model and its application to precipitation records*, Doctoral dissertation, Universität zu Köln, Köln, Köln (2017).

Р О С С И Й С К А Я А К А Д Е М И Я Н А У К

**П И С Ъ М А**  
**В**  
**ЖУРНАЛ**  
**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ**  
**И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ**

**том 120**

Выпуск 10

25 ноября 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 *I. B. Подынглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

Web-страница <http://www.jetletters.ru>

# Мелкомасштабные световые структуры в керровской среде

В. П. Рубан<sup>1)</sup>

Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 25 сентября 2024 г.

После переработки 8 октября 2024 г.

Принята к публикации 9 октября 2024 г.

Для монохроматической слабонелинейной световой волны в керровской среде предложена система уравнений, которая до третьего порядка по амплитуде электрического поля эквивалентна известному уравнению  $\text{rot rot } \mathbf{E} = k_0^2[\mathbf{E} + \alpha|\mathbf{E}|^2\mathbf{E} + \beta(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E})\mathbf{E}^*]$ , но при этом новые уравнения гораздо более удобны для численного счета. В рамках этой системы промоделированы оптические поля с мелкими структурами всего в две-три длины волны. Обнаружено, что в некоторой области параметров возможен устойчивый самосфокусированный световой пучок (двумерный векторный солитон), и для этого модификация нелинейности совсем не обязательна. Рассчитаны “неупругие” столкновения двух таких тонких лучей, имеющих противоположные круговые поляризации. Кроме того, для дефокусирующей нелинейности приведены примеры взаимодействующих оптических вихрей, пространственного разделения круговых поляризаций, а также неустойчивости Кельвина–Гельмгольца.

**Введение.** Как известно, монохроматическая световая волна в прозрачной оптической среде с керровской нелинейностью описывается векторным нелинейным уравнением [1]

$$\text{rot rot } \mathbf{E} = k_0^2[\mathbf{E} + \alpha|\mathbf{E}|^2\mathbf{E} + \beta(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E})\mathbf{E}^*], \quad (1)$$

где  $\mathbf{E}(x, y, z)$  – комплексная амплитуда главной гармоники электрического поля,  $k_0$  – волновое число,  $\alpha$  и  $\beta$  – коэффициенты нелинейности (причем в пределе мгновенного нелинейного отклика имеет место равенство  $\beta = \alpha/2$ ). С помощью этого уравнения в принципе можно изучать очень широкий круг явлений, имеющих место в распространяющейся волне на малых масштабах, например, – внутреннюю пространственную динамику интенсивных узких световых пучков и их взаимодействие друг с другом с учетом обеих поляризаций. Другое очевидное применение – исследование нелинейных эффектов вблизи фокуса непараксиальной (т.е. собирающей свет под довольно широким углом) линзы. Но, к сожалению, уравнение (1) оказывается не вполне удобным, если “назначить” какую-либо из декартовых координат в качестве эволюционной переменной. Например, если имеются в виду волны, распространяющиеся в среднем вдоль оси  $z$ , то система не содержит эволюционных производных  $\partial_z E_z$  либо  $\partial_z^2 E_z$ , зато продольная компонента поля подчиняется сложному уравнению эллиптического типа по поперечным координатам. Эта трудность заставляет искать альтернативные подходы (см., например, [2–9] и ссылки там).

Наиболее популярным приближением является система связанных нелинейных уравнений Шредингера (НУШ), когда амплитуды  $A_{1,2}(x, y, z)$  левой и правой круговых поляризаций в выражении

$$\mathbf{E} \approx [(\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)A_1 + (\mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y)A_2] \exp(ik_0z)/\sqrt{2} \quad (2)$$

предполагаются медленными функциями. При полном пренебрежении продольной компонентой, получается пара НУШ [2]

$$-2ik_0\partial_z A_{1,2} = \Delta_\perp A_{1,2} + \alpha k_0^2 [|A_{1,2}|^2 + g|A_{2,1}|^2] A_{1,2}, \quad (3)$$

где параметр перекрестной фазовой модуляции  $g = 1 + 2\beta/\alpha$ . Эта система соответствует двум взаимодействующим квантовым жидкостям с плотностями  $I_{1,2} = |A_{1,2}|^2$ , причем количество каждой из них сохраняется вдоль  $z$ . Вообще, аналогия между светом и бимодальной квантовой жидкостью простирается довольно далеко (см., например, [3–5] и ссылки там).

В случае фокусирующей нелинейности (положительные  $\alpha$  и  $\beta$ ) из уравнений (3) следует хорошо известный результат о невозможности устойчивых двумерных солитонов – волновой пакет либо расплывается за счет дифракции, либо коллапсирует за счет нелинейности (см. [10, 11] и ссылки там). В качестве механизмов, противодействующих коллапсу на мелких масштабах (порядка длины волны  $\lambda_0 = 2\pi/k_0$ ), обычно рассматривают насыщение нелинейности либо даже смену ее знака при больших интенсивностях поля (см., например, [12–15]). Но это означает выход за рамки третьего порядка по амплитуде. Оставаясь в третьем порядке, можно попытаться учесть непараксиальные поправки, обусловленные неучтеными

<sup>1)</sup>e-mail: ruban@itp.ac.ru

в (3) членами. Модифицированные НУШ оказываются довольно сложными и при этом не вполне надежными, а их решение возможно только численными методами [6–8]. Поэтому при исследовании мелко-масштабных структур есть смысл с самого начала сосредоточиться на непертурбативных по поперечным волновым числам моделях.

В данной работе предлагается достаточно простой способ обойти трудности, связанные с векторной природой уравнения (1). Здесь представлена удобная для численного моделирования система уравнений, которая только начиная с пятого порядка по амплитуде поля отличается от исходного уравнения (1). Компьютерные эксперименты в рамках этой модели демонстрируют существование периодически самофокусирующихся оптических пучков (см. примеры на рис. 1, 2). Надо сказать, что подобное поведение уже наблюдалось ранее в некоторых численных работах, использующих менее аккуратные модели [7–9]. В пределе малой амплитуды радиальных колебаний это есть не что иное, как устойчивые двумерные солитоны (тонкие однородные по  $z$  лучи света), баланс которых достигается за счет нелинейной дифракции. Будет также представлен ряд других интересных численных примеров, демонстрирующих возможности нового подхода.

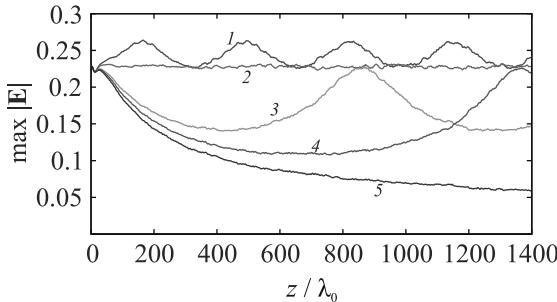


Рис. 1. (Цветной онлайн) Примеры зависимостей максимальной амплитуды поля при повторной самофокусировке для нескольких различных начальных ширин светового пучка (см. подробности в тексте).

**Модель.** Для начала вспомним тот известный факт, что в линейном случае замена зависимых переменных  $\mathbf{E} = \mathbf{u} + \nabla(\nabla \cdot \mathbf{u})/k_0^2$  расцепляет компоненты векторного уравнения  $\text{rot rot } \mathbf{E} = k_0^2 \mathbf{E}$  и приводит к трем скалярным уравнениям Гельмгольца для компонент вектора  $\mathbf{u}$ , поскольку член  $\nabla(\nabla \cdot \mathbf{u})$  благополучно сокращается. Идея теперь состоит в использовании для нелинейного уравнения (1) похожей подстановки

$$\mathbf{E} = U_1 \mathbf{e}_x + U_2 \mathbf{e}_y + \nabla(\partial_x U_1 + \partial_y U_2)/k_0^2 + \nabla\phi, \quad (4)$$

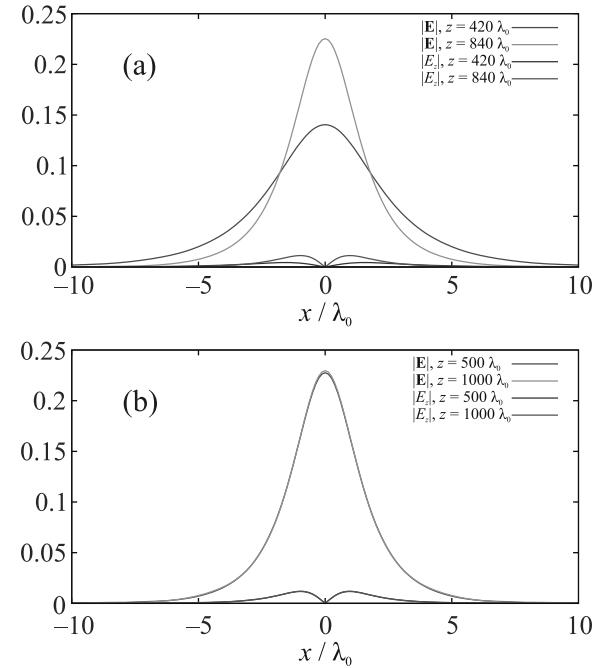


Рис. 2. (Цветной онлайн) Профили амплитуды поля: (а) – при минимальной и максимальной фокусировке периодически самофокусирующегося пучка, соответствующего линии 3 из рис. 1; (б) – в двух сечениях приблизительно сбалансированного пучка, соответствующего линии 2 из рис. 1 (в этом случае графики для разных  $z$  практически сливаются в один)

где компоненты  $U_1(x, y, z)$  и  $U_2(x, y, z)$  поперечного вектора  $\mathbf{U}$  имеют первый порядок малости, а дополнительный скалярный потенциал  $\phi(x, y, z)$  – величина третьего порядка малости, обусловленная нелинейностью. Обозначим для краткости

$$\mathbf{F} = \mathbf{U} + \nabla_{\perp}(\nabla_{\perp} \cdot \mathbf{U})/k_0^2 + \mathbf{e}_z(\nabla_{\perp} \cdot \partial_z \mathbf{U})/k_0^2. \quad (5)$$

Поле  $\mathbf{F}$  в основном порядке совпадает с  $\mathbf{E}$ , так что трехмерная векторная структура электрического поля в основном определяется всего двумя скалярными функциями – компонентами  $U_1(x, y, z)$  и  $U_2(x, y, z)$  (в том числе учитывается продольная компонента  $E_z$  – последнее слагаемое в (5)).

Важно, что при подстановке выражения (4) в уравнение (1) в нелинейных слагаемых функцию  $\phi$  можно не учитывать, поскольку соответствующие вклады имели бы пятый порядок и выше. В результате для поперечного вектора  $\mathbf{U}$  мы получаем уравнение

$$-(\partial_z^2 + \Delta_{\perp})\mathbf{U} = k_0^2[\mathbf{U} + \nabla_{\perp}\phi + \alpha|\mathbf{F}|^2\mathbf{F}_{\perp} + \beta(\mathbf{F} \cdot \mathbf{F})\mathbf{F}_{\perp}^*]. \quad (6)$$

В продольной компоненте уравнения (1) не остается членов первого порядка малости:

$$-\partial_z \phi = \alpha |\mathbf{F}|^2 F_z + \beta (\mathbf{F} \cdot \mathbf{F}) F_z^*. \quad (7)$$

Уравнения (5)–(7) и есть наша модель. Нелинейно-дифракционные эффекты в ней обусловлены присутствием производных в выражении (5).

**Численный метод.** Поскольку каждое из уравнений (6) и (7) разрешено относительно соответствующей старшей производной по  $z$ , эта система допускает довольно простое численное моделирование псевдоспектральным методом. Следует, однако, учесть необходимость регуляризации нелинейных уравнений на поперечных волновых векторах  $\mathbf{k}_\perp$ , превышающих  $k_0$  по абсолютной величине, поскольку на больших  $|\mathbf{k}_\perp|$  закон дисперсии  $k_z^2 = (k_0^2 - |\mathbf{k}_\perp|^2)$  не соответствует распространяющимся волнам. В нашем случае была использована регуляризация закона дисперсии

$$(k_0^2 - |\mathbf{k}_\perp|^2) \rightarrow k_0^2 - |\mathbf{k}_\perp|^2 [1 + |\mathbf{k}_\perp|^8/k_0^8]^{-1/4}. \quad (8)$$

Кроме того, после каждого шага интегрирования системы по координате  $z$  методом Рунге–Кutta 4-го порядка, все спектральные компоненты вблизи  $k_0$  и дальше отфильтровывались специально подобранный функцией  $f(|\mathbf{k}_\perp|)$ , уменьшающейся от единицы при  $|\mathbf{k}_\perp| \approx 0.9k_0$  до нуля при некотором  $K \approx 1.5k_0$ . В результате такой процедуры поперечные спектры оставались достаточно быстро (примерно экспоненциально) спадающими, и при  $|\mathbf{k}_\perp|$  в районе  $k_0$  оказывались на 3–4 десятичных порядка меньше основных спектральных компонент. Естественно также, что нелинейное “расползание” по спектру было тем медленнее, чем меньше уровень нелинейности (при таком выборе масштаба поля, который соответствует значению коэффициента  $|\alpha| = 1$ , нелинейность становится сильной при  $|E| \sim 1$ ; в наших вычислениях максимальные значения иногда доходили до значений 0.5–0.6, что соответствует все еще умеренной нелинейности; насколько приемлема такая интенсивность для реальной физической среды и не запускаются ли при этом неучтенные моделью (1) процессы – это другой вопрос [16]).

Вычислительная область представляла собой квадрат  $2\pi \times 2\pi$  с периодическими граничными условиями, и было взято безразмерное значение  $k_0 = 40$ . Шаг дискретизации по поперечным координатам был равен  $h_\perp = 2\pi/320$ , т.е. на длину волны  $\lambda_0$  приходилось 8 точек числовой решетки. Шаг по продольной координате в разных сериях экспериментов был  $h_z = 0.01\lambda_0$  либо  $h_z = 0.0004$ . Для

фокусирующей среды нелинейные коэффициенты были положены  $\alpha = 1$ ,  $\beta = 0.5$ , а в дефокусирующем случае  $\alpha = -1$ ,  $\beta = -0.5$ .

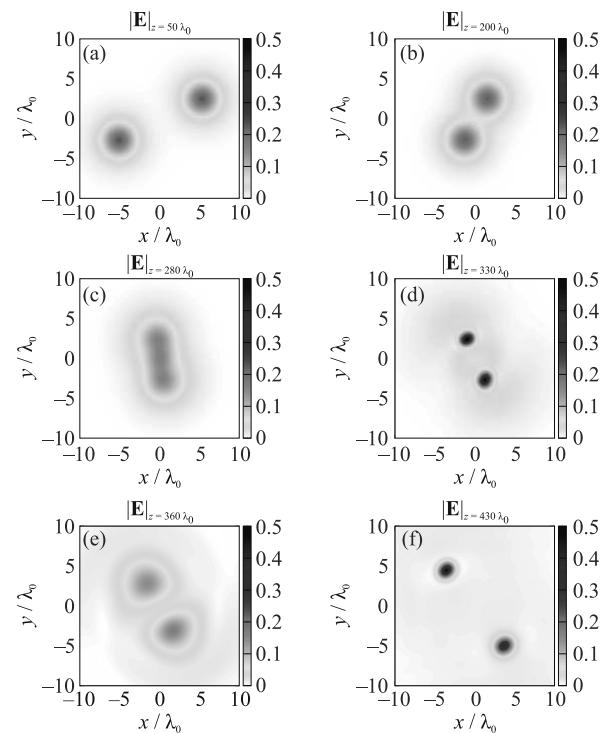


Рис. 3. (Цветной онлайн) Пример касательного столкновения двух тонких световых пучков с противоположными круговыми поляризациями. Показана не вся вычислительная область, а только ее центральная часть

**Двумерные солитоны.** Большой интерес представляет вопрос о возможном балансе между дифракцией и нелинейностью на малых масштабах, когда включаются непараксимальные эффекты и НУШ уже не применимы. Чтобы промоделировать поведение таких узких световых пучков, начальная конфигурация бралась в виде поляризованной по кругу волны

$$\mathbf{U}(x, y, 0) = (\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)S(x, y, w), \quad (9)$$

причем профиль  $S(x, y, w)$  примерно равен сумме двух гауссианов при достаточно больших значениях параметра  $w \sim 10$ :

$$S(x, y, w) = 0.10 \exp(-40[R(x) + R(y)]) + \\ + 0.06 \exp(-w[R(x) + R(y)]), \quad (10)$$

где  $R(\xi) = (1 - \cos(\xi))[1 + (1 - \cos(\xi))/6] \approx \xi^2/2$ . В этом выражении параметры подбирались грубо, после всего нескольких пробных симуляций, поэтому не следует воспринимать его слишком серьезно.

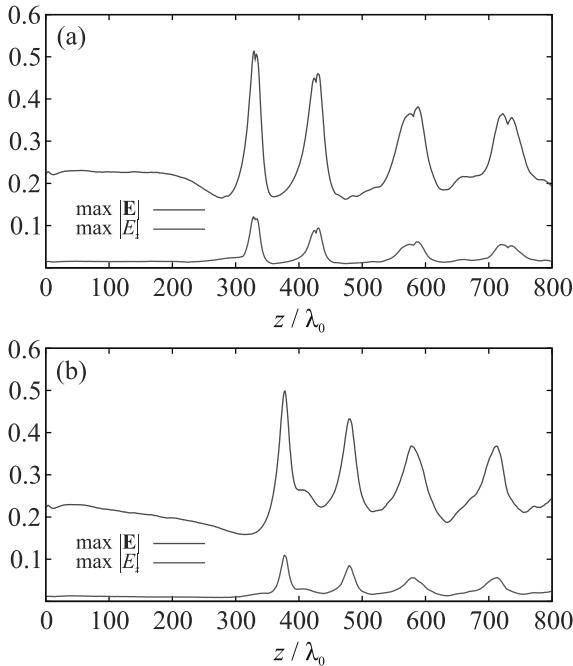


Рис. 4. (Цветной онлайн) Примеры зависимостей максимальной амплитуды поля от координаты  $z$  при взаимодействии двух пучков с противоположными круговыми поляризациями: (а) – для касательного столкновения, показанного на рис. 3; (б) – для исходно параллельных пучков

Здесь надо сказать, что наша модель, как и должно быть, может содержать в своих решениях как прямую волну [ $\sim \exp(ik_0z)$ ], так и встречную [ $\sim \exp(-ik_0z)$ ]. Чтобы сделать встречную волну пренебрежимо слабой, начальная производная была  $\partial_z \mathbf{U}(x, y, 0) = 1.01ik_0\mathbf{U}(x, y, 0)$ . Начальный потенциал  $\phi(x, y, 0)$  полагался равным нулю.

На рисунке 1 показано, как зависела от  $z$  максимальная амплитуда электрического поля при значениях  $w = 7.9, 8.0, 8.2, 8.25, 8.3$  (номера линий соответственно от 1 до 5). Видно, что поведение кривых напоминает сильно ангармонические одномерные колебания некоторой фиктивной частицы в несимметричном потенциале, за исключением последнего апериодического случая. Это соответствует многократной повторной самофокусировке светового пучка. Пример профилей амплитуды поля в минимуме и в максимуме представлен на рис. 2а. Заметим также, что при  $w = 8.0$  радиальные колебания настолько малы, что можно говорить о сбалансированном, однородном по  $z$  двумерном солитоне, что подтверждает рис. 2б.

Вполне вероятно, что существует близкая к нашей модели гамильтонова система, в которой подоб-

ные векторные солитоны являются устойчивыми экстремалями. Поиск такой консервативной системы – задача на будущее.

И раз уж мы получили такие, по-видимому, устойчивые (по крайней мере – длительно существующие) световые лучи, интересно промоделировать их взаимодействие при разных начальных положениях и направлениях по отношению к оси  $z$ . Пример касательного столкновения двух пучков, имеющих противоположные круговые поляризации, представлен на рис. 3 (цветовая палитра там взята “в негативе”, чтобы хорошо визуализировались области малой амплитуды поля). В этом случае начальный профиль был

$$\mathbf{U}(x, y, 0) = (\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)S(x - 1.0, y - 0.4, 8.0)e^{-ix} - \\ - (i\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y)S(x + 1.0, y + 0.4, 8.0)e^{ix}. \quad (11)$$

Два солитона при взаимодействии частично обменивались своими поляризациями, в результате чего от места столкновения разошлись два слегка различных пучка с уже примерно линейными поляризациями, причем оба в сильно-колебательном режиме и под некоторым углом рассеяния, зависящим от скорости сближения и прицельного параметра. Отмеченное небольшое различие рассеянных пучков обусловлено отсутствием симметрии в начальном условии и свидетельствует об эффектах, выходящих за рамки НУШ. Небольшая часть энергии при столкновении излучилась в виде “свободной” волны малой амплитуды. Зависимость максимальной амплитуды поля для этого численного эксперимента показана на рис. 4а. На панели (б) того же рисунка показана максимальная амплитуда для случая исходно параллельных близких пучков, когда начальное состояние задавалось функцией

$$\mathbf{U}(x, y, 0) = (\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)S(x - 0.4, y - 0.4, 8.0) - \\ - (i\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y)S(x + 0.4, y + 0.4, 8.0). \quad (12)$$

Необходимо сказать, что неупругость столкновений особенно наглядно проявляется именно при параллельных начальных пучках, потому что после взаимодействия они расходятся в пространстве под вполне конечными углами.

Похожий в качественном отношении частичный обмен поляризациями при столкновении уединенных структур наблюдался в недавней работе [17] для трехмерных “световых пуль”.

Во всех вышеприведенных примерах начальная интенсивность уже была достаточно высока, аоперечный масштаб достаточно мал, так что многократного усиления волны не происходило. Разумеется, наш метод способен моделировать также и

сильную относительную фокусировку, когда интенсивность волны увеличивается на несколько порядков. Для этого необходимо только использовать более мелкое пространственное разрешение и большие значения  $k_0$ . Пример сильной нелинейной фокусировки света после “плохой” линзы показан на рис. 5 для  $k_0 = 60$ . В данном численном эксперименте абсолютное значение электрического поля увеличилось более чем в 10 раз, т.е. интенсивность – на два порядка. Надо сказать, что системы с еще более сильной относительной фокусировкой можно моделировать в два этапа. Начальное распространение света, происходящее в линейном режиме, можно вычислить методами теории линейной дифракции. А уже перед началом нелинейного режима следует использовать полученное линейное решение в качестве начального состояния для сильно нелинейных вычислений.

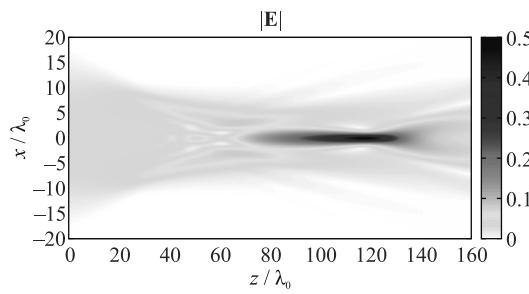


Рис. 5. (Цветной онлайн) Нелинейная фокусировка поляризованной по кругу волны после несовершенной линзы, у которой центральная часть почти не отклоняет лучи. Показано распределение амплитуды поля в продольной плоскости  $y = 0$ . Сфокусированная структура имеет форму тонкой иглы

**Структуры в дефокусирующем среде.** Приведем кратко, не вдаваясь в подробности, несколько численных примеров и для дефокусирующего случая. При такой нелинейности интерес представляют мелкомасштабные структуры на более-менее однородном фоне интенсивности. Самые известные из них – оптические вихри (см., например, [18–24] и ссылки там). Поскольку в длинно-масштабном приближении (связанные НУШ) базисными являются круговые поляризации, в наших численных экспериментах с вихрями именно циркулярно поляризованная волна была фоном. Пример двух пар вихрь–антивихрь показан на рис. 6. Видно, что ширина сердцевин вихрей составляет всего пару длин волн при амплитуде фона около 0.3.

Другой интересный объект в дефокусирующем среде – доменная стенка между двумя противоположными круговыми поляризациями [25–31]. Для су-

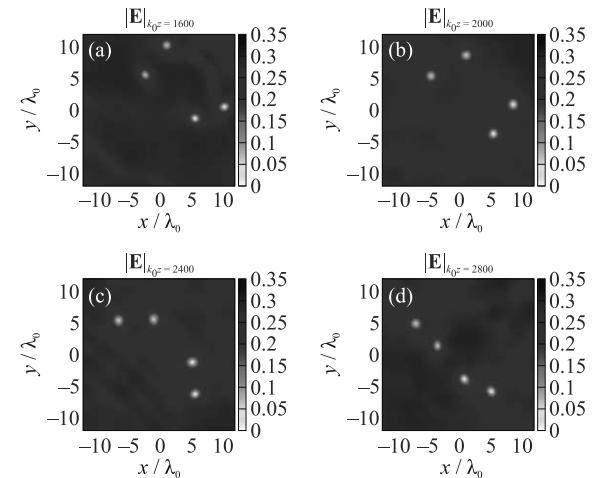


Рис. 6. (Цветной онлайн) Пример взаимодействующих оптических вихрей в поляризованной по кругу волне при дефокусирующющей нелинейности

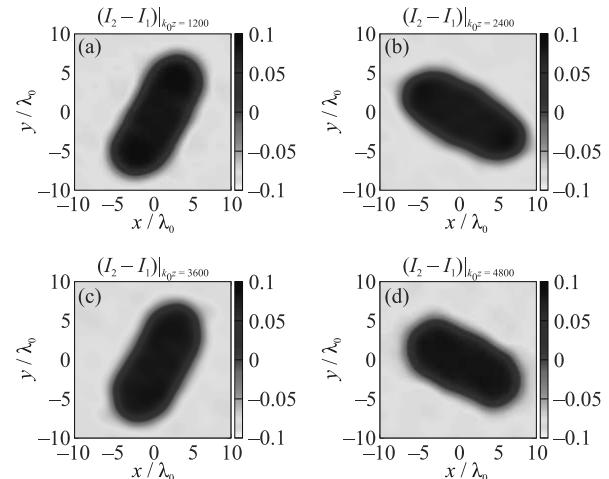


Рис. 7. (Цветной онлайн) Пример оптического пузыря в дефокусирующем среде. При увеличении  $z$  имеют место квадрупольные колебания формы доменной стенки

ществования такой структуры в рамках связанных НУШ требуется условие  $\beta/\alpha > 0$ , которое у нас выполнено. На рисунке 7 приведен пример оптического пузыря, границей которого является доменная стенка. Поскольку начальное состояние не было равновесным, пузырь испытывает колебания за счет эффективного “поверхностного натяжения” [32].

Если пространственно разделенные круговые поляризации находятся в касательном движении одна относительно другой вдоль доменной стенки, то становится возможной неустойчивость Кельвина–Гельмгольца в ее “квантовом” варианте [33–36]. Последовательные стадии такой неустойчивости, при начальном состоянии в виде слегка искаженных

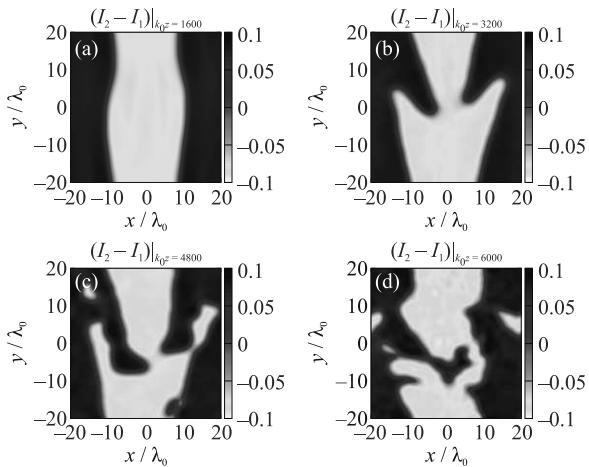


Рис. 8. (Цветной онлайн) Пример развития оптической неустойчивости Кельвина–Гельмгольца

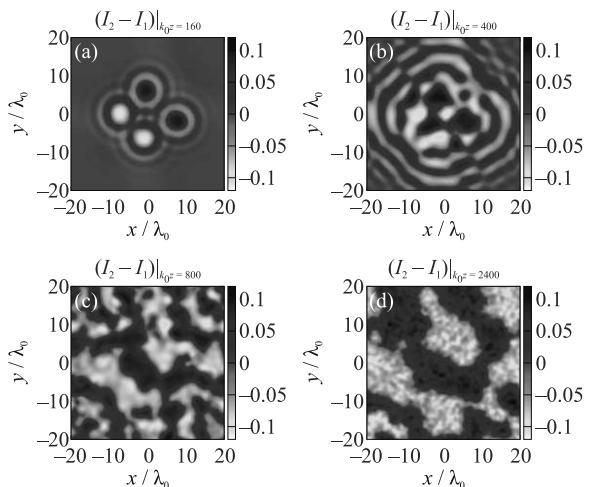


Рис. 9. (Цветной онлайн) Пример развития неустойчивости линейно поляризованной волны в дефокусирующей среде. По мере увеличения координаты  $z$  происходит разделение волны на области с правой и левой круговыми поляризациями

“скользящих” полос левой и правой поляризации, видны на рис. 8.

И в последнем примере на рис. 9 показан процесс развития неустойчивости линейно поляризованной волны. В начальном состоянии имелась пространственно неразделенная суперпозиция лево- и право-поляризованных волн, причем в каждой компоненте присутствовало по паре вихрей – “для затравки”. С увеличением  $z$  сердцевина каждого вихря начинает заполняться противоположной поляризацией, появляются специфические волны модуляции, а затем формируется квазислучайная картина доменов, напоминающая географическую карту.

**Заключение.** Предложенная в этой работе модель продемонстрировала свою состоятельность в качестве полезного рабочего инструмента для изучения строго монохроматических нелинейных волн. В целом ряде интересных задач можно будет добиться существенного продвижения с помощью этого метода. Следует также попытаться найти явно консервативные динамические системы, близкие к нашей модели, чтобы лучше понимать вопросы устойчивости мелкомасштабных структур.

Проблема пространственно-временного развития полученных стационарных картин при малых немонохроматических возмущениях требует отдельного исследования. Например, пока не ясно, как далеко может распространяться самосфокусированный тонкий пучок под воздействием хроматической дисперсии. Особое внимание в этой связи должны вызывать также квазицилиндрические структуры с доменными стенками, поскольку в случае аномальной дисперсии групповой скорости они стремятся разбиться на трехмерные “капли” [37]. Но можно надеяться, что, поскольку характерные продольные масштабы (порядка сотен и тысяч длин волн) в наших численных опытах оказались не слишком велики по сравнению с доступной длиной когерентности падающего лазерного света, то при достаточно большой длине когерентности стационарная картина просто не успеет сильно испортиться на таких дистанциях.

**Финансирование работы.** Работа выполнена в рамках госзадания по теме FFWR-2024-0013.

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

- Л. Д. Ландау, Е. М. Лицшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, М. (1982).
- А. Л. Берхор, В. Е. Захаров, ЖЭТФ **58**, 903 (1970).
- I. Carusotto and C. Ciuti, Rev. Mod. Phys. **85**, 299 (2013).
- G. I. Martone, T. Bieniaime, and N. Cherroret, Phys. Rev. A **104**, 013510 (2021).
- G. I. Martone and N. Cherroret, Phys. Rev. Lett. **131**, 013803 (2023).
- S. Chi and Q. Guo, Opt. Lett. **20**, 1598 (1995).
- B. A. Malomed, K. Marinov, D. I. Pushkarov, and A. Shivarova, Phys. Rev. A **64**, 023814 (2001).
- G. Fibich and B. Ilan, Phys. Rev. E **67** 036622 (2003).
- C. S. Milsted, Jr. and C. D. Cantrell, Phys. Rev. A **53**, 3536 (1996).
- L. Berge, Phys. Rep. **303**, 259 (1998).
- В. Е. Захаров, Е. А. Кузнецов, Успехи физических наук **182**, 569 (2012).

12. F. Bouchard, H. Larocque, A. M. Yao, C. Travis, I. De Leon, A. Rubano, E. Karimi, G.-L. Oppo, and R. W. Boyd, Phys. Rev. Lett. **117**, 233903 (2016).
13. C. J. Gibson, P. Bevington, G.-L. Oppo, and A. M. Yao, Phys. Rev. A **97**, 033832 (2018).
14. D. Mihalache, D. Mazilu, L.-C. Crasovan, I. Towers, A. V. Buryak, B. A. Malomed, L. Torner, J. P. Torres, and F. Lederer, Phys. Rev. Lett. **88**, 073902 (2002).
15. D. Mihalache, D. Mazilu, I. Towers, B. A. Malomed, and F. Lederer, Phys. Rev. E **67**, 056608 (2003).
16. A. Couairon and A. Mysyrowicz, Phys. Rep. **441**, 47 (2007).
17. В. П. Рубан, Письма в ЖЭТФ **119**, 579 (2024).
18. G. A. Swartzlander, Jr. and C. T. Law, Phys. Rev. Lett. **69**, 2503 (1992).
19. *Optical Vortices*, ed. by M. Vasnetsov and K. Staliunas, Nova Science, N.Y. (1999).
20. L. Pismen, *Vortices in Nonlinear Fields*, Oxford University, London (1999).
21. 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).
22. M. J. Paz-Alonso and H. Michinel, Phys. Rev. Lett. **94**, 093901 (2005).
23. В. П. Рубан, Письма в ЖЭТФ **117**, 590 (2023).
24. В. П. Рубан, ЖЭТФ **164**, 863 (2023).
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. Kivhsar 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. В. П. Рубан, Письма в ЖЭТФ **117**, 292 (2023).
31. В. П. Рубан, Письма в ЖЭТФ **120**, 104 (2024).
32. K. Sasaki, N. Suzuki, and H. Saito, Phys. Rev. A **83**, 033602 (2011).
33. H. Takeuchi, N. Suzuki, K. Kasamatsu, H. Saito, and M. Tsubota, Phys. Rev. B **81**, 094517 (2010).
34. N. Suzuki, H. Takeuchi, K. Kasamatsu, M. Tsubota, and H. Saito, Phys. Rev. A **82**, 063604 (2010).
35. H. Kokubo, K. Kasamatsu, and H. Takeuchi, Phys. Rev. A **104**, 023312 (2021).
36. В. П. Рубан, ЖЭТФ **165**, 294 (2024).
37. K. Sasaki, N. Suzuki, and H. Saito, Phys. Rev. A **83**, 053606 (2011).

# Генерация и поглощение фотонов двухуровневым атомом в режиме ультрасильной связи с ЭМ полем

A. B. Козловский<sup>1)</sup>

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

Поступила в редакцию 2 октября 2024 г.

После переработки 9 октября 2024 г.

Принята к публикации 9 октября 2024 г.

В рамках квантовой модели Раби теоретически показано, что двухуровневый атом генерирует или поглощает фотоны в условиях ультрасильной связи его с электромагнитным полем. Генерация фотонов возможна, если поле первоначально находится в вакуумном состоянии. Возможным, при определенных начальных состояниях системы атом + поле, также является поглощение фотонов в моде поля в режиме ультрасильной связи атома и поля. Если атом в начальный момент времени находится в нижнем (невозбужденном) состоянии, а поле – в вакуумном состоянии, генерация фотонов присутствует в резонансных условиях  $\omega_a \approx \omega_f$ ,  $\omega_a$  – частота перехода атома, а  $\omega_f$  – частота поля, или  $\xi \equiv \omega_a/\omega_f \approx 1$ , в режиме ультра сильной связи. При отрицательной отстройке  $\xi \ll 1$ ,  $\omega_a \ll \omega_f$  для динамики среднего числа фотонов  $\langle \hat{n} \rangle_t$  поля характерны осцилляции Раби с  $0 \leq \langle \hat{n} \rangle_t \leq n_{\max} \gg 1$  в случае ультрасильной связи для значений константы связи атома с полем  $\tilde{g} \equiv |g|/\omega_f \sim 1$ , при этом населенность возбужденного состояния атома составляет  $P_e(t) \approx 0.5$ . В условиях большой положительной отстройки:  $\xi \gg 1$  генерация фотонов отсутствует:  $\langle \hat{n} \rangle \approx 0$ , а атом остается в исходном состоянии  $P_e(t) \approx 0$ . Статистика фотонов в режиме генерации близка к хаотической: дисперсия фотонов значительно превышает уровень когерентного состояния поля (т.е. является суперпуассоновской). Поглощение фотонов поля без возбуждения атома присутствует в режиме ультра сильной связи в случае когерентного начального состояния поля ( $\langle \hat{n}(t=0) \rangle > 0$ ) для определенных положительных значений отстройки. При этом поле становится субпуассоновским.

DOI: 10.31857/S0370274X24110144, EDN: KIJQOK

**1. Введение.** Основным фундаментальным физическим процессом, исследуемым в области квантовой оптики, является динамика взаимодействия атома/молекулы с квантовомеханическим электромагнитным (ЭМ) полем. При исследованиях таких процессов важными изучаемыми (рассчитываемыми или измеряемыми) физическими величинами являются средние квантовомеханическое значение числа фотонов поля и дисперсия (флуктуации) этой величины, а также средние квантовомеханические значения населенностей квантовых состояний атома (уровней энергии) и их флуктуации (дисперсии), и средние значения и флуктуации разностей населенностей рассматриваемых состояний атома или молекулы. Другими фундаментальными величинами, характеризующими систему атомов и ЭМ полей, являются средние значения амплитуды поля и их квантовые флуктуации.

Эволюция (изменение во времени) квантовомеханического вектора состояния системы атом + поле  $|\Psi(t)\rangle$  может быть найдена для любого началь-

ного состояния системы  $\Psi(t=0)\rangle$  путем решения уравнения Шредингера в модели Раби (МР). МР в дипольном приближении для двухуровневого атома [1–4] учитывает как реальные переходы атома с излучением или поглощением фотонов поля, так и виртуальные процессы, означающие излучение фотона, сопровождающееся возбуждением атома, а также поглощение фотона, сопровождаемое переходом атома в нижнее энергетическое состояние. Широко используемой приближенной теорией, основанной на квантовой МР, является модель Джейнса–Каммингса (МДК), в рамках которой в гамильтониане взаимодействия атома с полем пренебрегается членами ответственными за виртуальные процессы. МДК (приближение врачающейся волны (RWA)) положена в основу квантовой теории лазера. Как показали расчеты [5–23], применимость МДК ограничивается случаем малости величины константы взаимодействия атома с полем по сравнению с частотой ЭМ поля. Предсказания МДК и МР для средних и дисперсий числа фотонов и населенностей атомных уровней совпадают между собой лишь в случае, ко-

<sup>1)</sup>e-mail: kozlovskiyav@lebedev.ru

гда абсолютная величина константы взаимодействия  $|g| < 10^{-2}\omega_f$ , где  $\omega_f$  – частота поля.

В настоящее время в ряде экспериментальных работ [1–4] показана возможность создания “искусственного двухуровневого атома”, обладающего величиной константы взаимодействия атома с полем  $\tilde{g} \equiv |g|/\omega_f \sim 1$ , т.е. значений, характерных для ультрасильной связи (УСС) атома с полем. В таких условиях, как показано в теоретических работах [5–24], МДК для динамики среднего числа фотонов и населенности состояний атома перестает быть справедливой.

В данной работе нами проведены исследования эволюции средних квантовомеханических величин для оператора числа фотонов поля в условиях УСС и проведено сравнение эволюции средних величин и квантовых флюктуаций этого оператора для различных начальных квантовых состояний ЭМ поля и двухуровневого атома для МР и МДК.

Рассмотрен случай микроскопических полей с малым числом фотонов, т.е. полей, используемых в настоящее время в экспериментах, связанных с квантовой информацией и квантовым компьютером.

Условие сильной связи поля в резонаторе с атомом рассматривается как соотношение между константой связи атома с полем  $|g|$  и константами скоростей диссипации поля в резонаторе:  $\gamma_r$  – скорость потерь резонатора,  $\Gamma_s$  – скорость спонтанного излучения (релаксации) атома и  $\gamma_{ph}$  – скорость фазовой релаксации (декогерентизации) атома [16]. Такое соотношение представляет собой:  $|g| \sim \omega_f \gg \gamma_r, \Gamma_s, \gamma_{ph}$  [16].

В данной работе предполагается, что такое соотношение выполняется, и процессы диссипации системы атом + поле в расчетах не рассматриваются, поскольку члены диссипации (релаксации) системы пренебрежимо малы по сравнению с членами, ответственными за взаимодействие атома с полем в условиях УСС  $\tilde{g} \equiv |g|/\omega_f \sim 1$ .

**2. МР и МДК дипольного взаимодействия двухуровневого атома с ЭМ.** Рассмотрим операторы рождения (уничтожения)  $\hat{a}^+$  ( $\hat{a}$ ) ЭП, удовлетворяющие следующим коммутационным соотношениям:  $[\hat{a}, \hat{a}^+] = 1$  и оператор числа фотонов, который определяется с помощью таких операторов согласно  $\hat{n} = \hat{a}^+ \hat{a}$ .

В случае дипольного взаимодействия атома с полем гамильтониан такой системы в квантовой теории может быть записаны в виде (гамильтониан МР для двухуровневого атома, взаимодействующего с однодомовым ЭМ полем):

$$\hat{H}_R = \hbar\omega_f \hat{a}^+ \hat{a} + \frac{\hat{\sigma}^z}{2} \hbar\omega_a + \hbar\hat{V}_R, \quad (1)$$

где оператор дипольного взаимодействия атома с полем есть

$$\begin{aligned} \hat{V}_R &= (g\hat{a}^+ + g^*\hat{a})(\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-) = \\ &= g\hat{a}\hat{\sigma}_+ + \hat{a}^+\hat{\sigma}_-g^* + g\hat{a}^+\hat{\sigma}_+ + \hat{a}^+\hat{\sigma}_-g^*, \end{aligned} \quad (2)$$

для следующих операторов атомной подсистемы

$$\hat{\sigma}^z = |e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|, \quad \hat{\sigma}_+ = |e\rangle\langle g|, \quad \hat{\sigma}_- = |g\rangle\langle e|, \quad (3)$$

и константы дипольного взаимодействия поля с атомом

$$g = \sqrt{\frac{\omega_f}{2\hbar\varepsilon_0 V}} d, \quad (4)$$

где  $d \equiv \langle g|\hat{d}|e\rangle = |d_{eg}|e^{i\varphi_d}$  – матричный элемент дипольного перехода атома, в общем случае являющимся комплексным числом.  $V$  в формуле (4) – объем квантования ЭМ,  $\omega_f$  – частота ЭМ поля.

В представлении взаимодействия гамильтониан взаимодействия атома с полем приобретает вид

$$\begin{aligned} \hat{V}_{R,I} &= |g|(\hat{a}\hat{\sigma}_+e^{-i\Delta_-t} + \hat{a}^+\hat{\sigma}_-e^{i\Delta_-t} + \\ &+ \hat{a}^+\hat{\sigma}_+e^{i\Delta_+t} + \hat{a}\hat{\sigma}_-e^{-i\Delta_+t}), \end{aligned} \quad (5)$$

а уравнение Шредингера для вектора состояния системы атом + поле может быть записано в представлении взаимодействия следующим образом

$$i\frac{d}{dt}|\Psi(t)\rangle = \hat{V}_I|\Psi(t)\rangle. \quad (6)$$

Будем решать уравнение движения (6), используя следующее разложение вектора состояния системы по полному базису фоковских состояний поля  $|n\rangle$  и возбужденному и нижнему энергетическим состояниям двухуровневого атома  $|e\rangle$  и  $|g\rangle$ , соответственно.

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} [C_{e,n}(t)|e,n\rangle + C_{g,n}(t)|g,n\rangle], \quad C_{g,0}(t) = 0. \quad (7)$$

Уравнения для амплитуд вероятности, входящих в (7), как следует из уравнения (6), имеют в этом случае вид

$$\begin{aligned} \frac{dC_{e,n}(t)}{dt} &= -i|g|[\sqrt{n+1}e^{i\Delta_-t-i\varphi_d}C_{g,n+1}(t) + \\ &+ \sqrt{n}e^{i\Delta_+t+i\varphi_d}C_{g,n-1}(t)], \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{g,n}(t)}{dt} &= -i|g|[\sqrt{n+1}e^{-\Delta_-t+i\varphi_d}C_{e,n+1}(t) + \\ &+ \sqrt{n}e^{-i\Delta_+t-i\varphi_d}C_{e,n-1}(t)], \end{aligned} \quad (9)$$

где обозначено  $\Delta \equiv \omega_a - \omega_f$ ,  $\Delta_+ \equiv \omega_f + \omega_a$ ,  $g = |g|e^{i\varphi_d}$ .

Введем далее следующие безразмерные параметры:  $\tilde{\Delta}_- \equiv \frac{\omega_a - \omega_f}{|g|}$ ,  $\tilde{\Delta}_+ \equiv \frac{\omega_a + \omega_f}{|g|}$ . А также

$$\begin{aligned}\Omega_n &\equiv \sqrt{\tilde{\Delta}_-^2 + 4(n+1)}, \\ \Omega_{n-1} &\equiv \sqrt{\tilde{\Delta}_-^2 + 4n}, \quad t_g \equiv |g|t.\end{aligned}\quad (10)$$

Предположим далее, что частота ЭМ поля в общем случае не совпадает с частотой перехода атома, и константа  $g$  взаимодействия поля с атомом является комплексным числом, а в гамильтониане взаимодействия атома с полем (5) два последних слагаемых, ответственных за виртуальные переходы, равны нулю (приближение вращающейся волны). Тогда уравнение Шредингера для атома в поле может быть решено аналитически. Точное аналитическое решение системы уравнений в приближении вращающейся волны МДК (коэффициенты разложения по фоковским состояниям  $C_{e,n}(t)$  и  $C_{g,n}(t)$ ) для гамильтониана ДК

$$\hat{H}_{JC} = \hbar\omega_f \hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{\sigma^z}{2} \hbar\omega_a + \hbar(g\hat{a}\hat{a}^\dagger + \text{h.c.}) \quad (11)$$

могут быть записаны в виде

$$C_{e,n}(t_g) = C_{e,n}(0)A_n(t_g) - C_{g,n+1}(0)B_n(t_g), \quad (12a)$$

$$C_{g,n}(t_g) = C_{g,n}(0)A_{n-1}(t_g) + C_{e,n-1}(0)B_{n-1}^*(t_g), \quad (12b)$$

где обозначено

$$A_n(t_g) \equiv \left[ \cos(\Omega_n t_g/2) - \frac{i\tilde{\Delta}_-}{\Omega_n} \sin(\Omega_n t_g/2) \right] e^{i\tilde{\Delta}_- t_g/2}, \quad (13a)$$

$$B_n(t_g) \equiv 2i \frac{\sqrt{n+1}}{\Omega_n} \sin(\Omega_n t_g/2) e^{i\varphi_d} e^{i\tilde{\Delta}_- t_g/2}. \quad (13b)$$

**3. Динамика квантовомеханических средних и флуктуаций операторов числа фотонов поля.** Среднее квантовомеханическое значение оператора числа фотонов поля для любого квантового состояния поля  $|\Psi(t)\rangle$ , выражаются через коэффициенты разложения по фоковским состояниям  $C_{e,n}(t)$  и  $C_{g,n}(t)$ , имеет вид

$$\begin{aligned}\langle \hat{n}(t) \rangle &= \langle \Psi(t) | \hat{a}^\dagger \hat{a} | \Psi(t) \rangle = \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} n [C_{e,n}^*(t) C_{e,n}(t) + C_{g,n}^*(t) C_{g,n}(t)].\end{aligned}\quad (14)$$

Для среднего квадрата оператора числа фотонов, необходимых для расчета дисперсий (флуктуаций) этой величины, для произвольных состояний поля и атома  $\Psi(t)\rangle$  находим

$$\begin{aligned}\langle \Psi(t) | \hat{n}^2 | \Psi(t) \rangle &= \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} n^2 [C_{e,n}^*(t) C_{e,n}(t) + C_{g,n}^*(t) C_{g,n}(t)].\end{aligned}$$

И, следовательно, дисперсия числа фотонов есть

$$\begin{aligned}\langle (\Delta \hat{n})^2(t) \rangle &= \langle \Psi(t) | \hat{n}^2 | \Psi(t) \rangle - \langle \Psi(t) | \hat{n} | \Psi(t) \rangle^2 = \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} n^2 [|C_{e,n}(t)|^2 + |C_{g,n}(t)|^2] - \\ &- \left\{ \sum_{n=0}^{\infty} n [|C_{e,n}(t)|^2 + |C_{g,n}(t)|^2] \right\}^2. \quad (15)\end{aligned}$$

Использование соотношений (15) позволяет найти выражения для дисперсий (флуктуаций) оператора числа фотонов  $\langle (\Delta \hat{n})^2(t) \rangle \equiv \langle (\hat{a}^\dagger \hat{a} - \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle)^2(t) \rangle$  путем численного решения системы связанных дифференциальных уравнений (8)–(10) в рамках МР для гамильтониана Раби.

Оператор числа возбуждений системы двухуровневый атом + одномодовое поле

$$\hat{N}_e = \hat{n} + |e\rangle\langle e| \quad (16)$$

не зависит от времени взаимодействия атома с полем в случае МДК, поскольку  $[\hat{H}_{JC}, \hat{N}_e] = 0$ , и зависит от времени в случае МР, так как  $[\hat{H}_R, \hat{N}_e] \neq 0$ , в то же время “комбинированный оператор четности” системы следующего вида [11–13, 17]:

$$\hat{\Pi} \equiv -\hat{\sigma}_Z e^{i\pi\hat{n}} \quad (17)$$

не меняется во времени при взаимодействии атома с полем [11, 12, 13, 17] в рамках квантовой МР. Для коммутатора оператора числа возбуждений системы и гамильтониана Раби находим

$$[\hat{N}_e, \hat{H}_R] = \hbar(ga^+\sigma_+ - \text{h.c.}), \quad (18)$$

из формулы (18) следует, что данный коммутатор близок к нулю лишь для малых значений  $\tilde{g} \equiv \equiv |g|/\omega_f \omega_f \approx 0$ . Из соответствующего уравнения Гейзенберга для среднего от оператора числа возбуждений поля и атома  $\hat{N}_e(t)$ :

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{N}_e \rangle = \frac{1}{i\hbar} \langle [\hat{N}_e, \hat{H}_R] \rangle = 4 \text{Im}(g\langle a^+\sigma_+ \rangle), \quad (19)$$

следует, что число возбуждений и энергия системы сохраняются во времени в случае, если операторы поля и атома не коррелируют между собой:

$$\langle a^+\sigma_+ \rangle \approx 0. \quad (20)$$

Также условием сохранения числа возбуждений и энергии системы в квантовой МР является условие

$$g\langle a^+\sigma_+ \rangle \in \text{Re}, \forall t, \quad (21)$$

т.е. в случае, когда данная величина является действительным числом в любой момент времени.

#### 4. Вакуумное начальное состояние поля.

Рассмотрим случай, когда исходное поле при  $t = 0$  находится в вакуумном состоянии  $|n_0 = 0\rangle$ . При этом, в общем случае, начальные значения коэффициентов разложения вектора состояния системы, отличными от нуля, являются  $C_{s,n_0}(0) \neq 0$ ,  $s = e, g$ , а все остальные  $C_{s,n_0}(0) = 0$ ,  $n \neq n_0$ .

В этом случае решение модели ДК (12), (13), использующей приближение RWA, приобретает следующий вид:

$$C_{e,n_0}(t_g) = C_{e,n_0}(0)A_{n_0}(t_g), \quad (22a)$$

$$C_{e,n_0-1}(t_g) = -C_{g,n}(0)B_{n_0-1}(t_g), \quad (22b)$$

$$C_{g,n_0}(t_g) = C_{g,n_0}(0)A_{n_0-1}^*(t_g), \quad (22c)$$

$$C_{g,n_0+1}(t_g) = C_{g,n_0}(0)B_{n_0}^*(t_g). \quad (22d)$$

Остальные  $C_{e,n}(t_g) = C_{g,n}(t_g) = 0$  для  $n \neq n_0$ ,  $n_0 - 1$  или  $n \neq n_0$ ,  $n_0 + 1$  соответственно. Для безразмерного времени в (16) использовано обозначение:  $t_g \equiv |g|t$ .

Если начальное состояние атома  $|e\rangle$ , то ненулевыми коэффициентами разложения вектора состояния системы являются:

$$C_{e,n_0}(t_g) = C_{e,n_0}(0)A_{n_0}(t_g), \quad (23a)$$

$$C_{g,n_0+1}(t_g) = C_{e,n_0}(0)B_{n_0}^*(t_g). \quad (23b)$$

Если же начальное состояние атома  $|g\rangle$ , то ненулевыми являются зависимости от времени

$$C_{e,n_0-1}(t_g) = -C_{g,n}(0)B_{n_0-1}(t_g), \quad (24a)$$

$$C_{g,n_0}(t_g) = C_{g,n_0}(0)A_{n_0-1}^*(t_g). \quad (24b)$$

Таким образом, в случае начального вакуумного состояния поля и атома в нижнем состоянии МДК предсказывает сохранение неизменным состояния системы для любого момента времени.

На рисунках 1a, b показаны зависимости от времени среднего квантовомеханического среднего  $\langle \hat{n}(t) \rangle_{n,\text{MR}}$  (рис. 1a) и дисперсии  $\langle (\Delta \hat{n})^2(t) \rangle_{n,\text{MR}}$  (рис. 1b) в условиях УСС для начального состояния

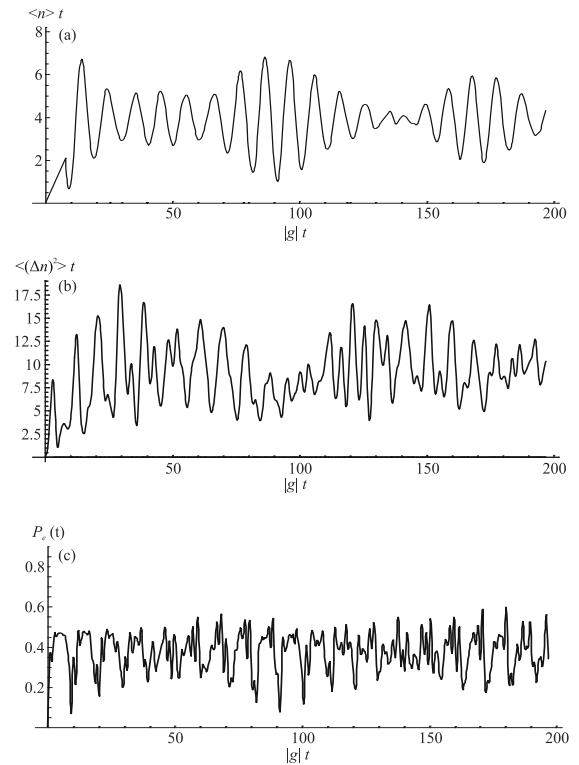


Рис. 1. (a) – Зависимость от времени среднего значения оператора числа фотонов поля, следующая из модели Раби для системы атом + поле в начальном вакуумном состоянии поля ( $|0\rangle$ ) и невозбужденном состоянии атома  $|g\rangle$ , для значения безразмерной константы связи  $g/\omega_f = 1.5$ ,  $\omega_A = \omega_f$ . (b) – Зависимость от времени дисперсии оператора числа фотонов, следующая из модели Раби для системы атом + поле в начальном вакуумном состоянии поля ( $|0\rangle$ ) и невозбужденном состоянии атома  $|g\rangle$ , для значения безразмерной константы связи  $g/\omega_f = 1.5$  и тех же значений остальных параметров. Пунктирной линией показана аналогичная зависимость, полученная в рамках МДК. (c) – Зависимость от времени вероятности нахождения атома в возбужденном состоянии поля  $|e\rangle$ :  $P_e(t)$ , следующая из МР для системы атом + поле в начальном вакуумном состоянии поля  $|0\rangle$  и нижнем состоянии атома  $|g\rangle$  для значения безразмерной константы связи  $g/\omega_f = 1.5$  и тех же значений остальных параметров

$|g\rangle$  атома и начального состояния поля  $|0\rangle$ . На рисунках 1a, b видно, что результаты двух моделей противоречат друг другу. Модель ДК предсказывает, что среднее и дисперсия оператора числа фотонов поля не изменяются во времени при взаимодействии атома с полем, тогда как МР указывает в условиях УСС на сложную зависимость от времени этих величин. Среднее значение числа фотонов в резонаторе на первом этапе эволюции в МР растет почти линейно, а для больших значений времени

начинает осциллировать во времени, тогда как МДК для данных начальных условий предсказывает вакуумное состояние поля для любого момента времени. Из (рис. 1б) для флуктуаций (дисперсии) числа фотонов квантовая МР предсказывает суперпуассоновскую статистику числа фотонов с дисперсией, значительно превышающей среднее число фотонов, характерной для когерентного состояния поля.

Результаты расчета не зависят от значения фазы матричного элемента перехода  $\varphi_d$  для начального состояния атома в верхнем или нижнем энергетическом состоянии.

На рисунке 1с в показана зависимость средних значений оператора населенности верхнего возбужденного состояния атома  $P_e(t)$  для тех же условий. Как видно на рис. 1с, вероятность возбуждения атома в верхнее энергетическое состояние  $P_e(t)$  отлична от 0 для МР и обладает сложной зависимостью этой величины от времени в режиме УСС. Эти зависимости качественно отличаются друг от друга для двух моделей. МДК не предсказывает изменение начальной населенности возбужденного состояния атома во времени, тогда как в рамках квантовой МР вероятность возбуждения атома осциллирует вблизи значения 0.5.

Среднее значение “комбинированного оператора четности” (17) при этих условиях близко к единице:  $\langle \Pi \rangle \approx 1$  для всех значений времени.

##### 5. Когерентное начальное состояние поля.

Рассмотрим в качестве начального квантового состояния одномодового ЭМ поля когерентное состояние

$$|\alpha\rangle = e^{-n_\alpha/2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}}, \quad \alpha = \sqrt{n_\alpha} e^{i\varphi_\alpha}, \quad n_\alpha \equiv |\alpha|^2.$$

Как видно на рис. 2а, изменение во времени среднего значения  $\langle \hat{n}(t) \rangle_{\alpha, \text{NRWA}}$ , рассчитанного в рамках квантовой МР (NRWA) для начального когерентного состояния поля  $|\alpha = 1\rangle$  и невозбужденного состояния атома  $|g\rangle$  в условиях УСС обладает сложной нерегулярной зависимостью от времени и не имеет характера стандартных регулярных осцилляций Раби. На рисунке 2а динамика среднего значения оператора числа фотонов поля сравнивается с аналогичной зависимостью  $\langle \hat{n}(t) \rangle_{\alpha, \text{RWA}}$  полученной с использованием приближения Джейнса–Каммингса (приближение RWA). На рисунке 2а видно, что в рассматриваемом нами случае УСС теория Раби дает качественно отличную зависимость от времени средних оператора фазы поля, на всем интервале времени  $|g|t$ . На рисунке 2а видно, что среднее число фотонов значительно меньше для МР по сравнению с МДК для

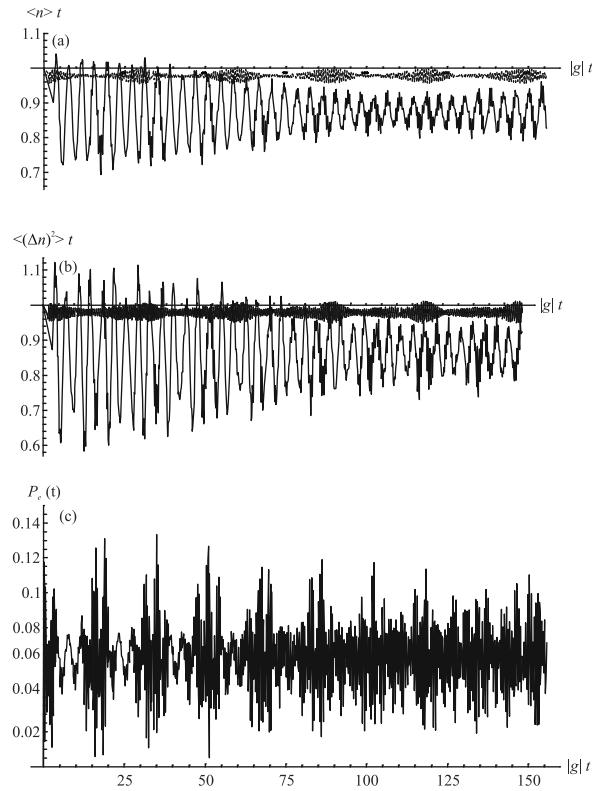


Рис. 2. (а) – Зависимость от времени среднего значения оператора числа фотонов поля  $\langle \hat{n} \rangle$ , следующая из МР для системы атом + поле в начальном когерентном состоянии поля ( $|\alpha = 1\rangle$ ) и невозбужденном состоянии атома  $|g\rangle$ , для значения безразмерной константы связи  $g/\omega_f = 1.0$ ,  $\omega_A = 10\omega_f$ . Значение фазового угла матричного элемента перехода  $\varphi_d = 0$ . Пунктирной линией показана аналогичная зависимость, полученная в рамках МДК. (б) – Зависимость от времени дисперсии оператора числа фотонов, следующая из МР для системы атом + поле в начальном вакуумном состоянии поля ( $|0\rangle$ ) и невозбужденном состоянии атома  $|g\rangle$ , для значения безразмерной константы связи  $g/\omega_f = 1.5$ . Значение фазового угла матричного элемента перехода  $\varphi_d = 0$  и тех же значений остальных параметров. Пунктирной линией показана аналогичная зависимость, полученная в рамках МДК. (в) – Зависимость от времени вероятности нахождения атома в возбужденном состоянии поля  $|e\rangle$ :  $P_e(t)$ , следующая из МР для системы атом + поле в начальном вакуумном состоянии поля  $|0\rangle$  и невозбужденном состоянии атома  $|g\rangle$  для значения безразмерной константы связи  $g/\omega_f = 1$

больших значений безразмерного времени. Для рассмотренного случая начального состояния атома в нижнем энергетическом состоянии такое поглощение фотонов в резонаторе может сопровождаться возбуждением атома в верхнее энергетическое состояние и, вследствие этого, полная энергия и среднее

число возбуждений системы сохраняются во времени. Однако, как видно на рис. 2с, вероятность нахождения атома в верхнем энергетическом состоянии для любого момента времени остается пренебрежимо малой. Вследствие этого можно говорить, что в условиях УСС квантовомеханическая МР предсказывает поглощение фотонов в резонаторе даже в отсутствии учета потерь резонатора и в отсутствие сопутствующего поглощению фотонов возбуждения атома.

На рисунке 2б показаны зависимости дисперсий  $\langle(\Delta\hat{n})^2(t)\rangle_{n,\text{NRWA}}$  и  $\langle(\Delta\hat{n})^2(t)\rangle_{n,\text{RWA}}$ , полученные в рамках МР и МДК соответственно, для тех же значений параметров. Расчеты показывают, что так же, как и в случае средних значений операторов числа фотонов поля, в условиях УСС результаты двух моделей качественно различны. Использование приближения RWA, имеющее место в теории ДК, для случая УСС атома с полем оказывается не несправедливо. В отличие от случая вакуумного начального состояния поля дисперсия (флуктуации), числа фотонов в зависимости от времени оказывается значительно меньше начального ее значения, соответствующего когерентному состоянию (дробовой шум), и статистика фотонов становится в рамках МР значительно более неклассической (субпуассоновской) по сравнению с МДК при тех же начальных условиях и УСС.

Как показывают расчеты, в этих условиях среднее значение “комбинированного оператора четности” (17) при этих условиях много меньше единицы:  $\langle\hat{\Pi}\rangle_t \ll 1$  для всех значений времени.

В случае когерентного начального состояния поля при  $n_\alpha \gg 1$  и нижнем состоянии атома существует ярко выраженное явление осцилляций Раби как для средних значений, так и для дисперсий операторов числа фотонов поля. Явление коллапса и возрождения осцилляций Раби [25–29], присущее в МДК для рассмотренных начальных условий и УСС, в рамках квантовой МР полностью отсутствует.

Для малого числа фотонов когерентного состояния поля  $n_\alpha \sim 1$  при УСС характер эволюции средних значений и дисперсий оператора числа фотонов поля качественно зависит от фазового угла когерентного начального состояния поля  $\varphi_\alpha$  для любого начального состояния атома, регулярные осцилляции Раби и эффект коллапса и возрождения при этом отсутствуют.

**6. Заключение.** В данной работе нами проведено исследование эволюции во времени средних квантовомеханических значений (наблюдаемых) и дисперсий (квантовых флуктуаций) оператора числа

фотонов ЭМ поля при взаимодействии поля с атомом. Рассмотрен и проанализирован случай ультрасильной связи атома и поля (УСС). Для расчетов использована квантовомеханическая МР. Рассмотрен случай квантовых микрополей со средним числом фотонов  $\sim 1$ . Проведено сравнение характера эволюции указанных величин, следующий из теории Раби и приближенной теории Джейнса–Каммингса (МДК), использующей приближение вращающейся волны (RWA) в условиях УСС.

Анализ проведен для различных начальных квантовых состояний поля и двухуровневого атома.

Процесс “генерации фотонов из вакуума” уже отмечался в нескольких теоретических работах. Так, в работе [9] обсуждалась “генерации фотонов из вакуума” в случае УСС при наличии фазовой диссипации атома. В работе [10] рассматривалась “генерации фотонов из вакуума” в случае временной модуляции параметра связи атома с полем, названная авторами “динамическим эффектом Казимира” для УСС.

В работах [11, 12] расчеты авторов показали наличие “генерации фотонов из вакуума” в условиях УСС при отсутствии каких-либо процессов диссипации для системы атом–одномодовое поле.

Детальное точное теоретическое исследование динамики среднего числа фотонов проведено нами в данной работе. Показана возможность как генерации, так и поглощения фотонов в замкнутой системе атом–поле в зависимости от отстройки частоты перехода атома от частоты моды поля для УСС. Наряду с “генерацией фотонов из вакуума” в рамках квантовой МР при определенных условиях имеет место также “поглощение фотонов вакуумом”.

Если ЭМ поле в начальный момент времени находится в фоковском состоянии, результаты МР принципиально отличаются от результатов расчета эволюции средних и/или дисперсий оператора числа фотонов поля в условиях УСС. Нами показано, что в случае начального состояния атома в нижнем энергетическом состоянии дисперсия оператора числа фотонов в рамках МДК остаются неизменными во времени, тогда как МР предсказывает сложную зависимость от времени среднего и дисперсии оператора числа фотонов поля в резонаторе. Таким образом, показана неприменимость МДК (приближения вращающейся волны, RWA) для расчета эволюции операторов фазы в условия УСС для вакуумного начального состояния поля.

Если начальное состояние ЭМ поля является когерентным  $|\alpha\rangle$  с малым числом фотонов  $n_\alpha \sim 11$  то приближение RWA (МДК) оказывается неприменимым для расчета динамики средних и дисперсий

операторов числа фотонов поля в условиях УСС для любого начального состояния атома, взаимодействующего с полем.

В данной работе показано, что эволюция рассматриваемых величин качественно зависит от фазового угла начального когерентного состояния микроскопического поля  $\varphi_\alpha$  для любых начальных состояний атома.

Показано, что в случае начального когерентного состояния поля с числом фотонов  $n_\alpha \gg 1$  и произвольном начальном состоянии атома, для эволюции во времени средних значений и дисперсии оператора числа фотонов поля не характерно явление коллапса и возрождения осцилляций Раби этих величин.

Проведенные исследования позволяют сделать вывод о том, что квантовомеханическая МР в общем случае является некорректной, поскольку ее результаты приводят к нарушению принципа сохранения энергии. Как следует из соотношения (18), в общем случае, оператор числа возбуждений системы атом + поле не коммутирует с гамильтонианом МР системы для любых значений параметров. В рамках приближенной модели системы, получаемой из квантовой МР путем удаления из рассмотрения виртуальных процессов (приближение RWA), энергия системы в процессе взаимодействия атома с полем точно сохраняется, так как в этом случае оператор числа возбуждений и гамильтониан системы точно коммутируют для любого момента времени и любых значений остальных параметров. Расчеты показали, что для среднего значения фотонов поля различие между результатами квантовой МР и приближенными результатами в рамках RWA (квантовая модель ДК) преnебрежимо мало (но не равны 0) в случае выполнения соотношения  $\tilde{g} \equiv |g|/\omega_f < 0.01$ . В этих условиях среднее значение правой части выражения (18) для коммутатора (произведение коррелятора операторов атома и поля на параметр связи, см. (19)) становится преnебрежимо малой величиной.

**Финансирование работы.** Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Физического института имени П. Н. Лебедева Российской академии наук. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

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

1. P. Forn-Diaz, L. Lamata, E. Rico, J. Kono, and E. Solano, Rev. Mod. Phys. **91**(2), 25005 (2019).
2. T. Niemczyk, F. Deppe, H. Huebl, E.P. Menzel,

F. Hocke, M. J. Schwarz, J. J. Garcia-Ripoll, D. Zueco, T. Hücker, E. Solano, A. Marx, and R. Gross, Nature Phys. **6**, 772 (2010).

3. A. Le Boit  , Advanced Quantum Technologies **3**(7), 1900140 (2020).
4. A. F. Kockum, A. Miranowicz, S. Deliberato, S. Savesta, and F. Nori, Nat. Rev. Phys. **1**, 19 (2019).
5. Sh. Fu, Sh. Luo, and Y. Zhang, Quantum Information Processing **20**, 88 (2021).
6. J.-sh. Peng and G.-x. Li, Phys. Rev. A **45**(5), 3289 (1992).
7. F. Ilya, I. Alexey , V.-H. Le, and A. Ulyanenkov, Non-perturbative Description of Quantum Systems. Lecture Notes in Physics, Springer Cham Heidelberg New York Dordrecht London, Springer International Publishing Switzerland (2015), v. 894, p. 62; Library of Congress Control Number: 2014958312.
8. R. Graham and M. Hohnerbach, Z. Phys. B – Condensed Matter **57**, 233 (1984).
9. T. Werlang, A.V. Dodonov, E.I. Duzzioni, and C.J. Villas-B  as, Phys. Rev A **78**, 053805 (2008); <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.78.053805>.
10. A. V. Dodonov, J. Phys. Conf. Ser. **161**, 012029 (2009); <https://doi.org/10.1088/1742-6596/161/1/01202912>.
11. F. A. Wolf, M. K, and D. Braak, Phys. Rev. A **85**, 053817 (2012).
12. F. A. Wolf, F. Vallone, G. Romero, M. Kollar, E. Solano, and D. Braak, Phys. Rev. A **87**, 023835 (2013).
13. P. Meystre, *Quantum Optics. Taming the Quantum*, Springer (2021), 393 p.
14. Q.-H. Chen, T. Liu, Y.-Y. Zhang, and K.-L. Wang, EPL **96**, 14003 (2011); <https://doi.org/10.1209/0295-5075/96/14003>.
15. P.D. Nation, J.R. Johansson, M.P. Blencowe, and F. Nori, Rev. Mod. Phys. **84**, 1 (2012).
16. H. J. Kimble, Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **355**, 2327 (1997).
17. Q. Xie, H. Zhong, M. T. Batchelor, and Ch. Lee, J. Phys. A: Math. Theor. **50**, 113001 (2017).
18. A. Crespi, S. Longhi, and R. Osellame, Phys. Rev. Lett. **108**, 163601 (2012).
19. N. M. Sundaresan, Y. Liu, D. Sadri, L. J. Szocs, D. L. Underwood, M. Malekakhlagh, H. E. Tureci, and A. A. Houck, Phys. Rev. X **5**, 021035 (2015).
20. N. M. Sundaresan, Y. Liu, D. Sadri, L. J. Szocs, D. L. Underwood, M. Malekakhlagh, H. E. Tureci, and A. A. Houck, Phys. Rev. X **5**, 021035 (2015).
21. M. R. Wahiddin, R. Belkada, G. S. Mahmoud, and A. Messikh, Eur. Physical J. Plus **136**, 650 (2021).
22. M. Lednev , F. J. Garcia-Vidal, and J. Feist, Phys. Rev. Lett. **132**, 106902 (2024).
23. C. J. S  nchez Mart  nez, J. Feist, and F. J. Garcia-Vidal, Nanophotonics **13**(14), 2669 (2024).

24. A. B. Козловский, ЖЭТФ **165**(5), 618 (2024).
25. J. H. Eberly, N. B. Narozhny, and J. J. Sanchez-Mondragon, Phys. Rev. Lett. **44**, 1323 (1980).
26. N. B. Narozhny, J. J. Sanchez-Mondragon, and J. H. Eberly, Phys. Rev. A **23**, 236 (1981).
27. H. I. Yoo, J. J. Sanchez-Mondragon, J. H. Eberly, J. Phys. A **14**, 1383 (1981).
28. J. Eiselt and H. Risken, Phys. Rev. A **43**, 346 (1991).
29. A. V. Kozlovskii, Quantum Electronics **40**(3), 223 (2010);  
<https://doi.org/10.1070/QE2010v04n03ABEH014270>.

## Термометрия разупорядоченных твердых тел на основе электронного комбинационного рассеяния света

Э. И. Батталова, С. С. Харинцев<sup>1)</sup>

Казанский федеральный университет, 420008 Казань, Россия

Поступила в редакцию 30 сентября 2024 г.

После переработки 11 октября 2024 г.

Принята к публикации 12 октября 2024 г.

Динамический беспорядок в металл-галоидных перовскитах обусловлен тепловыми структурными флуктуациями связанных октаэдров, приводящими к появлению широкого центрального пика в низкочастотной области спектра электронного комбинационного рассеяния света. В работе экспериментально демонстрируется температурная зависимость ширины центрального пика для металл-галоидного перовскита CsPbBr<sub>3</sub>. Результаты данного исследования могут быть использованы для разработки бесконтактного температурного сенсора.

DOI: 10.31857/S0370274X24110154, EDN: APTIZA

**Введение.** В твердых телах структурный беспорядок возникает при наличии дефектов кристаллической решетки, нарушающих ее трансляционную симметрию. Высокая концентрация дефектов способна значительно понизить тепло- и электропроводность полупроводника, превращая его в аморфное тело [1, 2]. Однако в ряде случаев внедрение дефектов в структуру материалов приводит к улучшению их оптических и электронных свойств [3, 4]. Это свидетельствует о важности развития методов управления дефектами в твердых телах.

К числу наиболее перспективных классов металлов и полупроводников можно отнести двойные системы кристалл–жидкость [5, 6], в которых наблюдается дальний порядок и локальный беспорядок. Такие системы обладают электронными свойствами, характерными для твердых тел, и тепловыми свойствами, характерными для жидкостей [6]. Наиболее распространенными представителями двойных систем являются металл-галоидные перовскиты APbX<sub>3</sub> (где А – одновалентный катион, Pb – двухвалентный катион свинца, X – одновалентный анион галогена), кристаллическая решетка которых представляет собой трехмерную сеть связанных октаэдров [PbX<sub>6</sub>]<sup>4-</sup>, встроенных в катионную решетку. Как было показано ранее, в таких системах наблюдается динамический беспорядок, при котором взаимная ориентация октаэдров флуктуирует между различными конфигурациями за времена порядка 100–1000 фс [6, 7]. Тепловые колебания октаэдров приводят к локальным флуктуациям поляризации, мо-

дулирующим оптический отклик перовскитов. Кроме того, явление динамического беспорядка приводит к появлению континуума дефектных уровней в запрещенной зоне (мост Урбаха [8]). При этом положения дефектных уровней испытывают сильные флуктуации в диапазоне от нескольких милиэлектронвольт до электронвольт [9, 10]. Это явление делает изучение тепловых и оптических свойств перовскитов нетривиальной задачей [7, 9, 11]. С другой стороны, двойные системы кристалл–жидкость формируют перспективную платформу в материаловедении для создания новых фотонных и оптоэлектронных устройств [12]. Одним из таких устройств является бесконтактный температурный сенсор, основанный на электронном комбинационном рассеянии света (КР).

Спектроскопия КР является важным методом определения температуры твердых тел, в котором используется зависимость интенсивности, сдвига и/или ширины спектральных линий от температуры [13, 14]. Однако в системах с динамическим беспорядком использование стандартных подходов термометрии КР оказывается невозможным. Это происходит из-за значительного уширения линий КР, приводящего к росту неопределенности температуры. Кроме того, появление широкого центрального пика в спектре низкочастотного КР оказывает влияние на сечение антистоковой и стоковой компонент. Поэтому использование стандартных спектроскопических методов для определения температуры разупорядоченных материалов может приводить к значительным погрешностям, сопоставимым с измеряемой температурой.

<sup>1)</sup>e-mail: Sergey.Kharintsev@kpfu.ru

В настоящей работе предлагается экспериментальный метод определения температуры, основанный на электронном КР. Линейная зависимость ширины центрального пика от температуры позволяет создать аналитический инструмент для определения температуры разупорядоченных твердых тел.

**Обсуждение результатов.** Спектроскопия КР может быть использована не только для химического, но и для структурного анализа твердых тел [8, 12]. В последнем случае рассеяние падающего фотона может изменить импульс электрона, что делает оптические переходы непрямыми (рис. 1). С физиче-

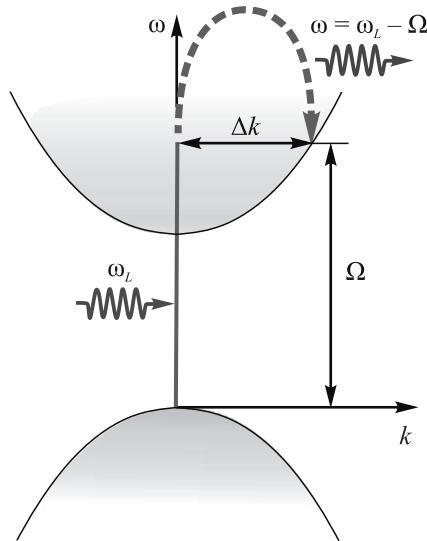


Рис. 1. (Цветной онлайн) Механизм электронного КР

ской точки зрения, это становится возможным благодаря генерации оптического ближнего поля при рассеянии падающего фотона на оптических неоднородностях, в роли которых могут выступать дефекты кристаллической решетки либо границы кристаллических доменов [8, 12, 15]. Поскольку размеры кристаллических доменов, возникающих в результате структурных флуктуаций в перовскитах, чувствительны к температуре [7], электронное КР может быть использовано в качестве температурного сенсора. Анализ температурной динамики кристаллической решетки CsPbBr<sub>3</sub> проводился с помощью низкочастотной спектроскопии КР. Регистрация спектров КР осуществлялась на длине волн возбуждения 632.8 нм (Не-Не лазер) при интенсивности накачки 0.4 МВт/см<sup>2</sup> и времени экспозиции 10 с. Для исследования низкочастотной обла-

сти использовался брэгг-фильтр, блокирующий диапазон от  $-10 \text{ см}^{-1}$  до  $10 \text{ см}^{-1}$ . Спектральное разрешение составляло  $1 \text{ см}^{-1}$ . На рисунке 2а показан низкочастотный спектр КР микрокристалла неорганического галоидного перовскита CsPbBr<sub>3</sub>, зарегистрированный при температуре 30 °C. Изображение микрокристалла CsPbBr<sub>3</sub>, полученное с помощью конфокального оптического микроскопа, приведено на вставке к рис. 2а. В данном спектре наблюдаются характеристические моды CsPbBr<sub>3</sub>, имеющие частоты  $310 \text{ см}^{-1}$ ,  $127 \text{ см}^{-1}$ ,  $75 \text{ см}^{-1}$ ,  $38 \text{ см}^{-1}$  и  $25 \text{ см}^{-1}$ . Согласно DFT-расчетам, моды  $127 \text{ см}^{-1}$ ,  $75 \text{ см}^{-1}$ ,  $38 \text{ см}^{-1}$  и  $25 \text{ см}^{-1}$  соответствуют деформационным колебаниям октаэдрических каркасов, тогда как мода  $310 \text{ см}^{-1}$  соответствует валентным колебаниям связи Pb–Br [7, 16]. Дополнительно в спектре на рис. 2а наблюдается широкий центральный пик, имеющий максимум в окрестности  $0 \text{ см}^{-1}$ . Для анализа данного спектра проведено его разложение на компоненты с помощью регуляризованного метода наименьших квадратов. При разложении интенсивность КР задавалась в следующем виде [7, 17]:

$$I(\omega) = \frac{c_0\Gamma_0}{\omega^2 + \Gamma_0^2} + \sum_i \frac{c_i\Gamma_i}{(\omega - \omega_i)^2 - \Gamma_i^2}, \quad (1)$$

где первый член соответствует широкому центральному пику, а второй член описывает линии КР CsPbBr<sub>3</sub>. Результат разложения показывает, что широкий центральный пик вносит доминирующий вклад в сигнал КР CsPbBr<sub>3</sub>. Согласно теории КР, отношение интенсивностей антистоксовой и стоксовой компонент спектра  $\rho$  связано с энергетическим распределением фононов уравнением вида [13, 18]:

$$\rho = \frac{I_{as}}{I_s} = \frac{(\omega_L + \omega)^4}{(\omega_L - \omega)^4} \frac{n(\omega, T)}{n(\omega, T) + 1}, \quad (2)$$

где  $I_{as}$  ( $I_s$ ) соответствует интенсивности антистоксовой (стоксовой) компонент спектра,  $\omega_L$  – частота лазерного излучения,  $\omega$  – фононная частота,  $n(\omega, T)$  – функция распределения Бозе–Эйнштейна. Для анализа зависимости  $\rho(T)$  спектры КР регистрировались в диапазоне температур от 30 °C до 160 °C с шагом в 2 °C. Согласно полученным данным, величина  $\rho$  не может быть использована для корректного определения температуры. Отношение антистоксовой и стоксовой компонент спектра остается постоянным до температуры  $T = 130 \text{ }^\circ\text{C}$ , при которой наблюдается его небольшое увеличение (рис. 2б). Наличие небольшого скачка при  $T = 130 \text{ }^\circ\text{C}$  объясняется фазовым переходом, поскольку в исследуемом температурном диапазоне CsPbBr<sub>3</sub> испытывает два по-

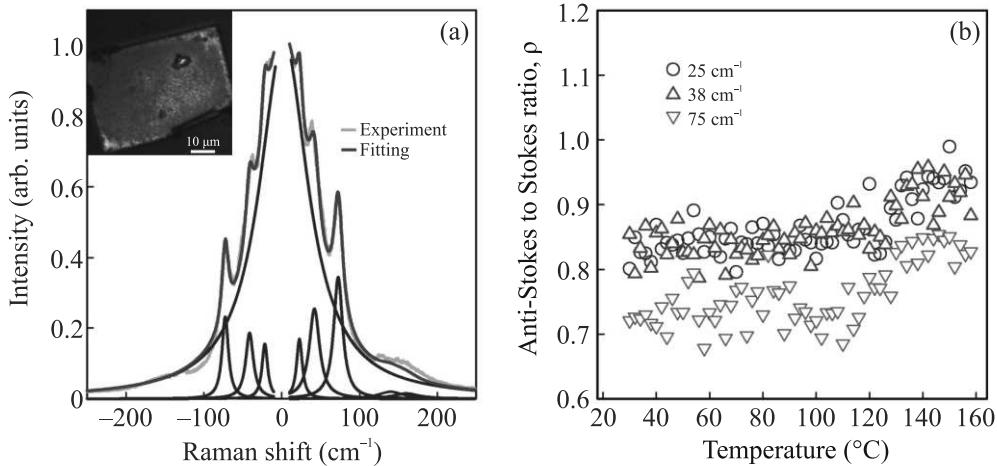


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Спектр КР  $\text{CsPbBr}_3$  при температуре  $30^\circ\text{C}$ , а также его численное разложение на составляющие согласно формуле (1). На вставке к рисунку показано изображение исследуемого микрокристалла, полученное с помощью конфокального оптического микроскопа; (б) – температурная зависимость отношения антистоксовой и стоксовой компонент спектра для мод  $25\text{ cm}^{-1}$ ,  $38\text{ cm}^{-1}$  и  $75\text{ cm}^{-1}$

следовательных фазовых превращения: из орторомбической фазы в тетрагональную при температуре  $88^\circ\text{C}$  и из тетрагональной фазы в кубическую при температуре  $130^\circ\text{C}$  [16]. Разложение каждого из 65 зарегистрированных спектров в соответствии с соотношением (1) показало, что присутствие центрально-го пика искажает соотношение сечений антистоксовой и стоксовой компонент спектра.

Природа широкого центрального пика в низкочастотном спектре КР перовскитов является предметом многочисленных дискуссий [6, 7, 17, 19–21]. Экспериментальные и теоретические исследования показывают, что центральный пик наблюдается в спектре КР перовскитов независимо от природы А-катиона и стехиометрии образца [20]. Для описания централь-ного пика предложена модель локальных полярных флюктуаций [7], приводящих к структурным корреляциям с длиной корреляции  $l_c$ , много меньшей длины световой волны  $\lambda$  ( $l_c \ll \lambda$ ). Модель полярных флюктуаций, известная также как модель релаксации Дебая, основана на формализме короткодействую-щего диполь-дипольного взаимодействия, модулирующего локальное кристаллическое поле [17, 22, 23]. Данный формализм объясняет происхождение широ-кого крыла Рэлея в сильно-ассоциированных жид-костях [24] и часто применяется к перовскитам, по-скольку в отношении некоторых своих свойств они ведут себя как жидкости [6]. Однако детальное изу-чение спектров инфракрасного (ИК) поглощения и КР перовскитов показывает, что центральный пик наблюдался только в спектрах рассеяния, но не по-глощения [20]. В отличие от линий ИК поглощения,

линии КР образуют широкие полосы, распространяющиеся на сотни обратных сантиметров [19–21]. С одной стороны, ширину низкочастотной полосы КР можно объяснить усилением ее интенсивности благодаря фактору Бозе–Эйнштейна [20]. С другой стороны, перовскиты, представляющие собой трехмерную сеть связанных октаэдров, являются двойными системами кристалл–жидкость [19]. Тепловые структурные флюктуации в перовскитах приводят к дальнему порядку и локальному беспорядку. В двойных системах длина корреляции возрастает ( $l_c \leq \lambda$ ) благодаря дальнодействующему диполь–дипольному взаимодействию [19, 25]. Это приводит к образова-нию пространственных флюктуаций (или простран-ственной дисперсии электронной поляризуемости), на которых происходит неупругое рассеяния света. Именно по этой причине центральный пик можно интерпретировать как электронное КР [8, 12, 19]. Од-ним из важных следствий такого представления яв-ляется прямая зависимость ширины центрального пика низкочастотного электронного КР от темпе-ратуры.

На рисунке 3 показана зависимость ширины цен-трального пика  $\Gamma_0$  от температуры при нагреве (а) и охлаждении (б) микрокристалла  $\text{CsPbBr}_3$  в ди-апазоне  $30\text{--}160^\circ\text{C}$ . Вертикальными пунктирными ли-ниями на графиках (рис. 3а, б) обозначены темпе-ратуры фазовых переходов и области существования трех кристаллических фаз (орторомбическая  $Pnma$  ( $\gamma$ -фаза) при  $30^\circ\text{C} \leq T \leq 88^\circ\text{C}$ , тетрагональная  $P4/mbm$  ( $\beta$ -фаза) при  $88^\circ\text{C} \leq T \leq 130^\circ\text{C}$ , кубиче-ская  $Pm\bar{3}m$  ( $\alpha$ -фаза) при  $130^\circ\text{C} \leq T \leq 160^\circ\text{C}$ ) [7].

В общем случае, в разупорядоченных материалах  $\Gamma_0$  может быть связана с температурой соотношением [23, 24]:

$$\Gamma_0(T) \sim \frac{k_B T}{4\pi\eta(l_c)^3}, \quad (3)$$

где  $k_B$  – постоянная Больцмана,  $\eta$  – параметр, опи- сывающий амплитуду структурных флюктуаций, который может быть оценен по температурной зависимости коэффициента теплового расширения ( $\sim 10^{-6}(\text{°C}^{-1})$  для  $\text{CsPbBr}_3$ ) [26, 27]. Как показано на рис. 3а, при нагреве в области  $\gamma$ -фазы зависи-

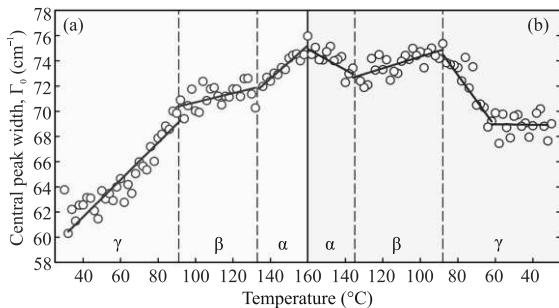


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость ширины центрального пика от температуры при нагреве (а) и охлаждении (б) в диапазоне 30–160 °С

мость  $\Gamma_0(T)$  ведет себя линейно, испытывая скачок при  $T = 88^\circ\text{C}$ , соответствующий фазовому переходу  $\gamma \rightarrow \beta$ . Аналогичный скачок наблюдается при фазовом переходе  $\beta \rightarrow \alpha$ , однако в пределах каждой кристаллической фазы зависимость  $\Gamma_0(T)$  может быть аппроксимирована линейной функцией  $\Gamma_0(T)$ , согласно соотношению (3). Смена угла наклона в точке фазового перехода может быть объяснена активной перестройкой кристаллической решетки  $\text{CsPbBr}_3$ , сопровождающейся скачкообразным изменением корреляционной длины  $l_c$  [28]. Данный результат подтверждает, что ширина центрального пика в перовскитах может быть использована в качестве индикатора температуры. Однако при охлаждении  $\Gamma_0(T)$  демонстрирует ряд особенностей, как показано на рис. 3б. Так, в  $\beta$ -фазе наблюдается аномальный рост ширины центрального пика при уменьшении температуры. Это вносит неоднозначность в процедуру определения температуры и подчеркивает доминирующую роль структурного беспорядка в перовскитах. Ранее было показано, что понижение симметрии кристаллической решетки перовскитов при переходе из  $\alpha$ -фазы в  $\beta$ -фазу сопровождается двойникованием, при котором в кристалле образуется множество доменов одной преобладающей ориентации [29, 30]. Изучение температурной динамики двойникования показывает, что

нагрев и охлаждение по-разному влияют на размер и ориентацию кристаллических доменов, а значит и на длину корреляции связанных октаэдров [29]. Поэтому рост ширины центрального пика в  $\beta$ -фазе может быть объяснен возникновением спонтанных напряжений, уменьшающих длину корреляции. При дальнейшем охлаждении в области  $\gamma$ -фазы ширина центрального пика вновь уменьшается согласно формуле (3). Смена поведения зависимости  $\Gamma_0(T)$  при температуре  $\sim 60^\circ\text{C}$  может быть связана с фазовым переходом между двумя орторомбическими модификациями ( $CmCm \rightarrow Pnma$ ) [31]. Важно отметить, что температурная зависимость ширины центрального пика может послужить дополнительным методом определения фазовых переходов в перовскитах, поскольку вопрос о присутствии  $CmCm$  фазы в  $\text{CsPbBr}_3$  до сих пор остается открытым.

Исследование температурной зависимости ширины центрального пика показывает, что определение температуры усложняется при наличии фазовых переходов. Тем не менее в пределах одной кристаллической фазы зависимость  $\Gamma_0(T)$  является линейной, и при нагреве и охлаждении ведет себя обратимо ( $\alpha$ -фаза на рис. 3а, б), что позволяет однозначно определять температуру. Детальное изучение зависимости  $\Gamma_0(T)$  в пределах каждой из кристаллических фаз приводит к необходимости определения функции  $l_c(T)$ . Данное исследование представляет отдельный интерес, поскольку может объяснить аномальный рост фотолюминесценции перовскитов в области фазовых переходов [3, 29].

**Заключение.** Разупорядоченные материалы, представляющие собой двойные системы кристалл–жидкость, могут быть использованы для будущих фотонных и оптоэлектронных приложений [12]. Взаимодействие света со структурными корреляциями в двойных системах генерирует оптическое ближнее поле, которое приводит к электронному КР. В данной работе с помощью низкочастотной спектроскопии КР исследована динамика кристаллической решетки неорганических галоидных перовскитов  $\text{CsPbBr}_3$ . Показано, что ширина центрального пика, возникающего в результате электронного КР, пропорциональна температуре материала. Результаты, полученные в данном исследовании, могут быть использованы для создания температурных датчиков нового поколения, позволяющих удаленно измерять температуру разупорядоченных и наноструктурированных твердых тел.

**Финансирование работы.** Работа выполнена за счет средств программы стратегического акаде-

мического лидерства Казанского федерального университета “ПРИОРИТЕТ-2030”.

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

1. K. Prasai, P. Biswas, and D. A. Drabold, *Semicond. Sci. Technol.* **31**, 073002 (2016).
2. H. Kim, G. Park, S. Park, and W. Kim, *ACS Nano* **15**, 2182 (2021).
3. A. Dobrovolsky, A. Merdasa, E. L. Unger, A. Yartsev, and I. G. Scheblykin, *Nat. Commun.* **8**, 34 (2017).
4. A. A. Kamashov, N. N. Garif'yanov, A. A. Validov, V. Kataev, A. S. Osin, Y. V. Fominov, and I. A. Garifulin, *Beilstein J. Nanotechnol.* **15**, 457 (2024).
5. T. Takabatake, K. Suekuni, T. Nakayama, and E. Kaneshita, *Rev. Mod. Phys.* **86**, 669 (2014).
6. K. Miyata, T. L. Atallah, and X.-Y. Zhu, *Sci. Adv.* **3**, e1701469 (2017).
7. O. Yaffe, Y. Guo, L. Z. Tan, D. A. Egger, T. Hull, C. C. Stoumpos, F. Zheng, T. F. Heinz, L. Kronik, M. G. Kanatzidis, J. S. Owen, A. M. Rappe, M. A. Pimenta, and L. E. Brus, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 136001 (2017).
8. S. S. Kharintsev, E. I. Battalova, A. I. Noskov, J. Merham, E. O. Potma, and D. A. Fishman, *ACS Nano* **18**, 9557 (2024).
9. A. V. Cohen, D. A. Egger, A. M. Rappe, and L. Kronik, *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 4490 (2019).
10. B. Wang, W. Chu, Y. Wu, D. Casanova, W. A. Saidi, and O. V. Prezhdo, *J. Phys. Chem. Lett.* **13**, 5946 (2022).
11. D. Strandell, Y. Wu, C. Mora-Perez, O. Prezhdo, and P. Kambhampati, *J. Phys. Chem. Lett.* **14**, 11281 (2023).
12. S. S. Kharintsev, E. I. Battalova, V. Mkhitaryan, and V. M. Shalaev, *Opt. Mater. Express* **14**, 2017 (2024).
13. Q. Meng, J. Zhang, Y. Zhang, W. Chu, W. Mao, Y. Zhang, J. Yang, Y. Luo, Z. Dong, and J. G. Hou, *Sci. Adv.* **10**, eadl1015 (2024).
14. S. S. Kharintsev, A. V. Kharitonov, E. A. Chernykh, A. M. Alekseev, N. A. Filippov, and S. G. Kazarian, *Nanoscale* **14**, 12117 (2022).
15. L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (2012).
16. A. E. J. Hoffman, R. A. Saha, S. Borgmans, P. Puech, T. Braeckeveldt, M. B. J. Roeffaers, J. A. Steele, J. Hofkens, and V. van Speybroeck, *APL Mater.* **11**, 041124 (2023).
17. B. E. Vugmeister, Y. Yacoby, J. Toulouse, and H. Rabitz, *Phys. Rev. B* **59**, 8602 (1999).
18. D. R. Ward, D. A. Corley, J. M. Tour, and D. Natelson, *Nat. Nanotechnol.* **6**, 33 (2011).
19. S. S. Kharintsev, E. I. Battalova, I. A. Matchenya, A. A. Marunchenko, and A. P. Pushkarev, *Adv. Sci.* **11**, 2405709 (2024).
20. V. J.-Y. Lim, M. Righetto, S. Yan, J. B. Patel, T. Siday, B. Putland, K. M. McCall, M. T. Sirtl, Y. Kominko, J. Peng, Q. Lin, T. Bein, M. Kovalenko, H. J. Snaith, M. B. Johnston, and L. M. Herz, *ACS Energy Lett.* **9**, 4127 (2024).
21. M. Menahem, N. Benshalom, M. Asher, S. Aharon, R. Korobko, O. Hellman, and O. Yaffe, *Phys. Rev. Mater.* **7**, 044602 (2023).
22. C. Gehrmann and D. A. Egger, *Nat. Commun.* **10**, 3141 (2019).
23. C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8th ed., John Wiley&Sons, Inc, N.Y. (2005).
24. V. Z. Gochiyaev, V. K. Malinovsky, V. N. Novikov, and A. P. Sokolov, *Philos. Mag. B* **63**, 777 (1991).
25. A. K. Boddeti, Y. Wang, X. G. Juarez, A. Boltasseva, T. W. Odom, V. Shalaev, H. Alaeian, and Z. Jacob, *Phys. Rev. Lett.* **132**, 173803 (2024).
26. K. Nitsch and M. Rodova, *Phys. Status Solidi* **234**, 701 (2002).
27. J. Sadanandam and S. V. Suryanarayana, *J. Mater. Sci. Lett.* **5**, 1324 (1986).
28. Š. Svirskas, S. Balčiūnas, M. Šimėnas, G. Usevičius, M. Kinka, M. Velička, D. Kubicki, M. E. Castillo, A. Karabanov, V. V. Shvartsman, M. De Rosário Soares, V. Šablinskas, A. N. Salak, D. C. Lupascu, and J. Banys, *J. Mater. Chem. A* **8**, 14015 (2020).
29. S. S. Kharintsev, E. I. Battalova, T. A. Mukhametzyanov, A. P. Pushkarev, I. G. Scheblykin, S. V. Makarov, E. O. Potma, and D. A. Fishman, *ACS Nano* **17**, 9235 (2023).
30. M. Bari, A. A. Bokov, G. W. Leach, and Z.-G. Ye, *Chem. Mater.* **35**, 6659 (2023).
31. D. Malyshkin, V. Sereda, I. Ivanov, M. Mazurin, A. Sednev-Lugovets, D. Tsvetkov, and A. Zuev, *Mater. Lett.* **278**, 128458 (2020).

# Влияние электрон-дефицитного замещения на спиновую динамику в FeGa<sub>3</sub>

А. В. Ткачев<sup>1)</sup>, С. В. Журенко<sup>+</sup>, М. Р. Бикмухаметова\*, М. С. Лиханов\*, А. В. Шевельков\*, А. А. Гиппиус<sup>++\*</sup>

<sup>1)</sup>ФИАН им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

\*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 сентября 2024 г.

После переработки 25 сентября 2024 г.

Принята к публикации 3 октября 2024 г.

На примере изоэлектронных малоизученных соединений Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> и Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> мы исследовали электрон-дефицитное замещение в перспективном термоэлектрике FeGa<sub>3</sub> методом ядерного квадрупольного резонанса. Легирование соединений данного структурного типа помогает изучать зависимость термоэлектрических характеристик от электронной структуры и в конечном счете позволяет повысить термоэлектрическую эффективность, столь важную для практических применений. В обоих соединениях наблюдаются явные признаки формирования дополнительной акцепторной зоны внутри основной энергетической щели, определяемой замещающими атомами рения и марганца. При этом как спектры ядерного квадрупольного резонанса, так и ядерная спин-решеточная релаксация и ее температурная эволюция существенно различаются для исследуемых соединений. Мы связываем это с разной статистикой распределения замещающих атомов (преимущественное формирование гомогантелей в рений-замещенном соединении и гетерогантелей – в марганец-замещенном), обусловленной их внешними электронными оболочками.

DOI: 10.31857/S0370274X24110163, EDN: DJZBGU

**Введение.** Интерметаллические соединения структурного типа IrIn<sub>3</sub>, несмотря на свою малочисленность, являются прекрасным примером структурного семейства, представляющего безусловный фундаментальный интерес, а также демонстрирующего потенциально высокие термоэлектрические свойства [1–3]. Кристаллическая структура данного семейства довольно простая (рис. 1). Тетрагональное кристаллическое строение может быть представлено в виде 3D каркаса, образованного атомами *p*-элемента, которые формируют пустоты. В этих пустотах находятся гантели из переходных металлов. Расстояние металл–металл в таких гантелях довольно короткое, хотя и немного больше длины связи металл–металл в чистых *d*-металлах. При этом термоэлектрические свойства интерметаллидов типа IrIn<sub>3</sub> обычно связывают с узкими зонами с остройми пиками плотности состояний вблизи уровня Ферми, образованными специфической *p*–*d*-гибридизацией [4, 5]. В связи с этим большое значение приобретает описание электронной структуры представителей данного класса соединений и ее зависимость от различных типов замещения.

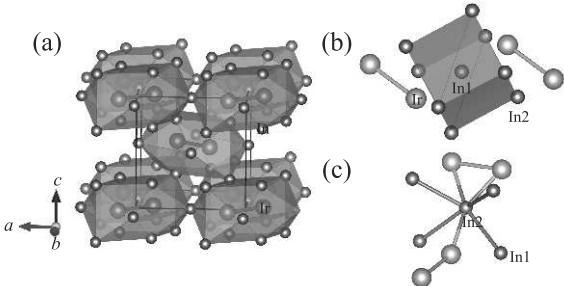


Рис. 1. (Цветной онлайн) Кристаллическая структура IrIn<sub>3</sub>: (а) – полиэдрическое представление; (б) – локальное окружение позиции In1; (с) – локальное окружение позиции In2

Твердые растворы Fe<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>Ga<sub>3</sub> (M = Mn и Re) содержат одинаковое число электронов, но их отличие заключается в существенном различии размеров замещающих атомов и свойств их *d*-орбиталей – 3*d*-металла марганца и 5*d*-металла рения. В данной работе мы исследуем ранее не изученную локальную электронную структуру двух представителей этих семейств Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> и Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> с помощью метода ядерного квадрупольного резонанса (ЯКР) на ядрах галлия. Полученные экспериментальные данные позволяют судить о наличии

<sup>1)</sup>e-mail: tkachevav@lebedev.ru

дополнительной акцепторной зоны внутри основной энергетической щели и о распределении замещающих атомов, влияющем также и на макроскопические свойства соединений.

### Электронная структура соединений IrIn<sub>3</sub>.

Электронное строение семейства IrIn<sub>3</sub> прекрасно описывается правилом 18 – *n* [3, 6], где *n* = 1 соответствует одной связи между атомами переходного металла. Действительно, все соединения структурного семейства IrIn<sub>3</sub> обычно делят на две группы – 17-электронные полупроводники (FeGa<sub>3</sub>, RuGa<sub>3</sub>, RuIn<sub>3</sub>, OsGa<sub>3</sub>, ReGa<sub>2</sub>Ge) и 18-электронные металлы (CoGa<sub>3</sub>, CoIn<sub>3</sub>, RhGa<sub>3</sub>, RhIn<sub>3</sub>, IrGa<sub>3</sub>, IrIn<sub>3</sub>) [1]; однако есть пример 16-электронного соединения ReGa<sub>3</sub>, которое может быть получено только путем синтеза при высоком давлении [7]. Полупроводниковые представители семейства стали основой для изучения термоэлектрических свойств чистых соединений и твердых растворов на их основе. Соединение FeGa<sub>3</sub> особенно широко изучено, проведенные замещения в позициях железа и галлия позволили существенно улучшить термоэлектрические характеристики исходной матрицы, тем не менее максимальное значение безразмерной термоэлектрической добротности *ZT* варьируется в диапазоне 0.1–0.2 [1]. Наилучшие значения *ZT* для соединений этого структурного типа получены для твердого раствора RuIn<sub>3-y</sub>Zn<sub>y</sub>, где было достигнуто *ZT* = 0.8 при *T* = 620 К [8].

Однако есть примеры нарушения правила 18 – *n* представителями семейства IrIn<sub>3</sub>. Действительно, ожидается, что при замене железа или галлия в FeGa<sub>3</sub> на элементы с большим или меньшим числом валентных электронов произойдет немедленный переход в металлическое состояние. Фактически это было верно только при *n*-легировании в позиции галлия, например, при замене на германий или олово [9, 10]. Во всех остальных случаях теоретические предсказания оказались несостоительными. Так, при замене железа на кобальт или никель происходит концентрационный переход полупроводник–металл: при малых степенях замещения сохраняется полупроводниковый характер проводимости, и лишь при относительно высоких уровнях замещения реализуется металлическое состояние [11–13]. Например, для твердого раствора Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>Ga<sub>3</sub> граница перехода лежит в диапазоне 0.025 < *x* < 0.075 [14]. Гораздо более интересная ситуация наблюдается в случае замещений с уменьшением числа валентных электронов. Так, при замене железа на марганец или рений перехода в металлическую фазу вовсе не произошло: даже при максимально возможных степенях замещения (10–12 мол. %) соединения демонстрируют полу-

проводниковые свойства [15, 16]. Полупроводниковое состояние также сохраняется и при замене галлия на цинк в FeGa<sub>3</sub> [15]. Очевидно, что при замещениях происходит тонкая настройка как локальной кристаллической, так и электронной структуры твердых растворов. Исследование Fe<sub>1-x</sub>Re<sub>x</sub>Ga<sub>3</sub> методом спектроскопии ЯКР на ядрах галлия демонстрирует кластеризацию рения в гантелях переходного металла, окруженной атомами галлия [16]. Более того, изучение даже незамещенного FeGa<sub>3</sub> указывает на сложную природу его локальной структуры и намекает на то, почему подход жесткой зоны не применим к этому семейству. Было показано, что образуются состояния в энергетической щели, которые могут быть вызваны наличием дефектов – оборванных связей или дополнительных атомов [17]. Последнее было экспериментально обнаружено путем тщательного изучения кристаллической структуры FeGa<sub>3</sub> [18].

**Методика.** Синтез проводили по стандартной двухстадийной ампульной методике, которую мы ранее успешно использовали при изучении твердого раствора Fe<sub>1-x</sub>Re<sub>x</sub>Ga<sub>3</sub>. Металлы Fe (порошок, Acros Organics, 99.9 %), Re (порошок, Alfa Aesar, 99.99 %), Mn (гранулы, Alfa Aesar, 99.95 %) и Ga (гранулы, Sigma Aldrich, 99.999 %) были использованы в качестве исходных веществ. Обе стадии синтеза проводили при температуре 750 °С с промежуточным перетиранием образцов и прессованием их в таблетки. Детальная методика синтеза подробно обсуждена в нашей предыдущей работе [16]. После второго отжига образцы номинального состава Fe<sub>0.92</sub>M<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> (M = Mn, Re) были тщательно перетерты, а их фазовая чистота была подтверждена рентгенофазовым и локальным рентгеноспектральным анализами.

Порошковый рентгенодифракционный анализ проводили на дифрактометре Huber G670 Guinier Camera (излучение CuKα1, Ge монохроматор,  $\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$ ). Данные были собраны путем четырехкратного сканирования со временем экспозиции 2400 с при комнатной температуре. Элементный анализ проводили на образцах, спрессованных в цилиндрические таблетки с плоскопараллельными основаниями, используя сканирующий электронный микроскоп JSM JEOL 6490-LV, оснащенный системой энергодисперсионного рентгеновского анализа (EDX) INCA x-Sight. Ускоряющее напряжение составляло 30 кВ. Погрешность измерений для каждого элемента составляла около 0.5 ат. %. Количественный состав определялся по 10–15 точкам, а затем усреднялся.

Измерения ЯКР <sup>69,71</sup>Ga проводились стандартной техникой спинового эха Хана с радиочастотны-

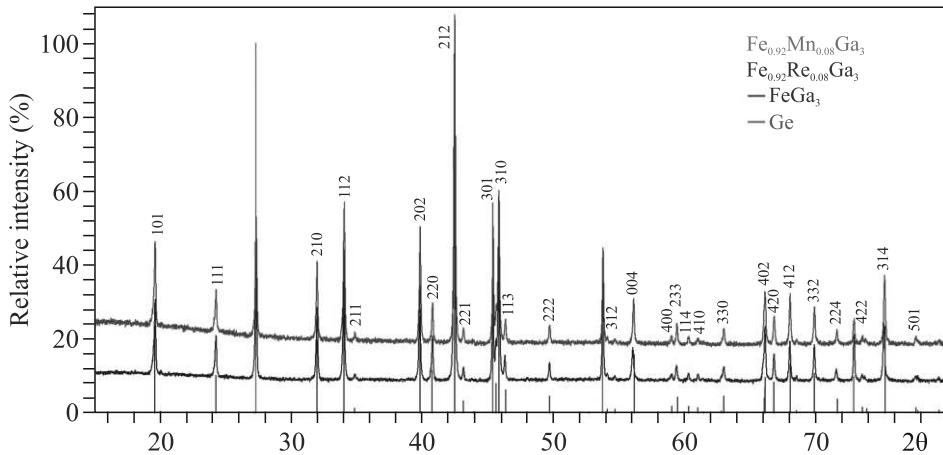


Рис. 2. (Цветной онлайн) Профили порошковых рентгеновских дифрактограмм образцов Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> (M = Mn и Re). Вертикальные линии соответствуют теоретическим положениям рефлексов для FeGa<sub>3</sub> и Ge. Элементный германий использовали в качестве внутреннего стандарта при расчете параметров элементарной ячейки

ми импульсами  $\pi/2$  и  $\pi$  на полностью цифровом фазо-когерентном импульсном спектрометре. Импульсы генерировались платой прямого цифрового синтеза (DDS), а цифровое квадратурное детектирование производилось непосредственно на несущей частоте. Спектры регистрировались как сумма Фурье-преобразований второй половины спинового эха [19–21]. Ядерная спин-решеточная релаксация измерялась методом восстановления намагниченности после насыщения (saturation recovery): насыщение ядерной спиновой системы достигалось последовательностью импульсов  $\pi/2$ , за которыми через время  $\tau$  следовал обычный эксперимент спинового эха  $\pi/2 - \pi$ , так что варьированием  $\tau$  получалась кривая восстановления  $I(\tau)$ .

### Результаты и обсуждение.

**Характеризация.** На рисунке 2 показаны рентгеновские дифрактограммы для двух образцов, Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> (M = Mn, Re), подтверждающие, что оба продукта являются однофазными. Экспериментальные рефлексы немного смешены относительно теоретических положений для чистого FeGa<sub>3</sub>, что указывает на замену железа металлами 7 группы (Mn и Re), приводящее к увеличению объема элементарной ячейки. Расчеты параметров элементарной ячейки привели к следующим значениям:  $a = 6.2655(4)$  Å,  $c = 6.5734(8)$  Å для Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> и  $a = 6.2766(5)$  Å,  $c = 6.5816(10)$  Å для Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub>. Полученные значения хорошо согласуются с параметрами элементарной ячейки для указанных твердых растворов, опубликованными в литературе [15, 16].

Экспериментально определенный состав идеально соответствует номинальному соотноше-

нию металлов: Fe:Mn:Ga = 23.1:1.9:75.0 ат. % (для Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub>) и Fe:Re:Ga = 23.0:2.2:74.8 (для Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub>). Кроме того, элементное картирование поверхности таблеток образцов показало однородное распределение всех элементов по образцу (рис. 3).

**Спектроскопия ЯКР.** Измерения спектров ЯКР галлия проводились на изотопе <sup>69</sup>Ga ввиду его большего естественного содержания (60.4 % против 39.6 % для <sup>71</sup>Ga) и большего квадрупольного момента (0.171 барн против 0.107 барн) [22]. Последнее обстоятельство позволяет проводить измерения на больших частотах, соответствующих более высокой спектральной чувствительности метода. Измерения спектра Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> при азотной температуре уже ранее проводилось нами в работе [16]. Положение основных линий Ga1 и Ga2 оказалось близко к таковому для исходного соединения FeGa<sub>3</sub> [23, 24]. Однако, помимо обычного для замещенных составов уширения линий ЯКР, также наблюдались дополнительные слабые линии на 41.1 МГц (Ga2') и 47.6 МГц (Ga1'), которые были интерпретированы как сигнал от двух позиций галлия рядом с гомогантелями Re-Re [16]. Такой вывод был сделан на основе расчетов градиента электрического поля (ГЭП) нестабильного соединения ReGa<sub>3</sub>, также косвенным подтверждением можно считать позднее наблюдавшиеся высокочастотные линии галлия в изоструктурном ReGa<sub>2</sub>Ge [25].

В качестве дополнительного подтверждения преимущественного формирования гомогантелей в Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> можно рассматривать соотношение интенсивностей линий. Грубая аппроксимация дублета Ga1 + Ga2' двумя гауссовыми линиями

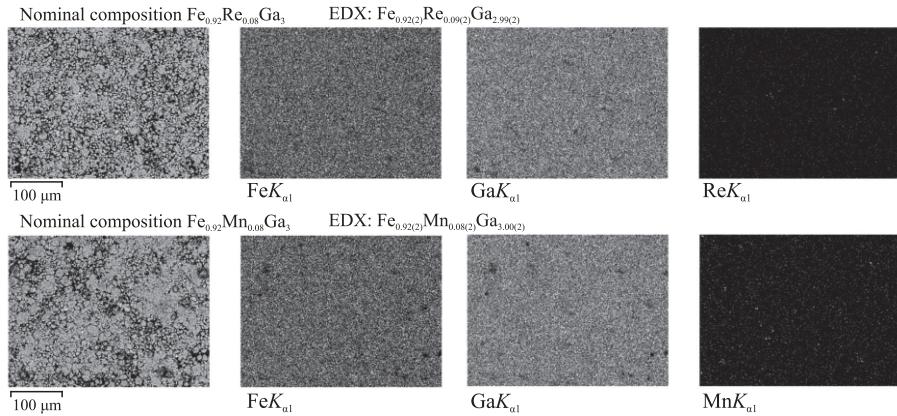


Рис. 3. Элементное картирование поверхности таблеток образцов с номинальным составом  $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$  ( $M = \text{Mn}$  и  $\text{Re}$ )

(пунктирная красная линия на рис. 4) дает соотношение их интенсивностей 0.183(6), которое можно интерпретировать как отношение числа соответствующих атомов галлия. С учетом мультиплетности позиций галлия  $N_{\text{Ga}2}:N_{\text{Ga}1} = 2:1$  число атомов, дающих сигнал на  $\text{Ga}2'$ , составляет 0.092(3) от  $\text{Ga}2$ , т.е. довольно близко к уровню замещения железа на рений. Это хорошо согласуется с предположением о связи линии  $\text{Ga}2'$  с галлием в позиции  $\text{Ga}2$ , имеющим одну гантель  $\text{Re}-\text{Re}$  в ближайшем окружении с равноудаленными от галлия атомами рения (см. рис. 1c). В случае формирования гетерогантелей таких субпозиций  $\text{Ga}2'$  было бы в два раза больше. При другом соотнесении линии  $\text{Ga}2'$  ее интенсивность также значительно отличалась бы: позиция  $\text{Ga}2$ , окруженная хотя бы одной гантелью с замещением (неважно какой), имела бы интенсивность выше в  $\approx 2$  раза (и более в случае гетерогантелей), а атомов галлия, координированных сразу двумя замещенными гантелями, на порядок меньше.

В данной работе впервые был измерен спектр ЯКР марганец-замещенного образца состава  $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$ , что позволяет сравнить спектры обоих замещенных составов между собой, а также с исходным  $\text{FeGa}_3$  (рис. 4). Несмотря на равную степень электрон-дефицитного замещения, по числу как атомов, так и электронов на формулярную единицу, основные линии ЯКР  $\text{Ga}1,2$  замещенных составов заметно отличаются. В частности,  $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$  демонстрирует гораздо меньшее, в два–три раза, уширение линий, чем  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$ , а положения их максимумов ближе к исходному  $\text{FeGa}_3$ , чем к рений-замещенному образцу. При этом если различие в положениях линий еще можно списать на вышеупомянутую небольшую разницу параметров решетки и, следовательно, межатомных

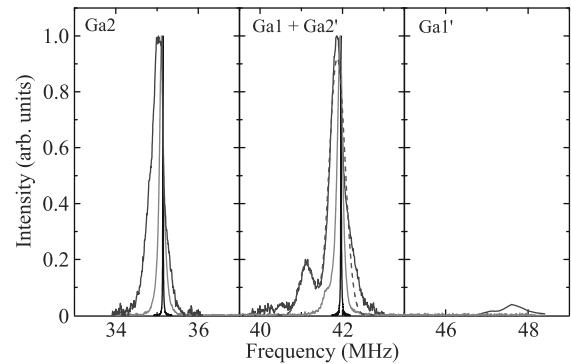


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры ЯКР  $^{69}\text{Ga}$   $\text{FeGa}_3$  [24] (черный),  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$  [16] (зеленый),  $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$  (настоящая работа, оранжевый), полученные при 77 К, а также аппроксимация линии  $\text{Ga}1$   $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$  суммой гауссов (пунктирная красная линия). Линии  $\text{Ga}1$  и  $\text{Ga}2$  (левая и центральная панели) нормированы на единицу, высокочастотная линия (правая панель) нормирована на интенсивность  $\text{Ga}1$

расстояний и абсолютных значений решеточного вклада в ГЭП, то различие в ширине линии нельзя связать с кристаллографическими данными, полученными из рентгеновской дифракции. Поэтому можно говорить о более высокой степени однородности электронной структуры в марганец-замещенном соединении по сравнению с рений-замещенным, что приводит к меньшей дисперсии электронного вклада в ГЭП.

Еще более выраженное различие наблюдается для дополнительных особенностей спектра, отличающихся замещенными соединениями от чистого  $\text{FeGa}_3$ . В то время как спектр  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$  содержит относительно интенсивный пик на 41.1 МГц, линия  $\text{Ga}1$   $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$  демонстрирует лишь слabo

выраженный низкочастотный сателлит в районе 41.6 МГц. Таким образом, дополнительная линия в замещенном марганцем соединении и слабее, и ближе к линии Ga1, чем в случае замещения рением. Высокочастотная линия в окрестности 47.6 МГц и вовсе наблюдается только в Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub>, в то время как в Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> отсутствует какой-либо сигнал во всем диапазоне частот от 43 до 48.4 МГц. Вместе с описанным выше различием в основных линиях, это указывает на существенно менее искаженное (относительно FeGa<sub>3</sub>) локальное распределение электронной плотности в марганец-замещенном соединении по сравнению с рений-замещенным.

Это может быть связано напрямую с различным характером формирования пар M-M для рассматриваемых типов замещения. Статистическое распределение гомо- и гетерогантелей Fe-Fe, Fe-M и M-M невозможно определить методом рентгеновской дифракции, чувствительной к дальнему порядку, однако будет оказывать влияние на локальную электронную структуру и, соответственно, на сигнал ЯКР галлия в ближайших координационных сферах. В связи с этим можно предположить, что в отличие от рения, марганец преимущественно формирует гетерогантели Fe-Mn, которые содержат всего на один электрон меньше гомогантелей Fe-Fe в исходной структуре FeGa<sub>3</sub>, и потому гораздо слабее искажают ГЭП на ближайших позициях галлия. Такое различие в распределении замещающих атомов может быть связано как с разницей их атомных радиусов (1.61 Å и 1.88 Å соответственно для Mn и Re [26]), так и с разной диффузностью 3d-орбиталей марганца и 5d-орбиталей рения: марганец, будучи более похожим по этим параметрам на железо, легче смешивается с ним в гетерогантели.

**Ядерная спин-решеточная релаксация.** С целью исследования спиновой динамики исследуемых соединений мы провели измерения скорости ядерной спин-решеточной релаксации на основных линиях ЯКР галлия Ga1,2 в Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> и Ga1 в Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> в широком диапазоне температур 3–300 К. Все релаксационные кривые хорошо описывались стандартным выражением для растянутой экспоненты  $I(\tau) = I_0 + (I_{\max} - I_0) * (1 - \exp[-(\tau/T_1)^{\beta}])$ , где  $I_0$  – интенсивность остаточного эха, наблюдавшегося из-за неполного насыщения,  $I_{\max}$  – максимальная интенсивность эха после полного восстановления продольной ядерной намагниченности,  $\beta < 1$  – коэффициент растяжения. Умеренное растяжение релаксационной кривой часто встречается в системах с внутренним беспорядком, в данном случае вызван-

ным замещением, и согласуется с заметным уширением спектральных линий (рис. 4).

На рисунке 5 представлены полученные значения скоростей ядерной спин-решеточной релаксации  $1/T_1$  как функция температуры. Для всех трех температурных зависимостей характерен выраженный максимум в районе 70–100 К. Такой вид кривой  $1/T_1(T)$  качественно напоминает зависимость для исходного FeGa<sub>3</sub>, где широкий максимум скорости релаксации в районе 5–7 К связывался с внутрищелевыми электронными состояниями [17]. Вероятно, в исследуемых составах максимум скорости релаксации также связан с зонами внутри основной полупроводниковой щели. В отличие от таких незамещенных соединений, как FeGa<sub>3</sub> [17] и RuGa<sub>3</sub> [24], в данном случае мы можем точно говорить именно об акцепторных уровнях, так как оба типа замещения электрон-дефицитные, а их положение и емкость детерминируется уровнем замещения на рений или марганец. Существенный рост, примерно на порядок, характерных температур максимума релаксации по сравнению с FeGa<sub>3</sub> может быть связан с увеличением изоляции внутрищелевого уровня и с увеличением характерной температуры его насыщения. Он также согласуется с кратным повышением верхней границы режима прыжкового транспорта с переменной длиной прыжка при допировании марганцем по данным измерения сопротивления [15]. Стоит отметить, что такой путь создания внутрищелевых состояний приводит к существенно большей (на ~2 порядка) абсолютной высоте пика скорости релаксации, так что в замещенном марганцем соединении в максимуме она даже достигает значений Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Ga<sub>3</sub> (рис. 5), демонстрирующем самую высокую скорость релаксации в ряду Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>Ga<sub>3</sub> за счет магнитных флуктуаций и электронов проводимости [17]. Релаксация на различных позициях Ga1 и Ga2 не носит качественных различий, хотя в случае Ga2 максимум более выраженный.

При аппроксимации кривых восстановления мы не фиксировали коэффициент растяжения  $\beta$ , так что нам удалось отследить температурные зависимости этого показателя для разных линий для образцов Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> и Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> (рис. 6). Все три зависимости демонстрируют рост коэффициента растяжения выше 200 К, указывающий на повышение степени однородности системы с ростом температуры. Вероятно, этот процесс связан с ростом тепловых осцилляций атомов и усреднением локальных скоростей релаксации. Более нетривиальная картина наблюдается при низких температурах: в Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub>  $\beta$  остается в пределах 0.5–0.6 вплоть

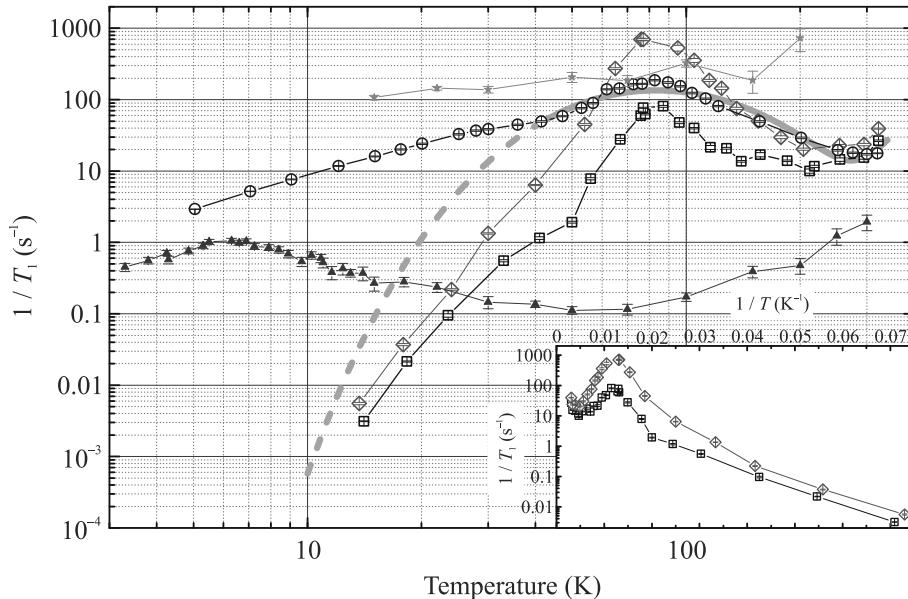


Рис. 5. (Цветной онлайн) Скорость ядерной спин-решеточной релаксации  $1/T_1$  на ядрах  $^{69}\text{Ga}$  в зависимости от температуры в  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$  на позициях Ga1 (черные незакрашенные квадраты) и Ga2 (красные незакрашенные ромбы) и в  $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$  на Ga1 (синие незакрашенные круги) вместе с симуляцией согласно выражению (1) (темно-желтая широкая кривая); также для сравнения приведены ранее опубликованные значения для  $\text{FeGa}_3$  (пурпурные закрашенные треугольники) и  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Ga}_3$  (оранжевые закрашенные звезды) [17]. На вставке: зависимость скоростей релаксации в  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$  от обратной температуры  $1/T$

до 5 К, в то время как обе линии  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$  демонстрируют уверенный рост коэффициента растяжения ниже 30 К. С одной стороны, сам по себе низкотемпературный рост коэффициента растяжения релаксационной кривой является более редким явлением, чем высокотемпературный, с другой – интересны причины различия поведения столь близких, на первый взгляд, составов.

Такой сложный характер температурных зависимостей скорости релаксации и коэффициента растяжения мотивировал нас провести исследование релаксационных процессов также и на втором изотопе галлия  $^{71}\text{Ga}$ . Существенно различающиеся в разные стороны квадрупольные моменты и гиромагнитные отношения двух изотопов галлия могут помочь оценить характер преимущественного вклада в релаксационные процессы в исследуемых соединениях. На рисунке 7 приведены температурные зависимости отношения скоростей релаксации на обоих изотопах  $R = (1/^{69}T_1)/(1/^{71}T_1)$  для исследуемых линий. Налицо резкое различие между рениевыми и марганец-замещенными составами. В частности, в  $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$  отношение скоростей релаксации во всем диапазоне температур лежит в окрестности квадрата отношения гиромагнитных отношений  $R_M = (^{69}\gamma/^{71}\gamma)^2 = 0.620$ , что указывает на преобладающее значение магнитных спин-флуктуационных

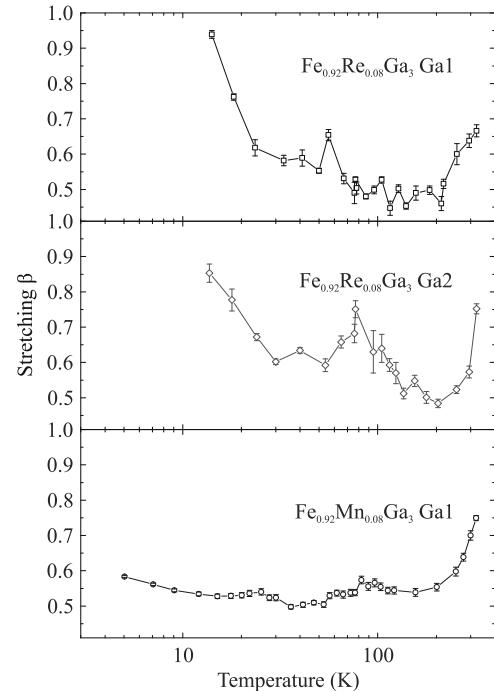


Рис. 6. (Цветной онлайн) Температурные зависимости коэффициента растяжения  $\beta$  для в  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$  на позициях Ga1 (верхняя панель) и Ga2 (средняя панель) и в  $\text{Fe}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Ga}_3$  на Ga1 (нижняя панель)

процессов релаксации. Обе линии  $\text{Fe}_{0.92}\text{Re}_{0.08}\text{Ga}_3$ , хотя и демонстрируют также преимущественно спин-

флуктуационный характер релаксации при приближении к комнатной температуре и ниже ~60 K, испытывают существенное отклонение  $R$  от  $R_M$  в области промежуточных температур, что указывает на рост вклада флуктуаций электронной плотности в механизмы релаксации в окрестности максимума скорости релаксации (рис. 5). При этом максимум  $R$  для Ga2 более интенсивный и даже практически достигает в районе 100 K значения  $R_E = ({}^{69}Q / {}^{71}Q)^2 = 2.554$ , соответствующего чисто квадрупольным механизмам релаксации.

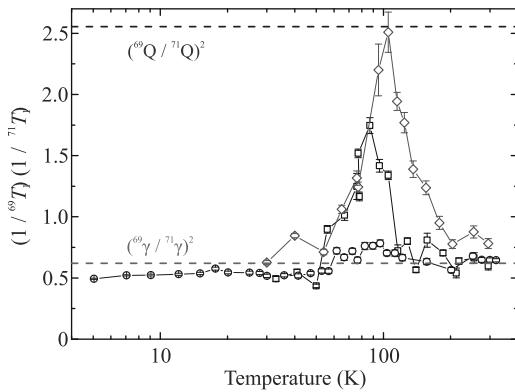


Рис. 7. (Цветной онлайн) Температурные зависимости отношения скоростей релаксации на изотопах галлия для в Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> на позициях Ga1 (черные незакрашенные квадраты) и Ga2 (красные незакрашенные ромбы) и в Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> на Ga1 (синие незакрашенные круги)

С целью проверки предположения о преобладающей роли внутрищелевых состояний в ядерной спинорешеточной релаксации мы сравнили зависимость  $1/T_1(T)$  для Ga1 в Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub> с теоретической (широкая темно-желтая кривая на рис. 5), построенной в модели прямоугольных зон, ранее успешно примененной к FeSb<sub>2</sub> [27] и FeGa<sub>3</sub> [17]. В этой модели мы учитываем собственно активацию носителей заряда во внутрищелевую акцепторную зону ( $1/T_1$ )<sub>in-gap</sub> и обычный процесс активации через основную щель ( $1/T_1$ )<sub>main-gap</sub>, ответственный за высокотемпературное поведение:

$$\frac{1}{T_1} = \left( \frac{1}{T_1} \right)_{\text{in-gap}} + \left( \frac{1}{T_1} \right)_{\text{main-gap}} =$$

$$= T \{ \rho_i^2 [f(\delta) - f(\delta + \omega)] + \rho_m^2 [f(\Delta) - f(\Delta + W)] \}, \quad (1)$$

где  $f(\varepsilon) = [\exp(\varepsilon/T) + 1]^{-1}$  – функция распределения Ферми,  $W$  – ширина основной зоны,  $2\delta$  – основная щель,  $\omega$  – ширина акцепторного уровня,  $2\delta$  – расстояние между ним и валентной зоной (рис. 8).

Плотность состояний основных зон  $\rho_m$  полагаем температурно-независимой, в то время как для акцепторного уровня предполагается насыщение по закону  $\rho_i = \rho_0 \exp(-T/T_0)$  с характерной температурой насыщения  $T_0$ . На рисунке 8 отмечены три основных температурных режима:

*LT* – низкие температуры, вероятность любых активационных процессов стремится к нулю;

*IT* – промежуточные температуры, происходит заброс носителей заряда на акцепторный уровень, обусловленный электрон-дефицитным замещением, при этом уровень насыщается по мере роста температуры;

*HT* – высокие температуры, акцепторный уровень насыщен, и переброс носителей происходит только через основную щель  $2\Delta$ .

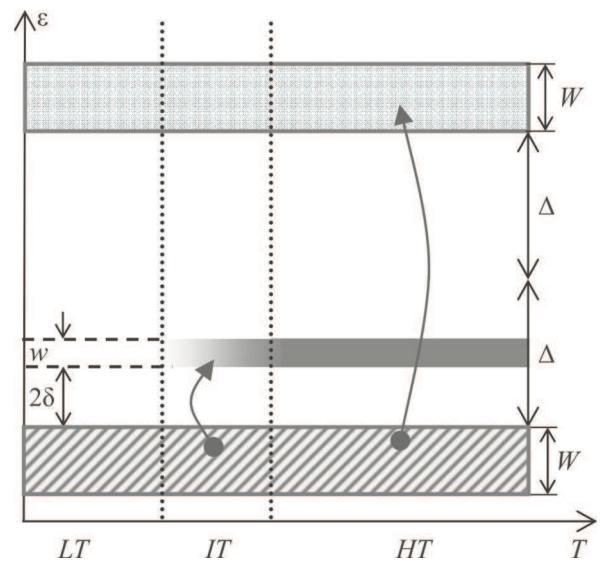


Рис. 8. (Цветной онлайн) Схема энергетических зон Fe<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>Ga<sub>3</sub> (M = Mn и Re), см. текст

Описанная модель дает резкое падение скорости релаксации с понижением температуры ниже ~40 K близко к активационному закону, что заметно расходится с наблюдаемой зависимостью  $1/T_1(T)$  для Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub>Ga<sub>3</sub>. Вероятно, при самых низких температурах начинают преобладать иные механизмы релаксации (режим *LT* на рис. 8), поэтому мы симулировали данные начиная только с ~40 K (широкая темно-желтая кривая на рис. 5). Поскольку основная щель и зоны определяют поведение системы только при достаточно высоких температурах, то симуляция в исследованном диапазоне температур слабо чувствительна к их параметрам, поэтому мы зафиксировали щель на уровне  $2\Delta = 2000$  K, примерно соответствующем оценке из транспортных измерений

**Таблица 1.** Параметры внутрищелевых зон интерметаллидов со структурой FeGa<sub>3</sub>, полученные из симуляции моделью прямогоугольных зон

Параметр	FeGa <sub>3</sub> [17]	Fe <sub>0.92</sub> Mn <sub>0.08</sub> Ga <sub>3</sub>
Расстояние между внутрищелевым уровнем и основной зоной $2\delta$	13 К	280 К
Характерная температура насыщения $T_0$	11.5 К	105 К

для близких уровней замещения на марганец [15]. Варьированием остальных параметров зонной структуры удалось описать экспериментальные данные с хорошей точностью (рис. 5). При этом наилучшее согласие достигается при значениях  $2\delta$  и  $T_0$  заметно выше, примерно на порядок, таковых для исходного FeGa<sub>3</sub> (табл. 1). Такое различие объясняется существенно более высокой температурой соответствующего максимума  $1/T_1(T)$  в Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub> Ga<sub>3</sub>, поскольку расстояние между зонами  $2\delta$  определяет нарастание скорости релаксации с ростом температуры, а  $T_0$  – напротив, спад с повышением температуры.

Низкотемпературное поведение скорости спин-решеточной релаксации в Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub> Ga<sub>3</sub>, видимо, определяется слабым магнетизмом, привносимым марганцем. Измерения восприимчивости в [15] показали, что замещающие железо атомы марганца в системе Fe<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub> Ga<sub>3</sub> с низким  $x$  имеют магнитный момент, близкий к теоретическому для спинов  $S = 1/2, 1.73 \mu_B$ . Авторы этого исследования также наблюдали низкотемпературные магнитные корреляции, в том числе в близких к нашему составах. Такой магнетизм согласуется с предположением о преимущественном формировании гетерогантелей Fe–Mn, в которых неспаренный электрон марганца оказывается изолированным.

В противоположность марганцевому замещению, в Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub> Ga<sub>3</sub> скорость спин-решеточной релаксации испытывает резкое падение ниже максимума. Качественно скорость падения  $1/T_1(T)$  в этом диапазоне температур похожа на симуляцию релаксации за счет активационных процессов согласно (1) (рис. 5). Действительно, представив эту зависимость в полулогарифмических координатах  $\log(1/T_1)$  vs  $1/T$  (вставка рис. 5), мы видим для обеих позиций галлия практически линейные участки, соответствующие активационной зависимости. Наблюдаемая разница с Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub> Ga<sub>3</sub> может быть связана с вышеупомянутым преимущественным формированием гомогантелей Re–Re: если ионы рения также имеют спин  $S = 1/2$ , то, расположенные вместе, они формируют спиновый синглет  $S = 0$ , не оказывающий уже такого заметного влияния на галлий.

**Заключение.** В данной работе мы синтезировали и исследовали два электрон-дефицитных соста-

ва на основе FeGa<sub>3</sub>: с замещением железа на рений (Fe<sub>0.92</sub>Re<sub>0.08</sub> Ga<sub>3</sub>) и на марганец (Fe<sub>0.92</sub>Mn<sub>0.08</sub> Ga<sub>3</sub>). Оба соединения имеют равные степени замещения 8% и равное количество валентных электронов на формульную единицу – по 16.92. Несмотря на ожидаемое сходство, исследование локальной электронной структуры методом ЯКР выявило существенные различия как в статическом распределении электронной плотности, так и в ее динамических свойствах. Это связано, по-видимому, с различным характером распределения замещающих атомов: в то время как рений формирует преимущественно гомогантели Re–Re, марганец в основном встраивается в гетерогантели Fe–Mn. Тем не менее оба исследуемых соединения объединяет наличие довольно емкого акцепторного уровня внутри основной щели. В отличие от исходного FeGa<sub>3</sub>, где внутрищелевые состояния были связаны с дефектами, в замещенных составах такой уровень строго обусловлен количеством и типом замещающих атомов. Таким образом, в представленном исследовании мы описали изменение электронной структуры в перспективной термоэлектрической системе на основе FeGa<sub>3</sub> под действием электрон-дефицитного замещения и показали, что это изменение также сильно зависит от типа замещающих атомов. Полученные результаты могут быть полезны для определения направления поиска и оптимизации термоэлектрических материалов на основе интерметаллидов, поскольку их эффективность тесно связана с электронной структурой. При этом некоторые неразрешенные вопросы относительно природы флуктуационных процессов (конкретные механизмы низкотемпературной релаксации, квадрупольный вклад в районе максимума и низкотемпературное снижение дисперсии релаксационных процессов в рений-замещенном соединении) в представленных электрон-дефицитных системах остаются открытыми и требуют дальнейшего изучения.

**Финансирование работы.** Эта работа была выполнена при поддержке Российского научного фонда, грант # 22-13-00006.

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

1. M. S. Likhanov and A. V. Shevelkov, Russian Chemical Bulletin **69**(12) 2231 (2020); doi: 10.1007/s11172-020-3047-5.
2. V. Yu. Verchenko and A. A. Tsirlin, Inorg. Chem. **61**(7), 3274 (2022); doi: 10.1021/acs.inorgchem.1c03843.
3. A. Lim and D. C. Fredrickson, Inorg. Chem. **62**(27), 10833 (2023); doi: 10.1021/acs.inorgchem.3c01496.
4. Y. Amagai, A. Yamamoto, C. Lee, H. Takazawa, T. Noguchi, H. Obara, T. Lida, and Y. Takanashi, MRS Online Proc. Libr. 2004 7931 **793**(1), 359 (2004); doi: 10.1557/PROC-793-S8.38.
5. G. D. Mahan and J. O. Sofo, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **93**(15), 7436 (1996); doi: 10.1073/pnas.93.15.7436.
6. V. J. Yannello and D. C. Fredrickson, Inorg. Chem. **54**(23), 11385 (2015); doi: 10.1021/acs.inorgchem.5b02016.
7. S. V. Popova and L. N. Fomicheva, Inorg. Mater. **18**, 205 (1982).
8. D. Kasinathan, M. Wagner, K. Koepernik, R. Cardoso-Gil, Y. Grin, and H. Rosner, Phys. Rev. B – Condens. Matter Mater. Phys. **85**(3), 035207 (2011); doi: 10.1103/PhysRevB.85.035207.
9. K. Umeo, Y. Hadano, S. Narazu, T. Onimaru, M. A. Avila, and T. Takabatake, Phys. Rev. B – Condens. Matter Mater. Phys. **86**(14), 144421 (2012); doi: 10.1103/PhysRevB.86.144421.
10. Y. Takagiwa, Y. Matsuura, and K. Kimura, J. Electron. Mater. **43**(6), 2206 (2014); doi: 10.1007/s11664-014-3008-6.
11. M. S. Likhanov, V. Yu. Verchenko, M. A. Bykov, A. A. Tsirlin, A. A. Gippius, D. Berthebaud, A. Maignan, and A. V. Shevelkov, J. Solid State Chem. **236**, 166 (2016); doi: 10.1016/j.jssc.2015.08.028.
12. M. S. Likhanov, V. Yu. Verchenko, D. I. Nasonova, A. A. Gippius, S. V. Zhurenko, E. I. Demikhov, C. N. Kuo, C. S. Lue, B. L. Young, and A. V. Shevelkov, J. Alloys Compd. **745**, 341 (2018); doi: 10.1016/j.jallcom.2018.02.216.
13. E. M. Bittar, C. Capan, G. Seyfarth, P. G. Pagliuso, and Z. Fisk, J. Phys. Conf. Ser. **200**(1), 012014 (2010); doi: 10.1088/1742-6596/200/1/012014.
14. B. Ramachandran, K. Z. Syu, Y. K. Kuo, A. A. Gippius, A. V. Shevelkov, V. Yu. Verchenko, and C. S. Lue, J. Alloys Compd. **608**, 229 (2014); doi: 10.1016/j.jallcom.2014.04.117.
15. M. B. Gamza, J. M. Tomczak, C. Brown, A. Puri, G. Kotliar, and M. C. Aronson, Phys. Rev. B – Condens. Matter Mater. Phys. **89**(19), 195102 (2014); doi: 10.1103/PhysRevB.89.195102.
16. M. S. Likhanov, V. O. Zhupanov, V. Yu. Verchenko, A. A. Gippius, S. V. Zhurenko, A. V. Tkachev, D. I. Fazlizhanova, D. Berthebaud, and A. V. Shevelkov, J. Alloys Compd. **804**, 331 (2019); doi: 10.1016/j.jallcom.2019.07.033.
17. A. A. Gippius, V. Yu. Verchenko, A. V. Tkachev, N. E. Gervits, C. S. Lue, A. A. Tsirlin, N. Büttgen, W. Krätschmer, M. Baenitz, M. Shatruk, and A. V. Shevelkov, Phys. Rev. B – Condens. Matter Mater. Phys. **89**(10), 104426 (2014); doi: 10.1103/PhysRevB.89.104426.
18. F. R. Wagner, R. Cardoso-Gil, B. Boucher, M. Wagner-Reetz, J. Sichelschmidt, P. Gille, M. Baenitz, and Y. Grin, Inorg. Chem. **57**(20), 12908 (2018); doi: 10.1021/acs.inorgchem.8b02094.
19. A. P. Bussandri and M. J. Zuriaga, J. Magn. Reson. **131**(2), 224 (1998); doi: 10.1006/jmre.1998.1363.
20. W. G. Clark, M. E. Hanson, F. Lefloch, and P. Ségransan, Rev. Sci. Instrum. **66**(3), 2453 (1995); doi: 10.1063/1.1145643.
21. Y. Y. Tong, J. Magn. Reson. – Ser. A **119**(1), 22 (1996); doi: 10.1006/jmra.1996.0047.
22. <https://www.pascal-man.com/periodic-table/gallium.shtml> (accessed Sep.09,2024).
23. V. Yu. Verchenko, M. S. Likhanov, M. A. Kirsanova, A. A. Gippius, A. V. Tkachev, N. E. Gervits, A. V. Galeeva, N. Büttgen, W. Krätschmer, C. S. Lue, K. S. Okhotnikov, and A. V. Shevelkov, J. Solid State Chem. **194**, 361 (2012); doi: 10.1016/J.JSSC.2012.05.041.
24. A. A. Gippius, A. V. Tkachev, S. V. Zhurenko, A. V. Gunbin, E. I. Demikhov, C.-N. Kuo, C.-S. Lue, N.-Q. Nguyen, C.-W. Luo, V. N. Khrustalev, R. D. Svetogorov, M. S. Likhanov, and A. V. Shevelkov, J. Alloys Compd. **938**, 168522 (2023); doi: 10.1016/j.jallcom.2022.168522.
25. M. S. Likhanov, V. Yu. Verchenko, A. A. Gippius, S. V. Zhurenko, A. V. Tkachev, Z. Wei, E. V. Dikarev, A. N. Kuznetsov, and A. V. Shevelkov, Inorg. Chem. **59**(17), 12748 (2020); doi: 10.1021/acs.inorgchem.0c01805.
26. E. Clementi, D. L. Raimondi, and W. P. Reinhardt, J. Chem. Phys. **47**(4), 1300 (1967); doi: 10.1063/1.1712084.
27. A. A. Gippius, K. S. Okhotnikov, M. Baenitz, and A. V. Shevelkov, Solid State Phenom. **152–153**, 287 (2009); doi: 10.4028/www.scientific.net/SSP.152-153.287.

# Аномальное поведение длинноволновых оптических фононов в релаксорном сегнетоэлектрике $\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$

Н. К. Дерец<sup>+</sup>, А. И. Федосеев<sup>+</sup>, Т. А. Смирнова<sup>+</sup>, Дж.-Х. Ко<sup>\*1)</sup>, С. Г. Лушников<sup>+2)</sup>

<sup>+</sup>Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия

<sup>\*</sup>Department of Physics, Hallym University, 1 Hallymdaehakgil, Chuncheon, 24252 Gangwondo, Republic of Korea

Поступила в редакцию 27 сентября 2024 г.

После переработки 3 октября 2024 г.

Принята к публикации 3 октября 2024 г.

В работе представлены результаты исследований колебательного спектра кристалла  $\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PNN) с помощью рамановского рассеяния света в интервале температур от 100 до 650 К, включаящем в себя область “размытого фазового перехода” с максимумом диэлектрической проницаемости при  $T_m = 150$  К на частоте 10 кГц. Поляризованные спектры рассеяния света в PNN подобны спектрам, наблюдавшимися в ряде исследованных релаксорных сегнетоэлектриков со структурой перовскита  $AB'B''\text{O}_3$ . Анализ температурной эволюции фононных мод позволил выделить особые точки в динамике кристаллической решетки PNN – при  $T_1 = 280$  К и  $T_m = 150$  К. Показано, что аномалии в температурной поведении оптических фононов в окрестности  $T_1$  могут быть связаны с динамикой полярных нанообластей, характер которой меняется от динамической, к статической. В исследованном температурном интервале для кристаллов PNN предложена последовательность фазовых превращений.

DOI: 10.31857/S0370274X24110179, EDN: GTFPGA

Релаксорные сегнетоэлектрики из семейства перовскитов с общей формулой  $AB'B''\text{O}_3$  являются предметом активных исследований на протяжении последних десятилетий. Эти соединения являются очень интересным примером частично разупорядоченных кристаллов, в которых в  $B$ -подрешетку перовскита  $\text{ABO}_3$  вводят два разновалентных иона. Это приводит к принципиальному изменению динамики решетки: появляется широкая, размытая по температуре частотно-зависимая аномалия диэлектрического отклика, не связанная в общем случае со структурным фазовым переходом. Повышение частоты приводит к смещению максимума диэлектрической проницаемости ( $T_m$ ) в область высоких температур. При  $T < T_m$  возникает состояние релаксорного сегнетоэлектричества (релаксоров) [1]. Механизмы возникновения этого состояния на протяжении многих лет широко обсуждаются научной общественностью [1–4], но до сих пор единой точки зрения не сложилась. Консенсус во мнениях исследователей сложился в понимании ключевой роли полярных нанообластей в появлении релаксорного состояния [2–4].

Характерной особенностью сложнокомпонентных перовскитов с общей формулой  $A'_x A''_{1-x} B'_y B''_{1-y} \text{O}_3$ , к

которым относятся и релаксоры, является поляризованный спектр рамановского рассеяния света, наблюдаемый практически во всех соединениях из этого семейства, хотя такие рамановские спектры запрещены правилами отбора для кристаллов со структурой перовскита (пр. группа  $Pm\bar{3}m$ ). Более того, наблюдаемые в кубических релаксорах спектры рамановского рассеяния подобны [5, 6]. В литературе обсуждались разные причины нарушений правил отбора в сложнокомпонентных перовскитах [6–8]. Наиболее вероятный механизм появления рамановского рассеяния в релаксорах, по-видимому, связан с локальнымиискажениями структуры перовскита из-за неэквивалентности кислородных октаэдров, образующихся при росте кристаллов при статистическом распределении  $B'$  и  $B''$  ионов [4]. Исследования динамики решетки релаксоров с помощью рамановской спектроскопии были направлены в основном на поиск мягких мод, ответственных за аномалию диэлектрического отклика (см. [2, 4] и ссылки в них). Результаты этих исследований показали достаточно сложную картину температурной эволюции низкочастотной области колебательного спектра релаксоров [4], появление в спектрах рассеяния света квазиупругой компоненты, температурное поведение которой определяется динамикой полярных нанообластей [2, 9–11].

<sup>1)</sup>Д.-Х. Ко.

<sup>2)</sup>e-mail: sergey.lushnikov@mail.ioffe.ru

В последнее десятилетие было показано, что динамика фазовых превращений релаксорных сегнетоэлектриков меняется в соединениях с магнитными ионами в *B*-подрешетке. Возникают дополнительно к релаксорному состоянию антиферромагнитные и спин-стекольные, как для кристаллов  $\text{PbFe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$  (PFN), так и  $\text{PbFe}_{1/2}\text{Ta}_{1/2}\text{O}_3$  (PFT) [12]. А в некоторых случаях – реализуется зарядовое фазовое расслоение, обнаруженное в кристаллах  $\text{PbCo}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PCN) [13] и предполагающееся для  $\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PNN) [14]. Первые исследования динамики кристаллической решетки в PCN с помощью рамановской и бриллюэновской спектроскопии показали нерелаксорное поведение фононной и релаксационной подсистем, что связывалось авторами [15] с зарядовым фазовым расслоением.

Релаксорный сегнетоэлектрик  $\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PNN) был синтезирован одновременно с модельным и к настоящему времени хорошо изученным кристаллом  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PMN) в 1958 г. [16]. Но динамика решетки кристалла PNN изучена существенно хуже. Симметрия кристаллов PNN при комнатной температуре кубическая  $Pm\bar{3}m$  с  $a = 4.03 \text{ \AA}$  [14]. Высказывались предположения о существовании низкотемпературного фазового перехода в ромбоэдрическую фазу [17], но исследования поведения теплоемкости не обнаружили неустойчивости кристаллической решетки PNN в диапазоне температур от 2 до 400 К [18]. Исследования диэлектрических свойств кристаллов PNN показали существование “размытых”, частотно-зависимых аномалий диэлектрического отклика в окрестности  $T_m$ , подобных тем, что наблюдаются в модельном релаксоре PMN [19]. Максимум диэлектрической проницаемости при увеличении пробной частоты смещается в сторону высоких температур. Анализ температурного поведения проводимости на постоянном токе показал его термоактивационный характер, с энергиями активации  $E_a = 770 \text{ мэВ}$  при  $T > 310 \text{ К}$  и  $E_a = 23 \text{ мэВ}$  при  $T < 310 \text{ К}$ . Результаты исследований частотной зависимости проводимости дают основание предполагать существование полярных областей с локальной проводимостью в области низких температур, связанных с зарядовым фазовым расслоением [14]. Это состояние может быть обусловлено конечной вероятностью туннелирования  $e_g$  электронов между ионами  $\text{Ni}^{2+}$  и  $\text{Ni}^{3+}$ , находящихся в полярных областях [13]. В работе [14] показано, что при увеличении температуры, в окрестности 350 К, характер проводимости в PNN плавно меняется от локальной (при  $T < 350 \text{ К}$ ) к объемной. Исследования температурного поведения

объемного коэффициента теплового расширения в PNN позволили определить температуру Бернса ( $T_d = 390 \pm 40 \text{ К}$ ), ниже которой возникает среднеквадратичная поляризация, определяемая полярными нанообластями [20]. Изучение магнитных свойств PNN продемонстрировало параметрический характер поведения магнитной восприимчивости вплоть до 5 К [21]. Первые работы по рамановской спектроскопии кристаллов PNN показали существование поляризованного рамановского спектра [22, 23], но детальные исследования температурного поведения длинноволновых оптических фононов не проводились. Это мотивировало нас провести детальные исследования динамики кристаллической решетки в кристалле PNN в окрестности аномалии диэлектрического отклика с помощью рамановского рассеяния света и сопоставить эти результаты с опубликованными данными по поведению длинноволновых оптических фононов в PMN.

Монокристаллы PNN, с кубической огранкой, желто-зеленого цвета, были выращены методом спонтанной кристаллизации. Состав кристаллов PNN был подтвержден рентгенофлуоресцентным методом. После предварительной ориентации с помощью рентгеноструктурного анализа из кристаллов были вырезаны пластины  $1 \times 2 \times 3 \text{ мм}$ . Плоскость (100) в образце была отполирована до оптического качества. Образцы кристалла PMN в виде пластин  $1 \times 2 \times 3 \text{ мм}$  были приготовлены из були, выращенной методом Чохральского, состав и ориентация образца были проверены с помощью рентгеноструктурного анализа.

Эксперименты по рамановскому рассеянию света в кристаллах PNN проводились с помощью спектрометра LabRam HR Evolution (Horiba, Japan), со встроенным оптическим микроскопом и супер-нотч фильтром для подавления рэлеевского рассеяния на несмешенной частоте. Источником света в этих измерениях служил твердотельный лазер (Torus 532, Laser Quantum) с  $\lambda = 532 \text{ нм}$ . Мощность падающего света на образце была не выше 42 мВт. Поляризации падающего и рассеянного света в  $180^\circ$  геометрии рассеяния были направлены вдоль [001],  $\mathbf{q}_{ph} \parallel [100]$  как для PNN, так и для PMN. В экспериментах анализировались спектры с поляризацией X(ZZ)X–(VV), и X(ZY)X–(VH). Разрешение прибора составляло  $0.5 \text{ см}^{-1}$ . Квазиупругое рассеяние света (QELS), наблюдаемое на нулевой частоте, хорошо описывается дебаевским релаксатором [24]. Результаты анализа температурного поведения квазиупругого рассеяния света в PNN будут опубликованы отдельно. Во всех температурных экспериментах (от 90 до 650 К)

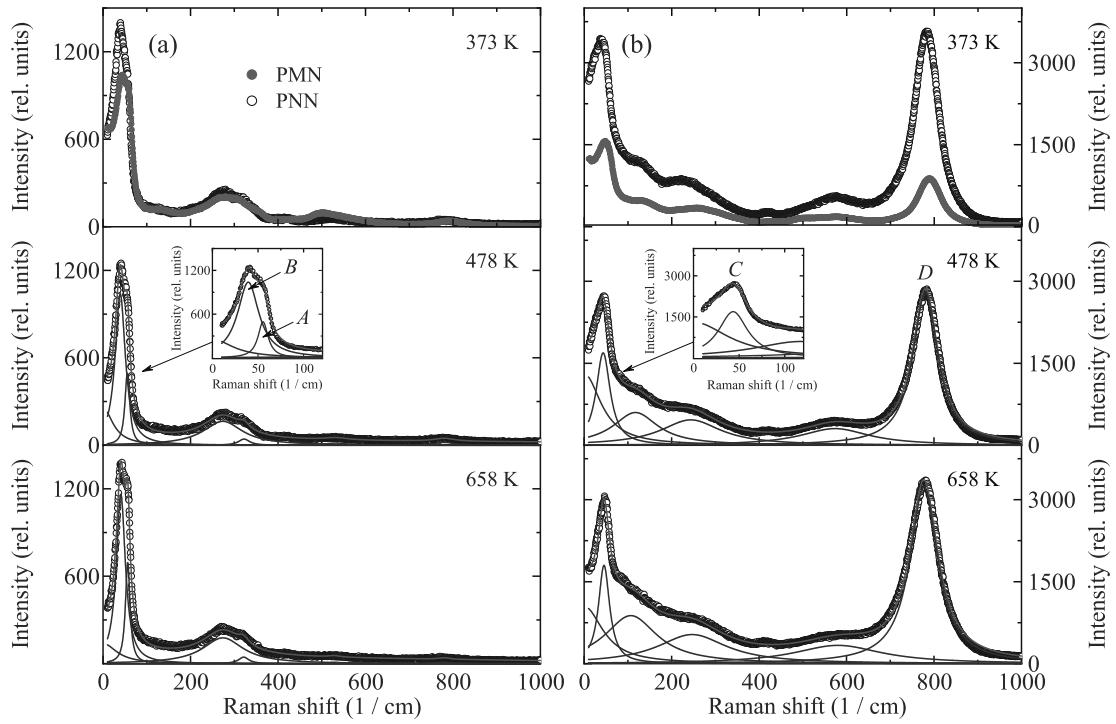


Рис. 1. (Цветной онлайн) Рамановские спектры PNN в VV-поляризации (а) и VH-поляризации (б) при различных температурах. Для сопоставления представлены экспериментальные спектры рассеяния в кристалле PMN (а), (б). Сплошными линиями представлены результаты подгонки спектров с помощью выражений (1) и (2) (см. текст). На вставке приведен в увеличенном масштабе результат подгонки низкочастотной области спектра рассеяния

образец помещался в оптическую камеру для нагревания и охлаждения (Linkam 600), фиксирующуюся на предметном столике микроскопа, точность стабилизации температуры составляла  $\pm 1^{\circ}\text{C}$ . При анализе экспериментальных спектров рассеяния света использовалась сумма функции Лоренца для фононов и функции для дебаевского релаксатора, которым описывалось квазиупругое рассеяние света:

$$I_0(v) = I_B + \frac{2A_{\text{QELS}}}{\pi} \frac{\Gamma_{\text{QELS}}}{4v^2 + \Gamma_{\text{QELS}}^2} + \sum_i \frac{2A_i}{\pi} \frac{\Gamma_i}{4(v - v_i)^2 + \Gamma_i^2}, \quad (1)$$

где  $A_i$  – интенсивность,  $v_i$  – положение,  $\Gamma_i$  – полная ширина на полувысоте линии в спектре,  $I_B$  – фоновая интенсивность соответственно. При подгонке экспериментальных рамановских спектров PNN проводилась коррекция интенсивности линий ( $I$ ) на фактор Бозе–Эйнштейна, для чего использовалась выражение (2):

$$I(v) = I_0(v)[n(v) + 1], \text{ где } n(v) = (e^{hv/kT} - 1)^{-1}, \quad (2)$$

здесь  $h$  – постоянная Планка,  $k$  – постоянная Больцмана,  $T$  – температура образца. Обработка спектров

проходила с помощью метода наименьших квадратов в среде пакета MatLab.

В ходе измерений были получены хорошо поляризованные рамановские спектры PNN и PMN (рис. 1а, б). Как хорошо видно из рис. 1, спектры рамановского рассеяния в PNN подобны тем спектрам, которые наблюдаются в PMN. Это дает нам основание предположить, что механизмы появления рамановского рассеяния первого порядка в PMN и PNN одни и те же. В настоящей работе мы будем анализировать температурные зависимости частоты и ширины на полувысоте основных мод в рамановских спектрах PNN, сопоставляя их с поведением аналогичных мод в кристалле PMN [25]. Таким образом, мы рассматриваем поведение двух низкочастотных колебаний в VH поляризации с частотами  $B$  ( $v_3 = 37 \text{ cm}^{-1}$ ) и  $A$  ( $v_4 = 55 \text{ cm}^{-1}$ ) и двух хорошо определенных мод в VV поляризации с частотами  $C$  ( $v_1 = 39 \text{ cm}^{-1}$ ) и  $D$  ( $v_2 = 782 \text{ cm}^{-1}$ ) (рис. 1). Значение частот мод указано для комнатной температуры.

Температурная эволюция спектров рассеяния света в кристаллах PNN показана на рис. 1. Там же представлены и примеры подгонки экспериментальных спектров с помощью выражений (1) и (2).

На рисунке 1 хорошо видно, что в области высоких температур спектры упрощаются, исчезают дополнительные структуры. В релаксорном состоянии (при  $T < T_m$ ) интенсивность основных мод падает, а сами спектры становятся существенно сложнее.

Температурное поведение частоты и ширины на половине высоты FWHM (далее просто – ширины) для  $C$  ( $v_1 = 39 \text{ cm}^{-1}$ ) и  $D$  ( $v_2 = 782 \text{ cm}^{-1}$ ) мод в VV-поляризации в PNN представлены на рис. 2 и 3 соответственно. Из рисунка 2 хорошо видно, что частота моды  $C$   $v_1(T)$  плавно уменьшается (“смягчается”) при понижении температуры от  $45 \text{ cm}^{-1}$  при  $650 \text{ K}$  до  $39 \text{ cm}^{-1}$  при  $265 \text{ K}$ , т.е. изменяется на 13% в интервале 390 градусов.

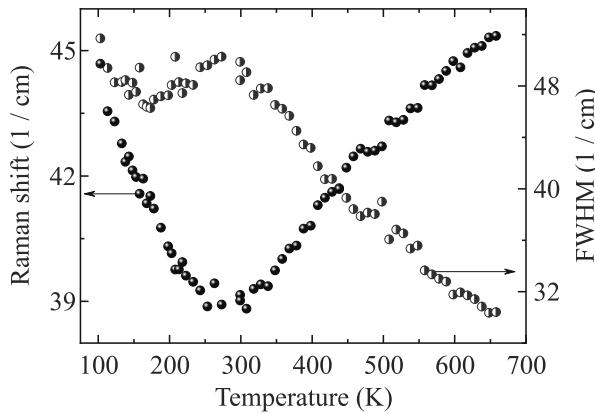


Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурная зависимость частоты и ширины на полувысоте (FWHM) моды  $C$  ( $v_1 = 39 \text{ cm}^{-1}$ ) в рамановских спектрах PNN с VV поляризацией

В окрестности  $T_1 = 280 \text{ K}$  в зависимости  $v_1(T)$  наблюдается минимум, после которого величина  $v_1(T)$  начинает увеличиваться, достигая при  $100 \text{ K}$  значений  $44.5 \text{ cm}^{-1}$ , т.е. возвращается практически к исходным (высокотемпературным) значениям. Ширина С моды увеличивается почти в 2 раза (с 30 до  $50 \text{ cm}^{-1}$ ) при понижении температуры от  $650 \text{ K}$  до  $280 \text{ K}$  (рис. 2). В окрестности минимума частоты заметна аномалия в поведении FWHM в виде максимума при  $T_1$ . При понижении температуры ниже  $T_m = 150 \text{ K}$  ширина моды  $C$  снова начинает расти, демонстрируя в окрестности  $T_m$  хорошо определенный минимум. Подобное температурное поведение моды С наблюдалось и в рамановском рассеянии кристалла PMN [25]. В работе [25] минимум частоты этой моды связывался с особой температурой  $T^*$  в динамике фононной подсистемы кристалла PMN, которая соответствовала изменениям в динамике ближнего порядка (динамике полярных на-нодоменов). По-видимому, наблюдаемые аномалии в

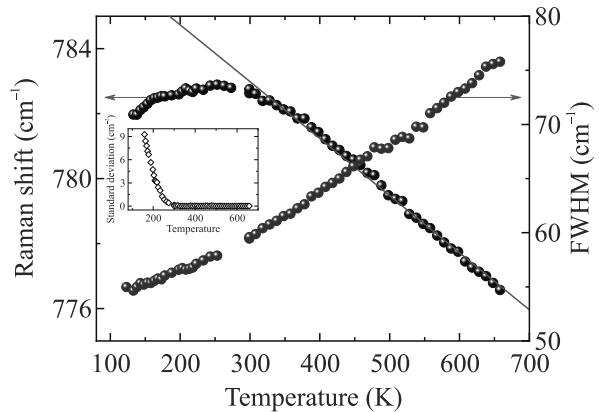


Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурная зависимость частоты и ширины на полувысоте (FWHM) моды  $D$  ( $v_2 = 781 \text{ cm}^{-1}$ ) в рамановских спектрах PNN с VV поляризацией. Сплошная линия – результат аппроксимации экспериментальных данных выражением (3) (см. текст). На вставке показана температурная зависимость отклонения экспериментальных данных от расчетной зависимости частоты согласно выражению (3)

области  $T_1$  в PNN также связаны с изменениями в динамике полярных нанообластей, возникающих в окрестности температуры Бернса ( $T_d$ ).

Частота высокочастотной  $D$  моды ( $v_2$ ) в PNN (рис. 3) линейно растет с понижением температуры от  $\sim 777 \text{ cm}^{-1}$  при  $650 \text{ K}$  до  $\sim 782 \text{ cm}^{-1}$  в окрестности  $300 \text{ K}$ . Ниже  $300 \text{ K}$  частота слабо меняется с температурой, демонстрируя широкий максимум в зависимости  $v_2(T)$  в области  $T_1$ . Ширина  $D$  моды нелинейно уменьшается с понижением температуры (рис. 3). Такое поведение высокочастотной  $D$  моды от температуры в рамановских спектрах PNN хорошо коррелирует с температурным поведением соответствующей моды в рамановских спектрах PMN [25].

Практически линейное уменьшение частоты с увеличением температуры, как правило, связано с ангармонизмом кристаллической решетки [26] и описывается в первом приближении выражением (3):

$$v = v_0 + b \left( 1 + \frac{2}{\exp(\frac{\hbar v_0}{2kT}) - 1} \right), \quad (3)$$

в котором 2 член определяются 3-х фононным процессом. При этом  $v_0$  и  $b$  – это константы модели,  $\hbar$  – постоянная Планка,  $k$  – постоянная Больцмана и  $T$  – температура. Выражение (3) использовалось нами как первое приближение для описания поведения линейного уменьшения частоты моды  $D$  при увеличении температуры. Аппроксимация температурной зависимости частоты  $v_2$  с помощью выражения (3) показала, что температурная зависимость  $v_2(T)$

хорошо описывается 3-х фононным процессом при  $T > 300$  К. Это хорошо видно на рис. 3, где сплошной линией мы представили результаты аппроксимации выражением (3), в котором ( $v_0 = 788$  см $^{-1}$ ,  $b = -0.8$  см $^{-1}$ ). Учет четырех-фононного процесса так же, как и возможный вариант ангармонического распада фонона на фононы различных энергий при аппроксимации зависимости  $v_2(T)$  не улучшил результатов. Очень интересно, что при  $T < 300$  К начинается отклонение наблюдаемой экспериментальной зависимости  $v_2(T)$  от рассчитанного согласно (3) поведения моды (вставка на рис. 3). Это отклонение нелинейно растет при понижении температуры. Такое аномальное поведение частот жестких оптических мод (отклонение от рассчитанных в рамках ангармонизма) при изменении температуры обычно связывается со структурными фазовыми переходами в кристаллах [27, 28]. При этом температурная зависимость отклонения, выделенная описываемым выше образом, ведет себя подобно параметру порядка, как, например, это наблюдалось в кристаллах BiMn<sub>3</sub>Cr<sub>4</sub>O<sub>12</sub> [29]. В нашем случае для кристаллов PNN температурная зависимость отклонения не может быть связана со структурным фазовым переходом. По-видимому, наблюдаемая на вставке к рис. 3 температурная зависимость отклонения определяется изменениями в динамике полярных нанообластей, связанных с фононной подсистемой.

В рамановском спектре PNN с VH-поляризацией хорошо видна низкочастотная широкая линия, состоящая из двух мод, которые легко разделяются при обработке спектров на две моды  $B$  ( $v_3 = 37$  см $^{-1}$ ) и  $A$  ( $v_4 = 55$  см $^{-1}$ ) (см. вставку на рис. 1б). Частота  $B$  моды линейно уменьшается от значений 40.5 см $^{-1}$  при 650 К до 35.5 см $^{-1}$  в окрестности 100 К, т.е. на 13% (рис. 4). Такое же поведение частоты наблюдается и

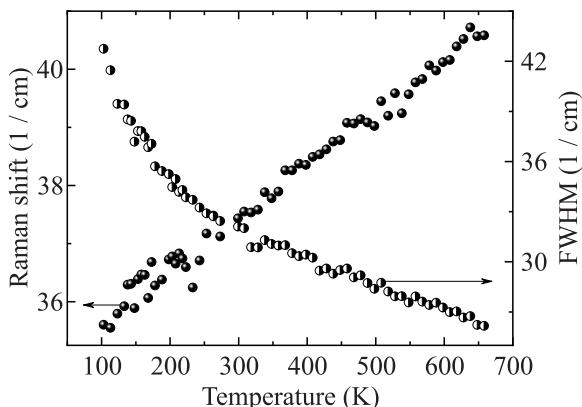


Рис. 4. Температурные зависимости частоты и ширины на полувысоте (FWHM) моды  $B$  ( $v_3 = 37$  см $^{-1}$ ) в рамановских спектрах PNN с VH поляризацией

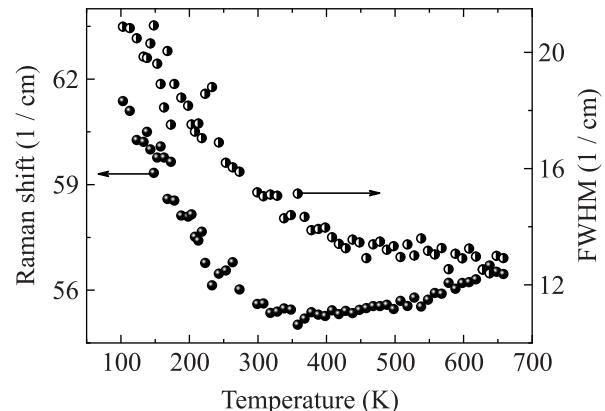


Рис. 5. Температурные зависимости частоты (а) и ширины на полувысоте (FWHM) (б) моды  $A$  ( $v_4 = 55$  см $^{-1}$ ) в рамановских спектрах PNN с VH поляризацией

для аналогичной моды (с частотой  $\sim 40$  см $^{-1}$ ) в PMN [25], хотя ее изменения существенно меньше. Ширина этой моды нелинейно растет с уменьшением температуры. Таким образом, в температурной зависимости  $B$  моды не наблюдается никаких аномалий ни в одной из особых точек в динамике фазовых превращений PNN ( $T_d, T_1, T_m$ ). Мода  $A$  с частотой  $v_4$  (рис. 5а) имеет более сложную температурную зависимость. В интервале температур  $300$  К  $<$   $T$   $<$   $650$  К ее частота медленно уменьшается при понижении температуры, меняясь с 56.5 до 55 см $^{-1}$ , образуя широкий минимум в окрестности  $\sim 300$  К. При дальнейшем снижении температуры зависимость  $v_4(T)$  начинает нелинейно расти, увеличивается до  $\sim 61.5$  см $^{-1}$  при 100 К (рост частоты примерно на 10%). Подобный характер изменений частоты соответствующей моды ( $\sim 50$  см $^{-1}$ ) при VH-поляризации наблюдается и в PMN, где в ее температурной зависимости наблюдается минимум в окрестности температуры  $T^*$  [25]. Хотя диапазон этих изменений в PMN существенно меньше, чем в PNN.

Ширина моды  $A$  нелинейно увеличивается при понижении температуры, не демонстрируя никаких аномалий в окрестности температуры Бернса или других особых точках “фазовой диаграммы” кристалла PNN, подобно соответствующей моде в кристалле PMN [25]. Анализируя полученные в настоящих экспериментах результаты, можно отметить, что мы не можем на основе настоящих данных связать возможное возникновение фазового расслоения в кристалле PNN с поведением длинноволновых оптических фононов. Скорее, наблюдаемая картина аномалий частоты и ширины основных фононных мод в кристалле PNN подобна той, что наблюдается в релаксорном сегнетоэлектрике PMN. Мы наблю-

даем “смягчение” частот всех основных низкочастотных мод, сопровождающиеся ростом их ширины на полувысоте. Минимум частоты в окрестности 280 К в температурных зависимостях сменяется ростом при понижении температуры. Высокочастотная мода демонстрирует нормальное поведение “жесткой моды”, с аномальным вкладом динамики ближнего порядка при температурах ниже 300 К. Формирование полярных нанообластей в окрестности температуры Бернса, проявляющееся в аномальном поведении акустических фононов в релаксорных сегнетоэлектриках [30, 31] и аномалиях в поведении низкочастотных оптических фононов в рамановском рассеянии в PMN [2, 25] в настоящих исследованиях не обнаружено.

Суммируя результаты настоящих исследований поведения длинноволновых оптических фононов в кристалле PNN, можно отметить следующее:

1. В температурных зависимостях частоты как низкочастотных, так и высокочастотной мод *A*, *C* и *D* в PNN мы наблюдаем аномалии в окрестности  $T_1 = 280$  К, подобные тем, что наблюдаются в температурном поведении соответствующих мод в рамановском рассеянии в кристалле PMN. В окрестности этой же температуры мы видим аномалию в поведении ширины низкочастотной *C* моды. Можно предположить, что в окрестности  $T_1$  происходит образование статических полярных нанообластей, аналогично тому процессу, который наблюдается в окрестности температуры  $T^* = 400$  К в кристалле PMN.

2. Анализ температурного поведения рамановских спектров позволил предложить следующую последовательность фазовых превращений в кристалле PNN (отсутствующую в литературе): в окрестности  $T_d = 400$  К возникают динамические полярные нанообласти, при понижении температуры существует выделенная температура  $T_1 = 280$  К (подобная  $T^*$  в PMN [25]), в окрестности которой образуются статические нанообласти. Дальнейшее понижение температуры (при  $T < T_m$ ) приводит к возникновению релаксорного сегнетоэлектрического состояния. Предложенная последовательность фазовых превращений в кристаллах PNN требует дальнейших исследований и уточнений.

**Финансирование работы.** Данная работа финансировалась за счет средств госзадания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема FFUG-2024-0042).

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

1. G. A. Smolenskii, V. A. Bokov, V. A. Isupov,

N. N. Krainik, R. E. Pasynkov, and A. I. Sokolov, *Ferroelectrics and Related Materials*, Gordon and Breach, N.Y. (1984), p. 350.

2. R. A. Cowley, S. N. Gvasaliya, S. G. Lushnikov, B. Roessli, and G. M. Rotaru, *Adv. Phys.* **60**(2), 229 (2011).
3. A. A. Bokov and Z.-G. Ye, *Journal of Advanced Dielectrics* **2**, 1241010 (2012).
4. S. Kamba, *APL Mater.* **9**, 020704 (2021).
5. I. G. Siny, S. G. Lushnikov, R. S. Katiyar, and V. H. Schmidt, *Ferroelectrics* **226**, 191 (1999).
6. I. G. Siny, R. S. Katiyar, and A. S. Bhalla, *Ferroelectrics Review* **2**, 51 (2000).
7. G. Burns and B. A. Scott, *Solid State Commun.* **13**, 423 (1973).
8. I. G. Siny, R. S. Katiyar, and A. S. Bhalla, *J. Raman Spectrosc.* **29**, 385 (1998).
9. I. G. Siny, S. G. Lushnikov, R. S. Katiyar, and E. A. Rogacheva, *Phys. Rev. B* **56**, 7962 (1997).
10. V. Bovtun, S. Kamba, A. Pashkin, M. Savinov, P. Samoukhina, J. Petzelt, I. P. Bykov, and M. D. Glinchuk, *Ferroelectrics* **298**, 23 (2004).
11. N. K. Derets, A. I. Fedoseev, J.-H. Ko, S. Kojima, and S. G. Lushnikov, *Materials* **16**, 346 (2023).
12. S. Chillal, M. Thede, F. J. Litterst, S. N. Gvasaliya, T. A. Shaplygina, S. G. Lushnikov, and A. Zheludev, *Phys. Rev. B* **87**, 220403(R) (2013).
13. Б. Х. Ханнанов, В. Г. Залесский, Е. И. Головенчик, В. А. Санина, Т. А. Смирнова, М. П. Щеглов, В. А. Боков, С. Г. Лушников, *ЖЭТФ* **157**, 523 (2020).
14. А. Д. Полушкина, Е. Д. Обозова, В. Г. Залесский, Т. А. Смирнова, С. Г. Лушников, *ФТТ* **63**, 1382 (2021).
15. J. W. Lee, J.-H. Ko, A. I. Fedoseev, T. A. Smirnova, and S. G. Lushnikov, *J. Phys.: Condens. Matter* **3**, 025402 (2021).
16. Г. А. Смоленский, А. И. Аграновская, *Письма в ЖТФ* **3**, 1380 (1958).
17. K. Kusumoto and T. Sekiya, *Ferroelectrics* **240**, 327 (2000).
18. Н. К. Дерец, Н. Ю. Михайлин, Т. А. Смирнова, А. И. Федосеев, С. Г. Лушников, *ФТТ* **66**(10), 1725 (2024).
19. В. А. Боков, И. Е. Мыльникова, *ФТТ* **3**, 841 (1961).
20. K. Bormanis, M. G. Gorev, I. N. Flerov, A. Sternberg, L. Lace, R. Ignatans, A. Kalvane, and M. Antonova, *Proceedings of the Estonian Academy of Sciences* **66**, 363 (2017).
21. T. Shirakami, M. Mitsukawa, T. Imai, and K. Urabe, *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, Part 2, 7A, L678 (2000).
22. J. Kano, H. Tamiguchi, D. Fu, M. Itoh, and S. Kojima, *Ferroelectrics* **367**, 67 (2008).
23. T. A. Smirnova, A. I. Fedoseev, S. G. Lushnikov, and R. S. Katiyar, *Ferroelectrics* **532**, 50 (2018).

24. P. A. Fleury and K. B. Lyons, *Central peaks near structural phase transitions. In Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, ed. by H. Z. Cummins and A. P. Levanyuk, Elsevier, Amsterdam, The Netherlands (1983), v. 5, p. 449.
25. O. Svitelskiy, J. Toulouse, G. Yong, and Z.-G. Ye, Phys. Rev. B **68**, 104107 (2003).
26. M. Balkanski, R. F. Wallis, and E. Haro, Phys. Rev. B **28**, 1928 (1983).
27. E. K. H. Salje and U. Bismayer, Phase Transitions **63**, 1 (1997).
28. A. S. Krylov, A. N. Vtyurin, A. S. Oreshonkov, V. N. Voronov, and S. N. Krylova, J. Raman Spectroscopy **44**, 763 (2013).
29. A. Maia, C. Kadlec, M. Savinov, R. Vilarinho, J. A. Moreira, V. Bovtun, M. Kempa, M. Mišek, J. Kaštil, A. Prokhorov, J. Maňák, A. A. Belik, and S. Kamba, J. Eur. Ceram. Soc. **43**, 2479 (2023).
30. S. Lushnikov, J.-H. Ko, and S. Kojima, Appl. Phys. Lett. **84**, 4798 (2004).
31. S. Kojima and J.-H. Ko, Current Applied Physics **11**, S22 (2011).

# Влияние спинового эффекта Холла на резонансную частоту и магнитную восприимчивость магнонного нановолновода

О. С. Темная<sup>1)</sup>, С. А. Никитов

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

Поступила в редакцию 24 сентября 2024 г.

После переработки 4 октября 2024 г.

Принята к публикации 4 октября 2024 г.

Исследовано влияние изменения величины спинового тока на магнитную восприимчивость магнонного нановолновода, представляющего собой гетероструктуру “ферромагнетик–нормальный металл”. Основываясь на теоретической модели Ландау–Лифшица–Гильберта с токовым членом в форме Слончевского–Берже, описывающей динамику намагниченности с учетом переноса спинового момента, получены выражения для действительной и мнимой частей магнитной восприимчивости в геометрии поверхностных спиновых волн в затухающем режиме. Полученная модель хорошо аппроксимирует экспериментальные данные, демонстрирующие рост амплитуды спиновых волн, распространяющихся в гетероструктуре YIG/Pt. Показано, что усиление спинового тока приводит к росту резонансной частоты спиновых волн и величин компонент тензора магнитной восприимчивости в резонансе. Результаты работы могут быть использованы для создания волноводов спиновых волн, в которых возможно управление потерями, и высокочувствительных сенсоров магнитных полей.

DOI: 10.31857/S0370274X24110187, EDN: GWXIGS

В настоящее время активно развиваются технологии, для которых требуются новые методы обработки и передачи информации на наномасштабах. Продолжающаяся миниатюризация электронных компонентов традиционных полупроводниковых устройств подводит существующие технологии к своим физическим и технологическим пределам, в частности, в вопросах энергоэффективности и теплоотдачи. Это создает спрос на поиск альтернативных технологий, которые могли бы позволить улучшать характеристики информационных систем, таких как скорость передачи информации, размеры и энергопотребление.

Одним из предлагаемых подходов является создание магнонных устройств, которые используют спиновые волны для обработки и передачи информации [1, 2]. Спиновые волны, или волны намагниченности, обладают рядом преимуществ по сравнению с электромагнитными, на основе которых функционируют элементы традиционной электроники, в том числе в наномасштабных устройствах. В отличие от электрических токов, распространение которых связано с тепловыми потерями, спиновые волны могут распространяться без переноса заряда, тем самым значительно снижая потребление энергии [3]. Кроме того, на одной и той же частоте спиновые волны име-

ют на 2–3 порядка более короткие длины волн, чем электромагнитные, что имеет значительную роль в вопросах миниатюризации [4, 5]. Таким образом, совмещение магнонных устройств с полупроводниковой электроникой может стать значительным шагом в ее развитии.

Важной задачей в этой области является разработка методов контроля затухания распространяющихся спиновых волн [6–8]. Управление собственным затуханием в магнонных структурах необходимо для того, чтобы спиновые волны могли распространяться на большие расстояния без потери мощности. В ряде исследований [9–11] продемонстрировано, что усиление распространяющихся спиновых волн за счет переноса спинового момента является эффективным способом управления собственным затуханием. Интерес исследователей в основном сосредоточен на усилении амплитуды спиновых волн, в то время как вопрос влияния спинового тока на магнитную восприимчивость  $\hat{\chi}$  остается неисследованным. Известно, что  $\hat{\chi}$  определяет главные характеристики магнитных материалов. Так, общая форма выражения для дисперсионной характеристики ферромагнетика  $\omega_r(k)$  содержит члены, зависящие от компонент  $\hat{\chi}$  и меняющие наклон характеристики, что приводит к изменению распределения энергии в материале вдоль разных направлений, что в свою очередь влияет на распространение и усиление спино-

<sup>1)</sup>e-mail: ostemnaya@gmail.com

вых волн. Магнитная восприимчивость определяет величину отклика ферромагнетика на внешнее магнитное поле, так что в материалах с более высокой  $\chi$  влияние внешнего воздействия на спиновые волны увеличивается.

В данной работе изучается влияние усиления спинового тока в гетероструктуре “ферромагнетик–нормальный металл” (ФМ–НМ) на резонансные частоты и величины компонент тензора магнитной восприимчивости в резонансе. Усиление спинового тока достигается за счет переноса спинового момента, возникающего благодаря спиновому эффекту Холла при пропускании электрического тока через тонкий слой НМ с большим спин-орбитальным взаимодействием (рис. 1). Проведено сравнение феноменологической теоретической модели для динамики намагниченности, описываемой уравнением Ландау–Лифшица–Гильберта, с экспериментом [9], в котором продемонстрирован экспоненциальный рост амплитуды спиновых волн в гетероструктуре, состоящей из слоя допированного висмутом железо-иттриевого граната (BiYIG) толщиной  $L_1 = 20$  нм и слоя платины (Pt) толщиной  $L_2 = 6$  нм. В отличие от эксперимента, проведенного для докритической и закритической областей с ориентацией внешнего магнитного поля вне плоскости образца ( $\mathbf{H}_0 \perp \mathbf{k}, \theta = 30^\circ$ ), мы рассматриваем только докритическую область существования спиновых волн (ниже порога возбуждения автоколебаний) в случае, когда в структуре распространяются поверхностные магнитостатические волны ( $\mathbf{H}_0 \perp \mathbf{k}, \theta = 0^\circ$ ). В [9] направление постоянного внешнего магнитного поля  $\theta = 30^\circ$  обеспечивало значительное уменьшение эллиптичности траектории движения вектора намагниченности и нелинейного сдвига частоты, однако в рассматриваемой в данной работе докритической области эти эффекты не проявляются, поэтому выбор угла  $\theta^\circ$  здесь непринципиален.

Динамика намагниченности  $\mathbf{M}$  с учетом затухания и эффекта переноса спинового момента из слоя НМ в ФМ может быть описана уравнением Ландау–Лифшица–Гильберта–Слончевского [4]:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma_0 (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \frac{\alpha}{M_s} \left( \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) + \frac{\sigma I}{M_s} \mathbf{M} \times \mathbf{M} \times \mathbf{p}, \quad (1)$$

где  $\gamma_0 = |\gamma| \mu_0$ ,  $|\gamma|$  – гиromагнитное отношение,  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  – эффективное магнитное поле,  $\alpha$  – константа затухания, зависящая от константы затухания Гильberta и спиновой накачки,  $\sigma = C\gamma/L_1$ ,  $M_s$  – намагниченность насыщения,  $L_1$  – толщина ферромагнетика,

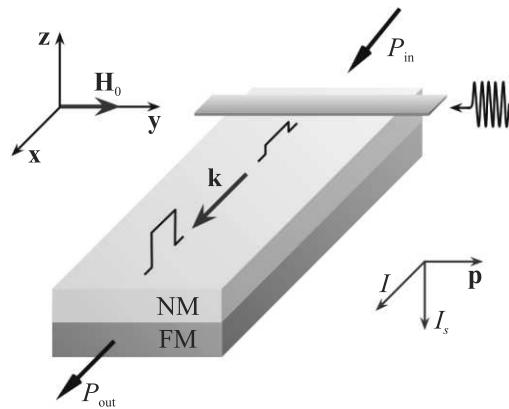


Рис. 1. (Цветной онлайн) Исследуемая гетероструктура “ферромагнетик–нормальный металл”. В ферромагнитном слое распространяются поверхностные спиновые волны, возбуждаемые микроволновой антенной. За счет постоянного электрического тока, протекающего через металлический слой, возникает спиновый ток, направленный перпендикулярно границе раздела слоев гетероструктуры и создающий дополнительный крутящий момент, приводящий к уменьшению затухания спиновых волн

где происходит спиновый транспорт,  $C$  – феноменологическая константа, характеризующая эффективность переноса спинового момента из НМ в ФМ [10]. Эффективное поле состоит из внешнего постоянного магнитного поля  $\mathbf{H}_0$ , динамического поля антенны  $\mathbf{h}_a = \mathbf{h}_a(\mathbf{k}, \omega)$ , дипольного  $\mathbf{h}_d = \mathbf{h}_d(\mathbf{k}, \omega)$  и обменного  $\mathbf{h}_{\text{ex}} = \mathbf{h}_{\text{ex}}(\mathbf{k}, \omega)$  полей. В случае малых отклонений колебаний намагниченности  $\mathbf{m} = \mathbf{m}(\mathbf{k}, \omega)$  от положения равновесия  $\mathbf{M}_0$ , т.е.  $|\mathbf{m}| \ll |\mathbf{M}_0|$ , уравнение (1) может быть линеаризовано и представлено в виде

$$i\omega \mathbf{m} = -\gamma_0 (\mathbf{M}_0 \times [\mathbf{h}_d + \mathbf{h}_{\text{ex}}]) + \mathbf{M}_0 \times \mathbf{h}_a + \mathbf{m} \times \mathbf{H}_0 + \frac{i\omega\alpha}{M_0} (\mathbf{M}_0 \times \mathbf{m}) + \frac{\sigma I}{M_s} (\mathbf{M}_0 \cdot \mathbf{p}) \mathbf{m}. \quad (2)$$

Для планарных магнитных структур усредненное внутреннее дипольное магнитное поле записывается в виде [12]

$$\mathbf{h}_d = - \begin{bmatrix} P \sin^2(\theta) & P \cos(\theta) \sin(\theta) & 0 \\ P \cos(\theta) \sin(\theta) & P \cos^2(\theta) & 0 \\ 0 & 0 & 1 - P \end{bmatrix} \mathbf{m}, \quad (3)$$

где  $\theta$  – угол между векторами стационарной намагниченности и волнового числа и

$$P = \frac{1 - e^{-kL_1}}{kL_1}. \quad (4)$$

Поле неоднородного обмена для плоских волн может быть выражено в виде

$$\mathbf{h}_{\text{ex}} = -\alpha_{\text{ex}} k^2 \mathbf{m}, \quad (5)$$

где  $\alpha_{\text{ex}}$  – константа неоднородного обмена. В геометрии поверхностных спиновых волн в случае, когда вектор внешнего магнитного поля направлен вдоль оси  $y$ , уравнение (1) может быть упрощено и представлено в виде [12]

$$\begin{bmatrix} \omega_1 + i\omega\alpha & i\omega - \omega_I \\ \omega_I - i\omega & \omega_2 + i\omega\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} m_x \\ m_z \end{bmatrix} = \omega_M \begin{bmatrix} h_x \\ h_z \end{bmatrix}, \quad (6)$$

частота спинового тока  $\omega_I$  определяется как

$$\omega_I = \frac{\sigma I}{M_s} (\mathbf{M}_0 \cdot \mathbf{p}). \quad (7)$$

Так как

$$\begin{bmatrix} m_x \\ m_z \end{bmatrix} = \hat{\chi} \begin{bmatrix} h_x \\ h_z \end{bmatrix}, \quad (8)$$

получаем выражение для тензора магнитной восприимчивости  $\hat{\chi}$  из системы (6):

$$\begin{aligned} \hat{\chi} &= \omega_M \begin{bmatrix} \omega_1 + i\omega\alpha & i\omega - \omega_I \\ \omega_I - i\omega & \omega_2 + i\omega\alpha \end{bmatrix}^{-1} = \\ &= \omega_M \frac{1}{\det} \begin{bmatrix} \omega_2 + i\omega\alpha & \omega_I - i\omega \\ i\omega - \omega_I & \omega_1 + i\omega\alpha \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (9)$$

Здесь  $\det = \omega_r^2 - (1 + \alpha^2)\omega^2 + i\omega\Gamma_{\text{eff}}$ ;  $\Gamma_{\text{eff}} = \alpha(\omega_1 + \omega_2) - 2\omega_I$ ;  $\omega_1 = \omega_0 + \omega_M(\lambda_{\text{ex}}k^2 + 1 - P)$ ;  $\omega_2 = \omega_0 + \omega_M(\lambda_{\text{ex}}k^2 + P)$ . Дисперсионная характеристика  $\omega_r(k)$  определяется выражением

$$\omega_r = \sqrt{\omega_1\omega_2 + \omega_I^2}. \quad (10)$$

Таким образом, выражения для компонент тензора магнитной восприимчивости с учетом усиления спинового тока имеют следующий вид:

$$\chi_{xx} = \chi'_{xx} - i\chi''_{xx} = \frac{\omega_M(\omega_2 + i\omega\alpha)}{\omega_r^2 - \omega^2 + i\omega\Gamma_{\text{eff}}}, \quad (11)$$

$$\chi_{zz} = \chi'_{zz} - i\chi''_{zz} = \frac{\omega_M(\omega_1 + i\omega\alpha)}{\omega_r^2 - \omega^2 + i\omega\Gamma_{\text{eff}}}, \quad (12)$$

$$\chi_{xz} = \chi'_{xz} - i\chi''_{xz} = \frac{\omega_M(i\omega - \omega_I)}{\omega_r^2 - \omega^2 + i\omega\Gamma_{\text{eff}}}. \quad (13)$$

На рисунке 2 сплошными линиями показаны пространственные зависимости амплитуды спиновых

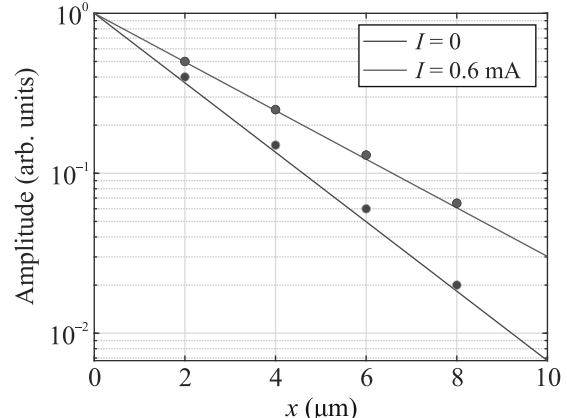


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости интенсивности спиновых волн от расстояния при разных величинах постоянного электрического тока  $I$ . Точки – экспериментальные данные [9], линии – результат численного моделирования

волн при двух значениях постоянного электрического тока  $I = 0$  мА и  $I = 0.6$  мА, построенные численно; точки взяты из эксперимента [9]. Видно, что при пропускании электрического тока через слой нормального металла наблюдается рост амплитуды спиновых волн вследствие возникновения спинового эффекта Холла. Таким образом, пространственное затухание спиновых волн уменьшается при росте постоянного тока. Для численных оценок использовались следующие параметры:  $\alpha = 0.21$ ,  $M_s = 1.5$  мТл,  $v_g = 135$  м/с,  $\lambda_{\text{ex}} = 7.3 \cdot 10^{-10}$  м,  $I_{\text{th}} = 1 \cdot 10^{-3}$  А,  $\gamma \approx 2\pi \cdot 28$  ГГц/Тл,  $\mu_0 = 1.256 \cdot 10^{-6}$  Гн/м.

Спиновый эффект Холла также влияет на дисперсионную характеристику спиновых волн  $\omega_r(k)$ , как показано на рис. 3. Видно, что выражение (10) хорошо аппроксимирует экспериментальные данные [9] для случая, когда вектор внешнего магнитного поля лежит в плоскости образца. Влияние спинового тока приводит не только к компенсации потерь, но и к смещению вверх дисперсионной характеристики, при этом ее характер не меняется. Таким образом, уменьшение эффективного затухания делает возможным возбуждение спиновых волн с более высокими частотами волн на одной и той же длине волн. Изменение электрического тока от  $I = 0$  мА до  $I_{\text{th}} = 1$  мА (ток возникновения автоколебаний) приводит к росту частоты возбуждаемых спиновых волн приблизительно на 2 %.

Рассмотрим влияние усиления спинового тока на магнитную восприимчивость гетероструктуры  $\hat{\chi}$ . Рост величины электрического тока  $I$ , проходящего через НМ, приводит к увеличению  $\omega_I$  согласно выражению (7). Так как  $\omega_1\omega_2 \gg \omega_I^2$ , из выражений (10)–

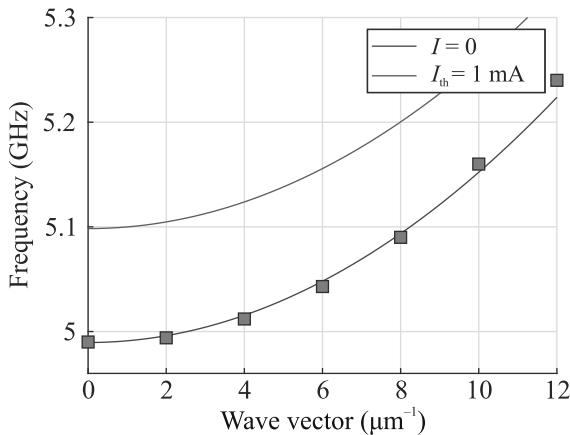


Рис. 3. (Цветной онлайн) Дисперсионные характеристики спиновых волн, построенные в случае, когда на структуру действует электрический ток величиной  $I = 0 \text{ mA}$  и  $I_{\text{th}} = 1 \text{ mA}$ . Точки – экспериментальные данные [9], кривые – результат численного моделирования

(13) следует, что спиновый ток, возбуждаемый в ФМ благодаря спиновому эффекту Холла, приводит к росту  $|\chi_{zz}|$ , как показано на рис. 4; компоненты  $|\chi_{xx}|$  и  $|\chi_{xz}|$  претерпевают такие же изменения. Магнитная восприимчивость, которая определяется отношением намагниченности  $\mathbf{M}$  к величине внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}_0$ , чувствительна к коллективной спиновой динамике, поэтому рост амплитуды спиновых волн приводит к увеличению компонент  $\hat{\chi}$  в резонансе.

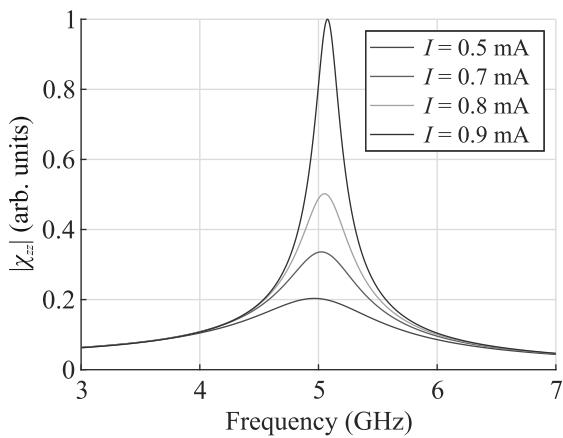


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость модуля магнитной восприимчивости  $\chi_{zz}$  от частоты  $\omega$  при разных величинах постоянного тока  $I$

Таким образом, в работе исследовано влияние усиления спинового тока на магнитную восприимчивость гетероструктуры ФМ–НМ в случае распро-

странения поверхностных спиновых волн. Показано, что представленная математическая модель хорошо аппроксимирует экспериментальные данные [9], полученные в докритическом режиме. Результаты численного моделирования демонстрируют усиление амплитуды и частоты спиновых волн и рост магнитной восприимчивости при пропускании через металлический слой постоянного электрического тока. Представленные результаты могут быть использованы при создании высокочувствительных сенсоров магнитных полей и магнитных волноводов с возможностью управления затуханием.

**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. B. Flebus, D. Grundler, B. Rana et al. (Collaboration), *J. Phys. Condens. Matter* **36**, 363501 (2024).
2. A. V. Chumak, P. Kabos, M. Wu et al. (Collaboration), *IEEE Trans. Magn.* **58**, 6 (2022).
3. Q. Wang, P. Pirro, R. Verba, A. Slavin, B. Hillebrands, and A. V. Chumak, *Sci. Adv.* **4**(1), e1701517, (2018).
4. S. M. Rezende, *Fundamentals of Magnonics*, Springer, Switzerland (2020).
5. 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. Кирилюк, УФН **190**, 1009 (2020).
6. V. E. Demidov, S. Urazhdin, A. B. Rinkevich, G. Reiss and S. O. Demokritov, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 152402 (2014).
7. A. Navabi, Y. Liu, P. Upadhyaya et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Appl.* **11**, 034046 (2019).
8. A. Hamadeh, O. d'Allivie Kelly, C. Hahn et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **113**, 197203 (2014).
9. H. Merbouche, B. Divinskiy, D. Gouéré, R. Lebrun, A. El Kanj, V. Cros, P. Bortolotti, A. Anane, S. O. Demokritov, and V. E. Demidov, *Nat. Commun.* **15**, 1560 (2024).
10. Z. Wang, Y. Sun, M. Wu, V. Tiberkevich, and A. Slavin, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 146602 (2011).
11. O. Gladil, M. Collet, K. Garcia-Hernandez, C. Cheng, S. Xavier, P. Bortolotti, V. Cros, Y. Henry, J.-V. Kim, A. Anane, and M. Bailleul, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 202407 (2016).
12. F. Vanderveken, V. Tyberkevych, G. Talmelli, B. Sorée, F. Ciubotaru, and C. Adelmann, *Sci. Rep.* **12**, 3796 (2022).

# Магнитные межчастичные взаимодействия и полевая зависимость температуры суперпарамагнитной блокировки в порошковой системе ультрамалых частиц феррита никеля

Д. А. Балаев<sup>+</sup>, А. А. Красиков<sup>+</sup>, Ю. В. Князев<sup>+</sup>, С. В. Столляр<sup>+\*</sup>, А. О. Шохрина<sup>\*</sup>, А. Д. Балаев<sup>+1)</sup>,  
Р. С. Исхаков<sup>+</sup>

<sup>+</sup>Институт физики им. Л. В. Киренского Федерального исследовательского центра  
“Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”, 660036 Красноярск, Россия

\*Федеральный исследовательский центр “Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”,  
660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 2 сентября 2024 г.

После переработки 1 октября 2024 г.

Принята к публикации 8 октября 2024 г.

С целью установления влияния магнитных межчастичных взаимодействий на процессы суперпарамагнитной блокировки, исследована и проанализирована зависимость температуры суперпарамагнитной блокировки от внешнего магнитного поля  $T_B(H)$  для порошковой системы наночастиц феррита никеля. Особенностями данной системы являются: (1) малый размер частиц (средний размер  $\sim 4\text{--}5$  нм); (2) выраженная структура “ядро/оболочка” частиц, в которой магнитный момент частицы сформирован ферримагнитно упорядоченным “ядром”, а спины поверхностного слоя, толщиной около 1 нм, не участвуют в формировании этого магнитного момента. Для описания экспериментальной зависимости  $T_B(H)$ , полученной методом статической магнитометрии, привлечена модель случайной анизотропии, рассматривающая влияние магнитных межчастичных взаимодействий на величину  $T_B$  во внешнем поле. Проведенный анализ показал наличие сильных магнитных взаимодействий в исследованной системе, которые проявляются в резком уменьшении  $T_B$  в области слабых полей, и позволил получить количественные оценки интенсивности и энергии магнитных межчастичных взаимодействий, а также определить константу магнитной анизотропии индивидуальных частиц (без влияния магнитных межчастичных взаимодействий). В качестве возможного источника магнитных межчастичных взаимодействий обсуждается роль подсистемы поверхностных спинов, которые, по данным мнимой части магнитной восприимчивости, проявляют признаки коллективного поведения.

DOI: 10.31857/S0370274X24110193, EDN: LHBWPW

**1. Введение.** Магнитные наночастицы уже находят применение во многих областях, к которым относятся микроэлектроника, биомедицина, химическая промышленность [1–3], и т.д. Расширяется и спектр возможных способов применения магнитных наночастиц. В качестве примера можно привести проиллюстрированную в работах [4–8] возможность реализации гипертермии при резонансном поглощении магнитными наночастицами СВЧ излучения, что является альтернативой широко известному способу гипертермии посредством переменного магнитного поля, основанной на петле гистерезиса. Однако, несмотря на существенный прогресс, как в получении наноматериалов с заданными морфологией и свойствами наночастиц, так и в понимании причин появления “новых свойств” у наноразмерных

частиц благодаря их развитой поверхности и конечному размеру, ряд вопросов фундаментального характера остается нерешенным. Одним из этих вопросов является анализ влияния магнитных межчастичных взаимодействий (ММВ) на магнитное поведение ансамбля магнитных наночастиц, чему и посвящена данная работа.

Самой простой иллюстрацией “вредного” влияния ММВ является неизбежное слипание магнитных наночастиц в агломераты. Естественно, что разрабатываются пути преодоления этого влияния, заключающиеся в создании дополнительного покрытия поверхности наночастиц [9–11]. Для понимания физических механизмов воздействия на систему наночастиц, например, переменного магнитного поля, либо СВЧ излучения, необходимо знать такие параметры, как магнитный момент частицы  $\mu_P$  (или ее намагниченность насыщения  $M_S$ ) и эффективную констан-

<sup>1)</sup>e-mail: dabalaev@iph.krasn.ru

ту магнитной анизотропии  $K_{\text{eff}}$ , которая зависит от размера частиц из-за вклада поверхностной магнитной анизотропии [12–16]. Эти параметры определяют из квазистатических либо динамических магнитных измерений. Распространенным методом получения информации о величине  $K_{\text{eff}}$  является определение температуры суперпарамагнитной (СПМ) блокировки  $T_B$ , которая разграничивает на шкале температур области заблокированного ( $T < T_B$ ) состояния и разблокированного ( $T > T_B$ ), т.е. СПМ состояния магнитного момента частицы. Переход в СПМ состояние проявляется как максимум температурной зависимости намагниченности  $M(T)$  при некоторой температуре  $T_B$ , при условиях предварительного охлаждения образца в нулевом внешнем поле. Выражение для  $T_B$  записывается как

$$T_B = K_{\text{eff}} \cdot V / \ln(\tau_m / \tau_0) \cdot k \quad (1)$$

где  $\tau_m$  – характеристическое время экспериментальной методики (для статических магнитных измерений  $\tau_m \sim 10\text{--}100$  с, для динамической магнитной восприимчивости  $\tau_m$  обратно пропорционально частоте переменного поля),  $\tau_0$  – характерное время релаксации частицы,  $V$  – объем частицы.

Выполнение зависимости (1) для различных значений  $\tau_m$  при разумных величинах  $\tau_0$  (находящихся в пределах  $10^{-9}\text{--}10^{-13}$  с) является экспериментальным свидетельством отсутствия ММВ в системе магнитных наночастиц, и, напротив, чем больше численное значение  $\tau_0$  выходит за рамки указанного диапазона (как правило, становится малым), тем сильнее вклад влияния ММВ [17]. Кроме того, наличие ММВ в системе наночастиц частиц приводит к наблюдаемому росту температуры СПМ блокировки, по сравнению с величиной  $T_B$  для системы, в которой ММВ слабые, а частицы имеют близкие размеры [18–24]. Следовательно, “истинное” значение температуры СПМ блокировки для конкретной экспериментальной методики, зависимое только от параметров частиц, в рамках выражения (1) можно получить только на материале, в котором ММВ отсутствуют. С другой стороны, если предположить, что полная энергия магнитного момента частицы аддитивно содержит энергию ММВ –  $U_{\text{IP1}}$ , то выражение (1) можно переписать, как

$$T_B = (K_{\text{eff}} \cdot V + U_{\text{IP1}}) / \ln(\tau_m / \tau_0) \cdot k \quad (2)$$

Выражение (2) переходит в известный закон Богеля–Фулчера

$$T_B - T_0 = K_{\text{eff}} \cdot V / \ln(\tau_m / \tau_0) \cdot k \quad (3)$$

при  $T_0 = U_{\text{IP1}} / \ln(\tau_m / \tau_0) \cdot k$ . В первом приближении, наблюдаемый рост температуры СПМ блокировки за счет ММВ может быть учтен в рамках выражения (3), если определена величина  $T_0$ . Однако и такой подход позволяет только качественно описывать экспериментальные данные, поскольку количественная интерпретация получаемой величины  $T_0$  неоднозначна.

Таким образом, для систем магнитных наночастиц с сильными ММВ, на основании измерения температур СПМ блокировки, достаточно не просто корректно определить такой параметр, как константа эффективной магнитной анизотропии  $K_{\text{eff}}$ , а также получить энергетическую оценку интенсивности ММВ. Наибольшие по интенсивности ММВ, логично, ожидаются в порошковых системах, в которых частицы находятся в непосредственном контакте, и здесь также необходимо понимать сам механизм ММВ, который может определяться как только диполь–дипольным взаимодействием магнитных моментов частиц [25, 26], так и обменными взаимодействиями между поверхностными атомами соседствующих частиц [26].

Есть и другой подход (альтернативный использованию выражений (1), (3)) к получению информации о величине  $K_{\text{eff}}$  и энергетической характеристике ММВ в ансамблях магнитных наночастиц [27, 28]. Он заключается в анализе зависимости температуры СПМ блокировки от внешнего поля  $H$ . Суть модели [27, 28] заключается в том, что из-за наличия ММВ магнитные моменты частиц в некотором объеме ведут себя скоррелировано. Тогда в выражении (1), вместо объема индивидуальной частицы, будет фигурировать некий “эффективный” объем кластера, содержащего некоторое количество частиц. С ростом внешнего поля зеемановская энергия  $\mu_P \cdot H$  начинает преобладать над энергией ММВ, и “эффективный” размер кластера уменьшается, а в достаточно большом внешнем поле размер кластера приближается к размеру индивидуальной частицы. В результате анализа экспериментальной зависимости  $T_B(H)$  в рамках описываемой модели, появляется возможность определить интенсивность ММВ в ансамбле наночастиц, а также оценить величину константы магнитной анизотропии, присущей индивидуальной частице. Модель [27, 28] применялась для анализа экспериментально наблюдаемых зависимостей  $T_B(H)$  для пленочных систем наночастиц кобальта [27] и магнетита [28], систем наночастиц магнетита с различной степенью диспергирования в немагнитной среде [25] и порошковых систем наночастиц ферригидриата [9, 29]. В работе [30] эта модель была расширена

для описания температурных зависимостей коэрцитивной силы.

Объект исследования данной работы – порошковая система наночастиц феррита никеля ультрамалых размеров ( $\sim 4$  нм), в которой присутствуют ММВ. Такой выбор связан со следующим интригующим фактом: значение температуры СПМ блокировки частицы размера  $\sim 4$  нм для статической магнитометрии, оцененное по выражению (1), составляет порядка  $1\text{K}^2$ <sup>2)</sup>, в то время как для систем частиц  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  подобных размеров экспериментально наблюдаемые значения  $T_B$  значительно (в десятки раз) больше [31–33]. И здесь важно выяснить, какой вклад в увеличение  $T_B$  дает рост константы  $K_{\text{eff}}$ , а какой вклад связан с влиянием ММВ. Для достижения этой цели получена зависимость  $T_B$  от величины внешнего поля  $H$ , которая анализируется в рамках модели [27, 28].

**2. Эксперимент.** Порошковая система наночастиц  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  была получена методом химического осаждения, без дополнительной термообработки [4]. Наблюдаемые на рентгеновской дифрактограмме пики (вставка рис. 1а) соответствуют структуре  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ . Размер области когерентного рассеяния, оцененный из данных рентгеновской дифракции с использованием формулы Дебая–Шеррера, составил  $\approx 3.5$  нм [34]. Согласно результатам просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), рис. 1а, средний размер частиц  $\langle d \rangle$  составляет  $\approx 4$  нм, а максимальный размер не превышает  $\approx 6$  нм [4], см. рис. 1б.

Температурные зависимости квазистатической намагниченности  $M(T)$  в различных внешних полях (от  $100\text{Э}$  до  $10\text{кЭ}$ ) измерены на вибрационном магнитометре [35]. Использовались режимы охлаждения в нулевом внешнем поле (*zero field cooling – ZFC*) и охлаждения во внешнем поле (*FC*). Приведенная в подразделе 3.1 температурная зависимость мнимой части *ac*-магнитной восприимчивости  $\chi''(T)$  измерена на установке PPMS-9 при частоте переменного поля  $10000\text{ Гц}$  амплитудой  $2\text{Э}$ .

### 3. Результаты и обсуждение.

**3.1. Краткое описание модели магнитного состояния частиц разных размеров.** Приведем и проиллюстрируем (рис. 1) вкратце основные результаты и выводы, полученные при изучении магнитных свойств исследуемой системы наночастиц [34]. В низких температурах наблюдается гистерезис кривой намагничивания (рис. 1с). Кривые намагничивания

$M(H)$  в СПМ области температур были описаны как суперпозиция функции Ланжевена с учетом распределения по магнитным моментам частиц  $\mu_P$  и линейным по полю вкладом. Пример зависимости  $M(H)$  при  $T = 100\text{К}$  и вышеуказанных парциальных составляющих подгонки показан на рис. 1с. Из анализа зависимостей  $M(H)$  в диапазоне  $100\text{--}300\text{К}$  получено, что величина  $\langle \mu_P \rangle$  составляет  $\approx 300\mu_B$  ( $\mu_B$  – магнетон Бора), а линейный по полю вклад соответствует парамагнитному состоянию (наклон пропорционален  $1/T$ ) части атомных магнитных моментов. При этом величина намагниченности насыщения  $M_S$  (полученная из значения нормировки функции Ланжевена после подгонки зависимостей  $M(H)$ ) составляет всего  $6.8\text{ эмे/г}$ , что значительно меньше значения  $M_S$  объемного  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  ( $M_{S\text{bulk}} \approx 50\text{ эме/г}$  [31]). Такое сильное уменьшение  $M_S$  относительно объемных аналогов присуще всем магнитным оксидным частицам ультрамалых размеров [31–33, 36–40], что логично связывается с наличием структурно разупорядоченного внешнего слоя частицы, в котором отсутствует и магнитное упорядочение.

Наличие в частицах исследованного образца областей со структурным беспорядком было идентифицировано и из анализа мессбауэровских спектров, параметры которых отражают локальное окружение атомов железа [34]; при этом часть областей характеризуется параметрами, характерными для структуры шпинели. Для определения толщины  $d_{md}$  магнитно-разупорядоченного (часто используется термин “магнитомертвый”) внешнего слоя частиц можно использовать следующее выражение  $M_S = M_{S\text{bulk}} \cdot (1 - 2 \cdot d_{md}/d)^3$ , из которого толщина такого слоя составляет  $d_{md} \approx 1.0\text{ нм}$ . При таком значении  $d_{md}$  частицы размером  $2\text{ нм}$  и менее будут полностью структурно разупорядоченными, и магнитный порядок в них будет отсутствовать. А для частиц несколько больших размеров имеет смысл говорить о структурно и магнитно упорядоченном “ядре” частиц, только если это “ядро” будет иметь объем нескольких элементарных ячеек  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , т.е. для частиц размером  $d \geq 4\text{ нм}$ . Такая модель магнитного состояния частиц различных размеров проиллюстрирована на рис. 1д.

На рисунке 1д приведена температурная зависимость мнимой части *ac* магнитной восприимчивости  $\chi''(T)$ . Эта зависимость содержит несколько особенностей, очевидно, связанных с наличием по крайней мере трех магнитных подсистем. Отчетливый пик в окрестности температуры около  $40\text{К}$  соответствует процессам СПМ блокировки магнитных моментов частиц (сформированных “ядрами” частиц). Низко-

<sup>2)</sup> эта оценка получена при значении константы магнитной анизотропии для объемного  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , т. е. частиц субмикронных размеров ( $\approx 1.1 \cdot 10^5\text{ эрг/см}^3$ ).

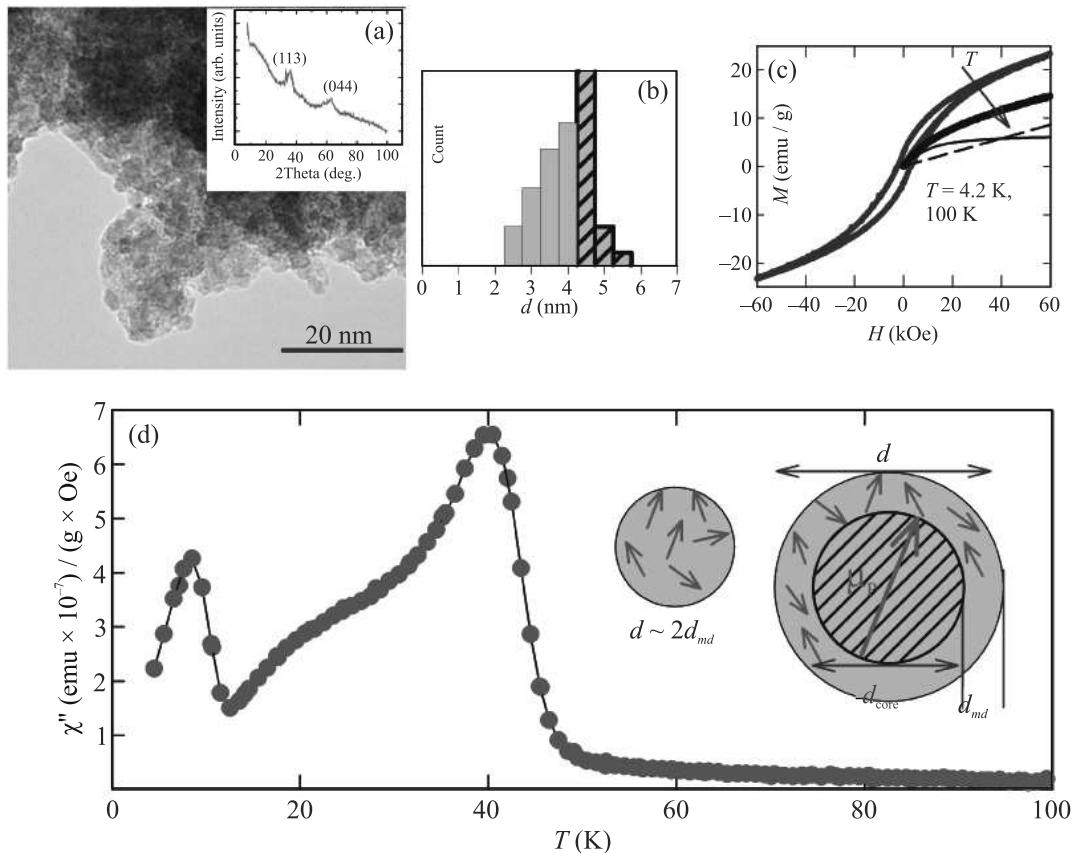


Рис. 1. (Цветной онлайн) Типичная микрофотография ПЭМ (а), гистограмма распределения по размерам (б), кривые намагничивания  $M(H)$  для температур  $T = 4.2$  и  $100\text{ K}$  (с), мнимой части  $\chi''(T)$  – (д) исследованной системы наночастиц  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ . На (с) также приведены парциальные составляющие подгонки СПМ составляющей (сплошная линия) и линейного по полю вклада (штриховая линия). В поле рисунка (д) схематично показана модель магнитной структуры частиц размером порядка  $\sim 2d_{md}$  ( $d_{md} \approx 1.0\text{ nm}$ ) и частиц размером  $d \geq \approx 4\text{ nm}$  (маленькие стрелки – спины, большая стрелка – магнитный момент частицы  $\mu_P$ )

температурный пик зависимости  $\chi''(T)$  интерпретируется как переход в состояние типа спинового стекла атомных магнитных моментов малых ( $d \sim 2d_{md}$ ,  $d \leq 4\text{ nm}$ ) частиц. Такая интерпретация пиков зависимости  $\chi''(T)$  (так же как и зависимостей  $\chi'(T)$ ) подтверждается сдвигом положений ее максимумов в область высоких температур с ростом частоты переменного поля [34]. И, наконец, достаточно важной, при дальнейшем анализе механизма ММВ в исследованной системе наночастиц, чертой зависимости  $\chi''(T)$  является характерное “плечо” в области температур  $\sim 10\text{--}40\text{ K}$ , см. рис. 1д. Теоретическое описание подобной особенности формы зависимости  $\chi''(T)$  для других систем наночастиц [24, 41] позволило интерпретировать ее как переход подсистемы поверхностных спинов частиц в коллективное состояние типа спинового стекла. Было показано, что именно подсистема поверхностных спинов является источником ММВ в исследованных системах [24, 41]. Для наше-

го случая достаточно очевидно, что здесь речь идет о поверхностных спинах частиц размером  $d \geq \approx 4\text{ nm}$  (рис. 1д) [34].

Таким образом, несмотря на наличие большой доли структурного и магнитного беспорядка, исследованный образец проявляет выраженный переход из СПМ состояния в заблокированное состояние магнитных моментов частиц при температуре около  $40\text{ K}$ ; также в исследованной системе присутствуют ММВ, и анализ влияния внешнего поля на температуру СПМ блокировки, уже в случае квазистатических магнитных измерений, проведенный ниже, будет уместен.

**3.2. Анализ зависимости температуры СПМ блокировки от внешнего поля.** На рисунке 2 приведены зависимости  $M(T)$  исследованного образца в различных внешних полях и различной термомагнитной предыстории (условия ZFC и FC). Наличие двух максимумов зависимостей  $M(T)$  в условиях

ZFC во внешних полях до  $\sim 1$  кЭ согласуется с данными рис. 1d. “Исчезновение” низкотемпературного максимума в больших полях связано с преобладанием вклада, соответствующего СПМ блокировке магнитных моментов частиц, в общую намагниченность образца.

Обращает на себя внимание эволюция формы высокотемпературной кривой в области максимума зависимости  $M(T)_{ZFC}$ . В малом внешнем поле (100 Э) область максимума достаточно узка (рис. 2b). Затем, в полях 500–2000 Э в области окрестности максимума имеет место платообразный вид зависимости  $M(T)$ , а в больших внешних полях можно наблюдать сужение области этого максимума, который опять становится ярко выраженным. Следует отметить, что платообразный вид зависимости  $M(T)_{ZFC}$  в окрестности ее максимума в промежуточных полях (порядка 1 кЭ) наблюдался для системы наночастиц ферригидрита, в которой есть сильные взаимодействия между магнитными моментами частиц [9]. Температуру, соответствующую максимуму зависимости  $M(T)_{ZFC}$ , будем далее отождествлять с температурой СПМ блокировки  $T_B$ . Величина  $T_B$  монотонно понижается с ростом внешнего поля (координата  $T_B$  указана на рис. 2).

Зависимости  $T_B$  от  $H$  приведена на рис. 3а. Сначала проанализируем зависимости  $T_B(H)$  в рамках классического рассмотрения процессов СПМ блокировки, без учета влияния ММВ. Из выражения (1), взяв  $\tau_m = 10^2$  с и  $\tau = 10^{-11}$  с, можно получить, что для частицы сферической формы диаметром  $4.5 \text{ нм}^3$ <sup>3)</sup> значение  $T_B \approx 40 \text{ К}$  в малом внешнем поле соответствует значению  $K_{\text{eff}} \approx 3.5 \cdot 10^6 \text{ эрг}/\text{см}^3$ . Такая величина константы магнитной анизотропии нетипично велика для никелевого феррита, даже с учетом вклада поверхностной магнитной анизотропии.

Зависимость  $T_B$  от внешнего поля, в случае невзаимодействующих частиц, определяется следующим выражением [27, 28]:

$$T_B(H) = \frac{K_{\text{eff}} V}{k_B \ln(\tau/\tau_0)} \left[ 1 - \frac{M_S H}{2K_{\text{eff}}} \right]^{3/2}. \quad (4)$$

Для построения этой зависимости используем полученное значение  $M_S \approx 6.8 \text{ эме}/\text{г}$   $L_H$ , а также физическую плотность  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , равную  $5.3 \text{ г}/\text{см}^3$ . Зависимость  $T_B(H)$ , рассчитанная по выражению (4) при  $\tau_m = 100$  с,  $\tau = 10^{-11}$  с,  $d = 4.5 \text{ нм}$ ,  $V = (\pi/6) \cdot d^3$ ,  $K_{\text{eff}} \approx 3.5 \cdot 10^6 \text{ эрг}/\text{см}^3$  показана на рис. 3а (штриховая линия).

<sup>3)</sup>Здесь и далее в качестве среднего размера частиц логично взять величину 4.5 нм, которая получается, если не учитывать частицы размером менее  $\sim 4$ -х нм, см. раздел 3.1.

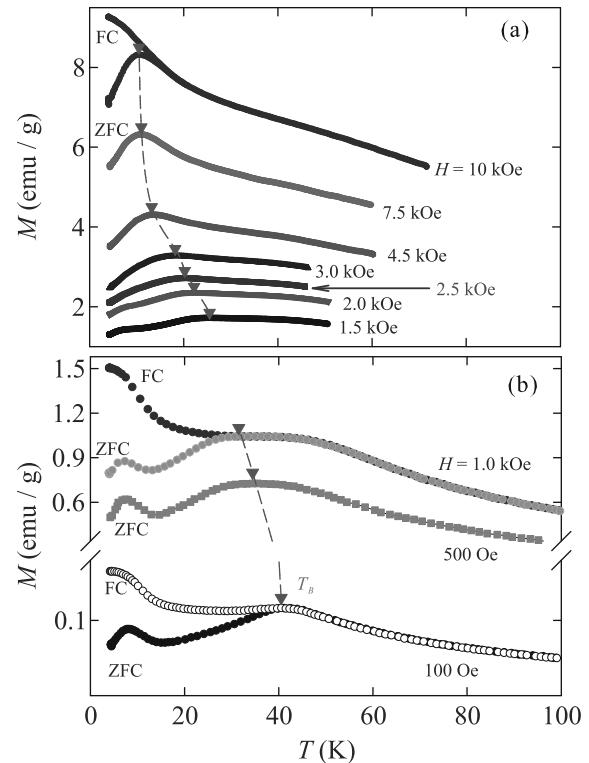


Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурные зависимости намагниченности  $M(T)$  в различных внешних магнитных полях и различной термомагнитной предыстории (ZFC, FC режимы отмечены на рисунке). Указаны температуры  $T_B$ , соответствующие СПМ блокировке магнитных моментов частиц

ховая линия). Видно, что эта зависимость не может описать наблюдаемое в эксперименте сильное уменьшение температуры СПМ блокировки с ростом поля.

Модель [27, 28], названная авторами моделью случайной анизотропии (далее – СА), рассматривает кластер частиц, в котором магнитные моменты частиц ведут себя скоррелировано из-за влияния ММВ. Тогда в выражении (4), вместо объема одной частицы, будет фигурировать “эффективный” объем кластера, содержащий некоторое количество частиц. С увеличением внешнего поля размер  $L_H$  этого кластера должен уменьшаться, см. Введение, и в достаточно большом внешнем поле размер кластера  $L_H$  станет близким к среднему размеру частиц, а температура СПМ блокировки станет близкой к таковой для системы невзаимодействующих частиц. Авторы [27, 28] предложили следующую функциональную зависимость  $L_H(H)$ :

$$L_H(H) = d + \sqrt{\frac{2A_{\text{eff}}}{M_S H + C}} \quad (5)$$

В этом выражении  $A_{\text{eff}}$  имеет тот же смысл, что обменная константа для нанокристаллических спла-

вов, и эта величина пропорциональна интенсивности ММВ. Параметр  $C$  также характеризует межчастичные взаимодействия, и он обратно пропорционален их силе [27, 28]. Для рассматриваемого кластера частиц константа магнитной анизотропии зависит от количества частиц в кластере  $N_C$ :  $K_H = K_{\text{eff}}/N_C^{1/2}$ ; здесь  $K_{\text{eff}}$  является характеристикой отдельной частицы (без влияния ММВ). После подстановки  $L_H$  и  $K_H$  в выражение (4), можно прийти к следующему выражению для температуры СПМ блокировки:

$$T_B(H) = \frac{\pi K_{\text{eff}} [d^3 + x(L_H^3 - d^3)]}{6k_B \ln \left( \frac{\tau_m}{\tau_0} \right) \sqrt{1 + \frac{x(L_H^3 - d^3)}{d^3}}} \times \left[ 1 - \frac{M_S H \sqrt{1 + \frac{x(L_H^3 - d^3)}{d^3}}}{2K_{\text{eff}}} \right]^{\frac{3}{2}}. \quad (6)$$

В этом выражении  $x$  – объемная концентрация магнитных частиц, которая для нашего случая бралась равной единице ( $x = 1$ ).

В выражении (6) значение  $K_{\text{eff}}$  влияет в основном на величину температуры СПМ блокировки в достаточно больших полях. Параметры  $A_{\text{eff}}$  и  $C$  определяют размер кластера  $L_H(H)$ , выражение (5), и процедура подгонки сводится к нахождению функциональной зависимости  $L_H(H)$ , при которой адекватно описывается экспериментальные данные  $T_B(H)$ . Большое значение  $A_{\text{eff}}$  соответствует росту размера кластера  $L_H$ , а меньшее значение  $C$  приводит к увеличению  $L_H$  в области низких полей.

Мы получили хорошее согласие экспериментальной зависимости  $T_B(H)$  и расчетной зависимости по выражению (6) при следующих параметрах:  $A_{\text{eff}} \approx (140 \pm 20) \cdot 10^{-10}$  эрг/см,  $C \approx (4.4 \pm 0.4) \cdot 10^4$  эрг/см<sup>3</sup> (в указанных областях значений большее значение  $A_{\text{eff}}$  соответствует меньшей величине  $C$ ),  $K_{\text{eff}} \approx (7.9 \pm 0.1) \cdot 10^5$  эрг/см<sup>3</sup> и “не варьируемых” значениях  $M_S \approx 6.8$  эмэ/г,  $\tau_m = 100$  с,  $\tau = 10^{-11}$  с и  $d = 4.5$  нм. Расчетная зависимость  $T_B(H)$  приведена на рис. 3а (сплошная кривая). Значения  $A_{\text{eff}}$  и  $C$  имеют тот же порядок величин, какие были получены при анализе других систем в рамках модели СА [9, 25, 27–29].

Также можно рассмотреть соотношение между размером кластера  $L_H$  с ростом поля и средним размером частиц. На рисунке 3б приведена зависимость  $T_B(H)$  (сплошная кривая) и показаны горизонтальные прямые, соответствующие среднему  $\langle d \rangle$  и максимальному  $d_{\text{max}}$  размерам частиц. Если в нулевом внешнем поле кластер содержит  $N_C \approx (L_H/\langle d \rangle)^3$  около 20 частиц среднего размера, то в полях 8–10 кЭ

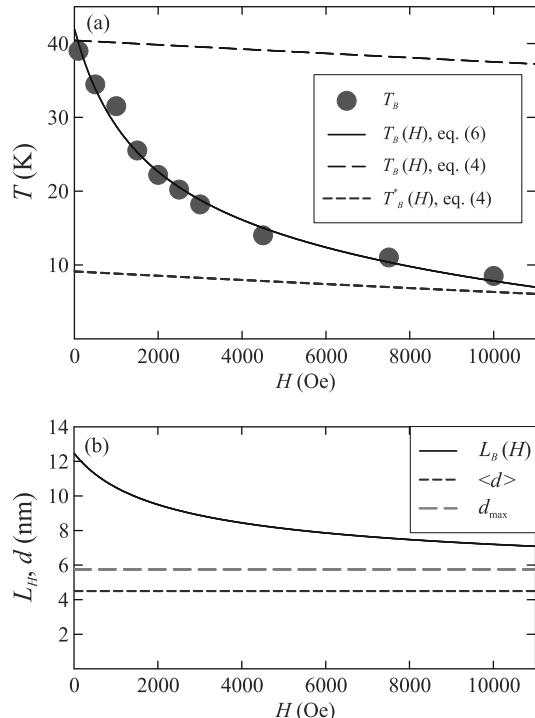


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Экспериментальная (по данным рис. 2) зависимость  $T_B(H)$  (символы) и расчетные зависимости (линии) по указанным в легенде выражениям (4) (без учета ММВ) и (6) (с учетом ММВ), см. п.3.2. (б) – Зависимость размера кластера  $L_H$  от внешнего поля (выражение (5)), полученная в результате подгонки зависимостей  $T_B(H)$  (а) в сравнении со средним  $\langle d \rangle$  и максимальным  $d_{\text{max}}$  размерами частиц

размер этого кластера включает всего 3–4 частицы, либо близок к частице максимального размера.

Полученное значение константы магнитной анизотропии  $K_{\text{eff}} \approx 7.9 \cdot 10^5$  эрг/см<sup>3</sup> (для  $d \approx 4.5$  нм) находится в хорошем согласии с данными работы [32], в которой исследовались наночастицы  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ , внедренные в матрицу  $\text{SiO}_2$  (что обеспечивало малое влияние ММВ). Для объемного  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  константа магнитной анизотропии  $K_V$  составляет  $\approx 1.1 \cdot 10^5$  эрг/см<sup>3</sup> [32]. Используя известное выражение, позволяющее разделить объемную и поверхностную  $K_S$  константы магнитной анизотропии [12, 13]

$$K_{\text{eff}} = K_V + 6K_S/d, \quad (7)$$

получаем  $K_S \approx 5.1 \cdot 10^{-2}$  эрг/см<sup>2</sup>. Эта величина типична для наночастиц оксидных материалов [14, 16, 29, 32, 42].

Можно рассчитать по выражению (4) зависимость температуры СПМ блокировки от внешнего поля, которая может наблюдаться для невзаимодействующих частиц феррита никеля размером

$d = 4.5$  нм. Эта зависимость приведена на рис. 3а и обозначена как  $T_B^*(H)$ ; она построена при полученном выше значении  $K_{\text{eff}} \approx 7.9 \cdot 10^5$  эрг/см<sup>3</sup>. Видно, что в поле около 10 кЭ зависимости  $T_B^*(H)$  и  $T_B(H)$ , полученные по выражениям (4) и (6) соответственно, становятся близкими, в соответствии с концепцией модели СА [27, 28].

В малом внешнем поле разница между значениями  $T_B$  и  $T_B^*$  составляет около 30 К, и, фактически, это – характеристика энергии ММВ для ансамбля наночастиц, т.е. значение  $T_0$  в законе Богеля–Фулчера (3). Оценим энергию магнитных диполь–дипольных взаимодействий  $E_{\text{dip}}$  для двух частиц  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  со средним магнитным моментом  $\mu_P \approx 300 \mu_B$  и расстоянием между центрами частиц  $d_{P-P}$ . При  $d_{P-P} \approx \approx \langle d \rangle \approx 4.5$  нм стандартное выражение

$$E_{\text{dip}} = kT_{\text{dip}} \approx \mu_{p1} \cdot \mu_{p2} / d_{p-p}^3 \quad (8)$$

дает  $E_{\text{dip}}$  всего  $\approx 0.6$  К. При учете  $N$  ближайших соседей ( $N = 12$ ) получим  $E_{\text{dip}} \approx 7$  К. Это значение в четыре раза меньше полученной выше величины  $T_0$ . Следовательно, не только магнитные диполь–дипольные взаимодействия являются причиной сильного влияния ММВ в исследованной порошковой системе наночастиц  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ .

Можно предположить следующий сценарий происхождения достаточно сильных магнитных взаимодействий. Магнитный момент частицы влияет (“подмагничивает”) как на свои поверхностные спины, так и поверхностные спины соседней частицы. При этом не исключены также и частичные обменные (или суперобменные), либо косвенные взаимодействия между поверхностными атомами соседних частиц. В этом случае можно говорить о подсистеме поверхностных спинов (эти спины не дают вклад в магнитный момент частицы, см. подраздел 3.1), как “мостики”, обеспечивающим магнитные взаимодействия магнитных моментов  $\mu_P$  частиц, сформированных ферромагнитным ядром. Схожий вывод сделан в недавних работах по исследованию ММВ в порошковых системах ферригидрита [9, 23, 29, 41, 43], кроме того, такой сценарий обсуждался в обзоре [17]. Обнаруженная особенность на температурной зависимости мнимой части магнитной восприимчивости (“плечо” в области температур 10–40 К, см. рис. 1д), интерпретированная как переход подсистемы поверхностных спинов в коллективное состояние типа спинового стекла, также косвенно свидетельствует о реализации ММВ через “поверхностные спины частиц”.

**4. Выводы.** Проведенный анализ магнитополовой зависимости температуры СПМ блокировки  $T_B(H)$  порошковой системы наночастиц  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  с

выраженной структурой “ядро/оболочка” в рамках модели СА [27, 28] подтвердил сильное влияние ММВ на процессы СПМ блокировки магнитных моментов частиц. Параметры, характеризующие интенсивность ММВ и определяющие размер кластера частиц, в котором магнитные моменты частиц ведут себя коррелировано, имеют разумные значения. Дополнительным подтверждением адекватности проведенного анализа является то, что в достаточно большом внешнем поле ( $\sim 10$  кЭ) размер кластера становится близким размеру частиц. Также в рамках используемого подхода получено непротиворечивое значение константы магнитной анизотропии индивидуальной частицы размером  $d \approx 4.5$  нм ( $K_{\text{eff}} \approx \approx (7.9 \pm 0.1) \cdot 10^5$  эрг/см<sup>3</sup>), что позволило определить вклад поверхности магнитной анизотропии в энергию магнитной анизотропии частиц таких малых размеров и оценить значение константы поверхности магнитной анизотропии ( $K_S \approx 5.1 \cdot 10^{-2}$  эрг/см<sup>2</sup>). Наблюданное увеличение температуры СПМ блокировки в исследуемой системе, относительно значения температуры блокировки  $T_B^*$  для частиц без влияния ММВ, составило около 30 градусов (при значении  $T_B \approx 40$  К). Эта величина, характеризующая влияние ММВ, значительно превышает величину оценки энергии магнитных диполь–дипольных взаимодействий в исследуемой системе. Возможным источником сильных магнитных взаимодействий могут быть слабые, но значимые обменные (или сверхобменные), либо косвенные взаимодействия между поверхностными спинами соседних частиц. Это согласуется с поведением температурной зависимости мнимой части магнитной восприимчивости исследованного образца, которая демонстрирует особенность, свидетельствующую о проявлении коллективного поведения подсистемы поверхностных спинов.

Авторы благодарят С. В. Комогорцева за плодотворные дискуссии.

**Финансирование работы.** Исследование выполнено в рамках госзадания института физики им. Л. В. Киренского Федерального исследовательского центра Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук, образец приготовлен в рамках госзадания Федерального исследовательского центра Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук.

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

- 
1. H. A. Khan, M. K. Sakharkar, A. Nayak, U. Kishore, and A. Khan, *Nanobiomaterials* **2018**, 357 (2018).

2. L. M. Martínez-Prieto, J. Marbaix, J.M. Asensio, C. Cerezo-Navarrete, P.-F. Fazzini, K. Soulantica, B. Chaudret, and A. Corma, *ACS Appl. Nano Mater.* **3**, 7076 (2020).
3. A. Ali, T. Shah, R. Ullah, P. Zhou, M. Guo, M. Ovais, Z. Tan, and Y. Rui, *Front. Chem.* **9**, 629054 (2021).
4. C. B. Столляр, О. А. Ли, Е. Д. Николаева, Н. М. Боеv, А. М. Воротынов, Д. А. Великанов, Р. С. Исхаков, В. Ф. Пьянков, Ю. В. Князев, О. А. Баюков, А. О. Шохрина, М. С. Молокеев, А. Д. Васильев, *ФТТ* **65**, 1006 (2023).
5. С. В. Столляр, О. А. Ли, Е. Д. Николаева, А. М. Воротынов, Д. А. Великанов, Ю. В. Князев, О. А. Баюков, Р. С. Исхаков, В. Ф. Пьянков, М. Н. Волочаев, *ФММ* **124**, 182 (2023).
6. S. V. Stolyar, O. A. Li, A. M. Vorotynov, D. A. Velikanov, N. G. Maksimov, R. S. Iskhakov, V. P. Ladygina, and A. O. Shokhrina, *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **88**, 536 (2024).
7. S. V. Stolyar, E. D. Nikolaeva, O.A. Li, D. A. Velikanov, A. M. Vorotynov, V.F. Pyankov, V.P. Ladygina, A.L. Sukhachev, D.A. Balaev, and R.S. Iskhakov, *Inorganic Materials: Applied Research* **15**, 927 (2024).
8. J.-H. Lee, Y. Kim, and S.-K. Kim, *Sci. Rep.* **12**, 5232 (2022).
9. A. A. Krasikov, Y. V. Knyazev, D. A. Balaev, D. A. Velikanov, S. V. Stolyar, Y. L. Mikhlin, R. N. Yaroslavtsev, and R. S. Iskhakov, *Physica B: Condensed Matter* **660**, 414901 (2023).
10. K. Nadeem, M. Kamran, A. Javed, F. Zeb, S. S. Hussain, M. Mumtaz, H. Krenn, D. V. Szabo, U. Grossmann, and X. Mu, *Solid State Sciences* **83**, 43 (2018).
11. A. M. Pereira, C. Pereira, A. S. Silva, D. S. Schmool, C. Freire, J.-M. Grenèche, J. P. Araújo, *J. Appl. Phys.* **109**, 114319 (2011).
12. A. Aharoni, *J. Appl. Phys.* **61**, 3302 (1987).
13. F. Bødker, S. Mørup, and S. Linderoth, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 282 (1994).
14. Yu. V. Knyazev, D. A. Balaev, V. L. Kirillov, O. A. Bayukov, and O. N. Mart'yanov, *JETP Lett.* **108**, 527 (2018).
15. F. G. Silva, J. Depeyrot, Yu. L. Raikher, V. I. Stepanov, I. S. Poperechny, R. Aquino, G. Ballon, J. Geshev, E. Dubois, and R. Perzynski, *Sci. Rep.* **11**, 5474 (2021).
16. D. A. Balaev, I. S. Poperechny, A. A. Krasikov, S. V. Semenov, S. I. Popkov, Y. V. Knyazev, V. L. Kirillov, S. S. Yakushkin, O. N. Mart'yanov, and Yu. L. Raikher, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 275003 (2021).
17. S. Mørup, D. E. Madsen, C. Fradsen, C. R. H. Bahl, and M. F. Hansen, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 213202 (2007).
18. K. Nadeem, H. Krenn, T. Traussnig, R. Würschum, D. V. Szabó, and I. Letofsky-Papst, *J. Magn. Magn. Mater.* **323**, 1998 (2011).
19. A. M. Pereira, C. Pereira, A. S. Silva, D. S. Schmool, C. Freire, J.-M. Grenèche, J. P. Araújo, *J. Appl. Phys.* **109**, 114319 (2011).
20. M. Tadic, D. Nikolic, M. Panjan, and G. R. Blake, *J. Alloys Compd.* **647**, 1061 (2015).
21. V. Russier, *J. Magn. Magn. Mater.* **409**, 50 (2016).
22. L. L. Afremov, S. V. Anisimov, and I. G. Iliushin, *Chin. J. Phys.* **70**, 324 (2021).
23. D. A. Balaev, A. A. Krasikov, Y. V. Knyazev, R. N. Yaroslavtsev, D. A. Velikanov, Y. L. Mikhlin, M. N. Volochaeve, O. A. Bayukov, V. P. Ladygina, S. V. Stolyar, and R. S. Iskhakov, *Nano-Struct. Nano-Objects* **37**, 101089 (2024).
24. Yu. V. Knyazev, D. A. Balaev, S. A. Skorobogatov, D. A. Velikanov, O. A. Bayukov, S. V. Stolyar, R. N. Yaroslavtsev, and R. S. Iskhakov, *Phys. Rev. B* **107**, 115413 (2023).
25. D. A. Balaev, S. V. Semenov, A. A. Dubrovskiy, S. S. Yakushkin, V. L. Kirillov, O. N. Mart'yanov, *J. Magn. Magn. Mater.* **440**, 199 (2017).
26. O. Petracic, *Superlattices and Microstructures* **47**, 569 (2010).
27. J. M. Vargas, W. C. Nunes, L. M. Socolovsky, M. Knobel, and D. Zanchet, *Phys. Rev. B* **72**, 184428 (2005).
28. M. Knobel, W. C. Nunes, H. Winnischhofer, T. C. R. Rocha, L. M. Socolovsky, C. L. Mayorga, and D. Zanchet, *J. Non-Cryst. Solids* **353**, 743 (2007).
29. А. А. Красиков, Ю. В. Князев, Д. А. Балаев, С. В. Столляр, В. П. Ладыгина, А. Д. Балаев, Р. С. Исхаков, *ЖЭТФ* **164**, 1026 (2023).
30. F. Fabris, K.-H. Tu, C. A. Ross, and W. C. Nunes, *J. Appl. Phys.* **126**, 173905 (2019).
31. R.J. Tackett, A.W. Bhuiya, and C.E. Botez, *Nanotechnology* **20**, 445705 (2009).
32. S. Mitra, K. Mandal, and P. Anil Kumar, *J. Magn. Magn. Mater.* **306**, 254 (2006).
33. K. Lee, J. Jang, H. Nakano, S. Nakagawa, S. H. Paek, S. Bae, *Nanotechnology* **28**, 075710 (2017).
34. Yu. V. Knyazev, D. A. Balaev, S. V. Stolyar, A. O. Shokhrina, D. A. Velikanov, A. I. Pankrats, A. M. Vorotynov, A. A. Krasikov, S. A. Skorobogatov, M. N. Volochaeve, O. A. Bayukov, and R. S. Iskhakov, arXiv:2408.16203.
35. А. Д. Балаев, Ю. В. Бояршинов, М. М. Карпенко, Б. П. Хрусталев, *ПТЭ* **3**, 167 (1985).
36. A. Millan, A. Urtizberea, N. J. O. Silva, F. Palacio, V. S. Amaral, E. Snoeck, and V. Serin, *J. Magn. Magn. Mater.* **312**, L5 (2007).

37. A. A. Krasikov, D. A. Balaev, ЖЭТФ **163**, 115 (2023).
38. A. P. Safronov, I. V. Beketov, S. V. Komogortsev, G. V. Kurlyandskaya, A. I. Medvedev, D. V. Leiman, A. Larrañaga, S. M. Bhagat, AIP Adv. **3**, 052135 (2013).
39. D. Zákonutná, D. Nižňanský, L. C. Barnsley, E. Babcock, Z. Salhi, A. Feoktystov, D. Honecker, and S. Disch, Phys. Rev. X **10**, 031019 (2020).
40. L. Wang, J. Li, M. Lu, H. Dong, J. Hua, S. Xu, and H. Li, J. Supercond. Nov. Magn. **28**, 191 (2015).
41. Yu. V. Knyazev, D. A. Balaev, S. A. Skorobogatov, D. A. Velikanov, O. A. Bayukov, S. V. Stolyar, V. P. Ladygina, A. A. Krasikov, and R. S. Iskhakov, Phys. Met. Metallogr. **125**(4), 377 (2024).
42. M. P. Proenca, C. T. Sousa, A. M. Pereira, P. B. Tavares, J. Ventura, M. Vazquez, and J. P. Araujo, Phys. Chem. Chem. Phys. **13**, 9561 (2011).
43. A. A. Krasikov, D. A. Balaev, A. D. Balaev, S. V. Stolyar, R. N. Yaroslavtsev, and R. S. Iskhakov, J. Magn. Magn. Mater. **592**, 171781 (2024).

# Избыточная энтропия металлических стекол и ее связь со стеклообразующей способностью материнских расплавов

А. С. Макаров<sup>1)</sup>, Р. А. Кончаков<sup>+</sup>, Г. В. Афонин<sup>+</sup>, Ц. Ч. Цзиао<sup>\*2)</sup>, Н. П. Кобелев<sup>×</sup>, В. А. Хоник<sup>+</sup>

<sup>1)</sup> Воронежский государственный педагогический университет, 394043 Воронеж, Россия

<sup>\*</sup>School of Mechanics, Civil Engineering and Architecture, Northwestern Polytechnical University, 710072 Xi'an, China

<sup>×</sup>Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 12 августа 2024 г.

После переработки 1 октября 2024 г.

Принята к публикации 11 октября 2024 г.

На основе калориметрических измерений определена избыточная энтропия  $\Delta S$  по отношению к материнскому кристаллическому состоянию для 30 металлических стекол. Показано, что значение этой величины в состоянии переохлажденной жидкости  $\Delta S_{sq}$  является универсальной характеристикой стекла, которая не зависит от его термообработки. Для тех же металлических стекол рассчитаны 6 параметров оценки стеклообразующей способности переохлажденных расплавов, часто используемых в литературе. Показано, что все 6 параметров увеличиваются с ростом  $\Delta S_{sq}$  и, таким образом, стеклообразующая способность переохлажденных расплавов увеличивается с повышением их структурной неупорядоченности. Рассмотрен возможный механизм реализации этой зависимости.

DOI: 10.31857/S0370274X24110201, EDN: NCWXCS

**Введение.** Одним из важнейших свойств расплавов является их способность к переохлаждению и формированию стекла. Это свойство в общем смысле характеризуется стеклообразующей способностью (СОС) расплава, количественной мерой которой является критическая скорость охлаждения (минимальная скорость охлаждения расплава для формирования стекла). Предсказание и интерпретация СОС расплавов является важнейшей задачей физики некристаллических материалов и ее решению посвящено большое количество работ (см. обзоры [1, 2]).

Стеклообразующая способность сильно зависит от химического состава, так что даже малые добавки различных элементов могут ее сильно изменять. Поэтому для интерпретации СОС привлекаются различные представления, включающие анализ различия атомных диаметров компонентов сплава [3], энталпии и энтропии несоответствия [4], энталпии плавления [5], энталпии смешения и электроотрицательности [6], энталпии смешения, энтропии несоответствия и конфигурационной энтропии [7] и др. [2].

Вышеупомянутые термодинамические параметры, используемые для оценки СОС [4–7], однако, имеют одни и те же значения для кристаллического

и некристаллического состояний. Между тем, представляет интерес проанализировать возможную взаимосвязь СОС с термодинамическими параметрами, зависящими от состояния стекла в различных структурных состояниях и отражающими его структурный порядок. Это обстоятельство составляло одну из мотиваций введения безразмерного параметра структурного порядка  $\xi$ , зависящего от избыточной энтропии стекла  $\Delta S$  по отношению к материнскому кристаллу и энтропии плавления  $\Delta S_m$ , определяемого как  $\xi(T) = 1 - \frac{\Delta S(T)}{\Delta S_m}$  [8]. Исследование ряда металлических стекол (МС) показало, помимо прочего, что параметр  $\xi$ , рассчитываемый для состояния переохлажденной жидкости, значительно растет с ростом критической скорости закалки расплава, и, таким образом, СОС существенно растет с увеличением степени неупорядоченности структуры, контролируемой энтропиями  $\Delta S$  и  $\Delta S_m$  [8].

Однако критическую скорость охлаждения, хотя и являющуюся главным параметром для оценки СОС, довольно сложно определить экспериментально, и литературные данные о ней весьма ограничены. С этой точки зрения удобнее использовать другие параметры СОС, оперирующие набором характеристических температур. Впервые такой параметр был предложен Тернбаллом [9] на основе теории гомогенного зарождения кристаллов в виде неравенства для приведенной температуры стеклования

<sup>1)</sup>e-mail: a.s.makarov.vrn@gmail.com

<sup>2)</sup>J. C. Qiao.

$T_{rg} = T_g/T_L \geq 2/3$ , где  $T_g$  и  $T_L$  – температура стеклования и температура ликвидуса, определяемые как температуры начала и конца соответствующих эндотермической и экзотермической реакций на термограммах дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК) или дифференциального термического анализа. В параметре  $T_{rg}$  низкая  $T_L$  и высокая  $T_g$  указывают на более высокую тенденцию к образованию стекла, и, следовательно, большее значение  $T_{rg}$  указывает на более легкое образование стекла, в особенности вблизи эвтектических составов. Несмотря на качественный характер этой оценки, параметр  $T_{rg}$  используется и в настоящее время [1].

Поскольку МС (как и многие другие стекла) кристаллизуются при нагреве, для них вводится температура кристаллизации  $T_x$ , определяемая как начало экзотермической реакции кристаллизации. Вполне очевидно, что СОС связана с возможной степенью переохлаждения расплава, которую можно оценить величиной  $T_x - T_g$ , входящей в различные критерии оценки СОС [1–3]. С другой стороны, можно ожидать, что СОС будет обратно пропорциональна разнице  $T_s - T_x$  ( $T_s$  – температура солидуса). На основе таких представлений Хруби ввел параметр для оценки СОС, определяемый как [10]

$$H_R = (T_x - T_g)/(T_s - T_x), \quad (1)$$

который широко применяется для оценки СОС неметаллических расплавов [11]. Для оценки СОС металлических расплавов применяется параметр

$$\Delta T_{rg} = (T_x - T_g)/(T_L - T_g), \quad (2)$$

характеризующий отношение устойчивости переохлажденной жидкости и легкости стеклообразования [12]. С другой стороны, можно рассмотреть СОС как суммарный эффект склонности к стеклообразованию, выражаемой как  $T_g/T_L$  и устойчивости стекла, оцениваемой как  $T_x/T_L$ . Это ведет к формулировке критерия СОС в виде [13]

$$\beta = T_g/T_L + T_x/T_L. \quad (3)$$

Авторы [14] рассматривают СОС как обратно пропорциональную  $T_L$ , прямо пропорциональную  $(T_x - T_g)$  и  $T_x$ , что в итоге приводит к критерию

$$\gamma_m = (2T_x - T_g)/T_L. \quad (4)$$

Очевидно, что переохлажденная жидкость не кристаллизуется в интервале между  $T_g$  и  $T_x$ , но в интервале между  $T_x$  и  $T_L$  стекло склонно к кристаллизации. Поэтому разницу  $(T_x - T_g)$  следует максимизировать, а величину  $(T_L - T_x)$  – минимизировать

в некоем идеальном выражении для СОС. Совместный эффект этих двух конкурирующих факторов отражается критерием [15]

$$G_p = T_g(T_x - T_g)/(T_L - T_x)^2, \quad (5)$$

который наилучшим образом, в сравнении с другими критериями СОС, отражает стеклообразующую способность почти двух сотен МС. Наконец, в результате модернизации формулы (4) был получен еще один критерий СОС, который показал наиболее высокую степень корреляции с критическим диаметром отливки стекла [16]

$$\omega_m = (2T_x - T_g)/(T_x + T_L). \quad (6)$$

Помимо вышеуказанных критериев, в литературе упоминается также целый ряд других характеристик СОС, оперирующих температурами  $T_g$ ,  $T_x$ ,  $T_L$ ,  $T_s$  в разных комбинациях [1, 17]. Известны также оценки стеклообразующей способности металлических систем на основе машинного обучения с использованием вышеупомянутых параметров [17–19].

Цель настоящей работы состоит в проверке гипотезы о том, связана ли СОС металлических систем с избыточной энтропией стекол  $\Delta S$  в состоянии переохлажденной жидкости и, другими словами, определяется ли СОС степенью неупорядоченности переохлажденного расплава. Для достижения этой цели с помощью калориметрических измерений были определены величины  $\Delta S$  для 30 стекол, СОС которых оценивалась по формулам (1)–(6).

**Методика экспериментов.** Составы исследуемых МС представлены в табл. 1. Образцы приготовлялись в основном в объемном виде пластин толщиной 2 мм методом всасывания расплава в медную изложницу. Некоторые стекла с низкой СОС изготавливались в виде лент толщиной 20–40 мкм методом спиннингования расплава (помечены как *rib* в табл. 1 и на рис. 3, 4). Некристалличность образцов контролировалась рентгенографически.

Измерения ДСК проводились на приборе Hitachi DSC 7020 в атмосфере азота особой чистоты (99.999) с использованием образцов массой около 50 мг. Методика измерений состояла в следующем. Сначала исходный образец нагревался до температуры полной кристаллизации, охлаждался до комнатной температуры и затем переставлялся в эталонную ячейку. В измерительную ячейку далее помещался новый исходный образец и производился нагрев до температуры полной кристаллизации. Третий исходный образец в измерительной ячейке нагревался до интервала переохлажденной жидкости (т.е. до температуры  $T_g \leq T \leq T_x$ ) с последующим охлаждением до

**Таблица 1.** Составы исследуемых МС (ат. %), их температуры (в Кельвинах) стеклования  $T_g$ , начала кристаллизации  $T_x$ , солидус  $T_s$ , ликвидус  $T_L$  и энтропия смешения  $\Delta S_{\text{mix}}/R$ . Стекло 30 является эквиатомным

#	Хим. состав (ат. %)	$T_g$	$T_x$	$T_s$	$T_L$	$\frac{\Delta S_{\text{mix}}}{R}$
1	Zr <sub>48</sub> Cu <sub>48</sub> Al <sub>4</sub>	683	743	—	1191	0.83
2	Cu <sub>50</sub> Zr <sub>45</sub> Al <sub>5</sub> rib	714	769	1000	1200	0.86
3	Zr <sub>46</sub> Cu <sub>46</sub> Al <sub>8</sub>	694	752	990	1163	0.92
4	Cu <sub>49</sub> Hf <sub>42</sub> Al <sub>9</sub>	778	863	1180	1249	0.93
5	La <sub>55</sub> Ni <sub>10</sub> Al <sub>35</sub>	513	568	755	890	0.93
6	Cu <sub>50</sub> Zr <sub>40</sub> Al <sub>10</sub>	680	747	1048	1179	0.94
7	Zr <sub>47</sub> Cu <sub>45</sub> Al <sub>7</sub> Fe <sub>1</sub>	696	769	1025	1223	0.95
8	Zr <sub>56</sub> Co <sub>28</sub> Al <sub>16</sub>	743	792	—	1258	0.97
9	Zr <sub>46</sub> Cu <sub>45</sub> Al <sub>7</sub> Ti <sub>2</sub>	674	727	995	1233	0.98
10	La <sub>55</sub> Al <sub>25</sub> Co <sub>20</sub>	472	515	684	771	0.99
11	Zr <sub>55</sub> Co <sub>25</sub> Al <sub>20</sub>	740	800	1166	1489	0.99
12	Zr <sub>65</sub> Al <sub>10</sub> Ni <sub>10</sub> Cu <sub>15</sub>	552	734	1023	1124	1.03
13	Pd <sub>40</sub> Ni <sub>40</sub> P <sub>20</sub>	564	650	880	1000	1.05
14	Zr <sub>46</sub> (Cu <sub>4/5</sub> Ag <sub>1/5</sub> ) <sub>46</sub> Al <sub>8</sub>	710	776	1091	1228	1.15
15	Zr <sub>48</sub> Cu <sub>34</sub> Ag <sub>8</sub> Al <sub>8</sub> Pd <sub>2</sub>	675	737	—	1140	1.20
16	Pd <sub>43.2</sub> Cu <sub>28</sub> Ni <sub>8.8</sub> P <sub>20</sub>	562	640	795	835	1.25
17	Zr <sub>57</sub> Nb <sub>5</sub> Al <sub>10</sub> Cu <sub>15.4</sub> Ni <sub>12.6</sub>	665	720	1031	1115	1.25
18	Pt <sub>42.5</sub> Cu <sub>27</sub> Ni <sub>9.5</sub> P <sub>21</sub>	510	576	799	863	1.26
19	Pd <sub>40</sub> Cu <sub>30</sub> Ni <sub>10</sub> P <sub>20</sub>	560	635	775	848	1.28
20	Zr <sub>52.5</sub> Ti <sub>5</sub> Cu <sub>17.9</sub> Ni <sub>14.6</sub> Al <sub>10</sub>	635	689	1072	1120	1.31
21	Zr <sub>31.6</sub> Hf <sub>13.4</sub> Al <sub>8.7</sub> Ag <sub>8.4</sub> Cu <sub>37.8</sub> rib	723	750	1084	1144	1.42
22	Ti <sub>32.8</sub> Zr <sub>30.2</sub> Cu <sub>9</sub> Ni <sub>6.3</sub> Be <sub>22.7</sub>	601	653	914	945	1.45
23	Zr <sub>31</sub> Ti <sub>27</sub> Be <sub>26</sub> Cu <sub>10</sub> Ni <sub>6</sub>	610	682	880	1023	1.46
24	Pt <sub>20</sub> Pd <sub>20</sub> Cu <sub>20</sub> Ni <sub>20</sub> P <sub>20</sub> rib	562	619	810	860	1.61
25	Ti <sub>20</sub> Zr <sub>20</sub> Hf <sub>20</sub> Be <sub>20</sub> Cu <sub>20</sub>	632	715	935	1194	1.61
26	Ti <sub>20</sub> Zr <sub>20</sub> Hf <sub>20</sub> Be <sub>20</sub> Ni <sub>20</sub>	657	709	969	1108	1.61
27	Zr <sub>35</sub> Hf <sub>13</sub> Al <sub>11</sub> Ag <sub>8</sub> Ni <sub>8</sub> Cu <sub>25</sub> rib	710	775	1060	1112	1.63
28	Zr <sub>30</sub> Hf <sub>25</sub> Al <sub>20</sub> Co <sub>10</sub> Ni <sub>10</sub> Cu <sub>5</sub> rib	775	805	1270	1337	1.64
29	Zr <sub>35</sub> Hf <sub>17.5</sub> Ti <sub>5.5</sub> Al <sub>12.5</sub> Co <sub>7</sub> Ni <sub>12</sub> Cu <sub>10</sub>	695	733	1160	1206	1.77
30	TiZrHfCuNiBe	667	710	1010	1100	1.79

комнатной температуры. Повторный нагрев этого образца дает тепловой поток в релаксированном состоянии. Полученные данные анализировались в помощь дифференциального теплового потока, рассчитываемого как  $\Delta W = W_{gl} - W_{cr}$ , где  $W_{gl}$  и  $W_{cr}$  – тепловые потоки от стекла и кристалла, соответственно.

С использованием полученных данных вычислялась избыточная энтропия стекла (в исходном или релаксированном состоянии) по отношению к материнскому кристаллу согласно ее определению, предложенному в [20, 21],

$$\Delta S(T) = \frac{1}{\dot{T}} \int_T^{T_{cr}} \frac{\Delta W(T)}{T} dT, \quad (7)$$

где  $T_{cr}$  – температура полной кристаллизации. Как видно, при  $T = T_{cr}$  величина  $\Delta S = 0$ , так что формула (7) дает температурную зависимость избыточной энтропии стекла относительно материнского кристалла. Ошибка определения избыточной энтро-

пии в состоянии переохлажденной жидкости не превышала 5 %.

Все измерения ДСК выполнялись при скорости нагрева  $\dot{T} = 3 \text{ K}/\text{мин}$ . Если температура ликвидус данного МС не превышала 900 К (высокотемпературный предел работы используемого калориметра), то все характеристические температуры ( $T_g$ ,  $T_x$ ,  $T_s$  и  $T_L$ ) определялись из термограмм ДСК. Если  $T_s$  и/или  $T_L$  были больше, то для их оценки использовались литературные данные.

**Результаты и обсуждение.** Термограммы ДСК исследуемых МС имеют в целом стандартный вид, аналогичный показанному в предшествующей работе [21]. На рисунке 1 представлен пример температурных зависимостей избыточной энтропии  $\Delta S$ , рассчитываемой по формуле (7) на основе экспериментальной зависимости  $\Delta W(T)$ . Как видно,  $\Delta S$  для МС Zr<sub>50</sub>Cu<sub>40</sub>Al<sub>10</sub> в исходном состоянии уменьшается при нагреве вплоть до температуры стеклования

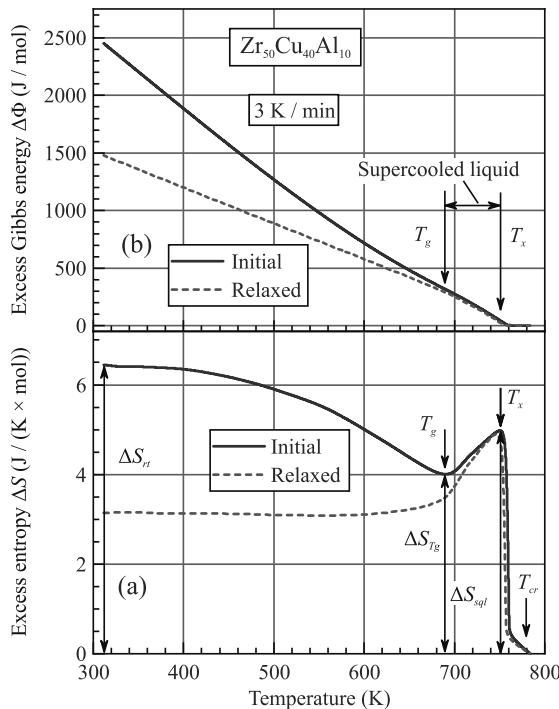


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Температурные зависимости избыточной энтропии  $\Delta S$  МС  $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$  в исходном и релаксированном состояниях, рассчитанные из калориметрических данных по формуле (7). Стрелками указаны температуры стеклования  $T_g$ , начала кристаллизации  $T_x$  и полной кристаллизации  $T_{cr}$ . Показаны также значения избыточной энтропии при комнатной температуре  $\Delta S_{rt}$ , при температуре стеклования  $\Delta S_{Tg}$  и в состоянии переохлажденной жидкости  $\Delta S_{sql}$ . (б) – Температурные зависимости избыточной энергии Гиббса  $\Delta\Phi$

$T_g$ , после чего стекло переходит в состояние переохлажденной жидкости и избыточная энтропия растет, достигая максимума непосредственно перед началом кристаллизации при  $T = T_x$ . Максимальное значение избыточной энтропии здесь и ниже обозначено как  $\Delta S_{sql}$ . Дальнейший нагрев приводит к быстрому падению  $\Delta S$  до нуля при температуре полной кристаллизации  $T_{cr}$ . В релаксированном состоянии (т.е. после нагрева в состояние переохлажденной жидкости) избыточная энтропия примерно постоянна при нагреве до  $T_g$ , затем быстро растет и ведет себя полностью аналогично случаю исходного образца. Таким образом, рис. 1 демонстрирует, что нагрев в состояние переохлажденной жидкости (т.е. в интервал  $T_g \leq T \leq T_x$ ) “стирает” память тепловой истории.

Возникает вопрос о том, в какой степени это утверждение справедливо в целом для исследованных МС. Ответ на этот вопрос дает рис. 2, где по-

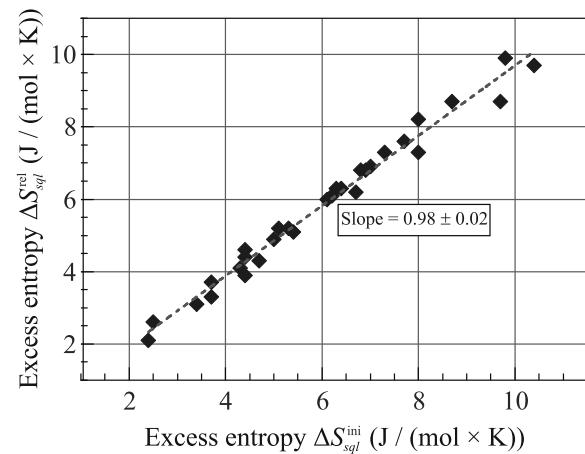


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость избыточной энтропии в состоянии переохлажденной жидкости после релаксации  $\Delta S_{rt}^{rel}$  от избыточной энтропии в состоянии переохлажденной жидкости в исходном состоянии  $\Delta S_{sql}^{ini}$ . Точки соответствуют исследованным МС, прямая линия дает линейную аппроксимацию

казана зависимость избыточной энтропии в состоянии переохлажденной жидкости после релаксации  $\Delta S_{rt}^{rel}$  от избыточной энтропии в состоянии переохлажденной жидкости для исходного состояния  $\Delta S_{sql}^{ini}$ , а точки соответствуют всем исследованным МС. Как видно, производная  $d\Delta S_{sql}^{rel}/d\Delta S_{sql}^{ini}$  с учетом разброса данных равна единице и, таким образом, избыточная энтропия в состоянии переохлажденной жидкости не зависит от релаксации стекла. Другими словами, величина  $\Delta S_{sql}^{ini} = \Delta S_{sql}^{rel} \equiv \Delta S_{sql}$  является универсальным параметром, характеризующим степень неупорядоченности структуры МС в состоянии переохлажденной жидкости. При этом  $\Delta S_{sql}$  сильно зависит от химического состава, изменяясь от  $0.24 R$  до  $1.2 R$ , где  $R$  – универсальная газовая постоянная. Именно с избыточной энтропией  $\Delta S_{sql}$  следует связывать стеклообразующую способность расплава.

Представляет также интерес оценить роль избыточной энергии Гиббса  $\Delta\Phi$  стекла по отношению к материнскому кристаллу. По определению энергии Гиббса для изобарических условий имеем  $d\Delta\Phi = -\Delta SdT$  [22], и тогда

$$\Delta\Phi(T) = \int_T^{T_{cr}} \Delta S(T) dT, \quad (8)$$

где  $\Delta S(T)$  вычисляется по формуле (7). Результаты расчета  $\Delta\Phi(T)$  для исходного и релаксированного состояний показаны на рис. 1б. Как видно, в обоих случаях  $\Delta\Phi$  почти линейно снижается с температурой, не имеет каких-либо особенностей вблизи  $T_g$ , довольно мала в состоянии переохлажденной жидкости

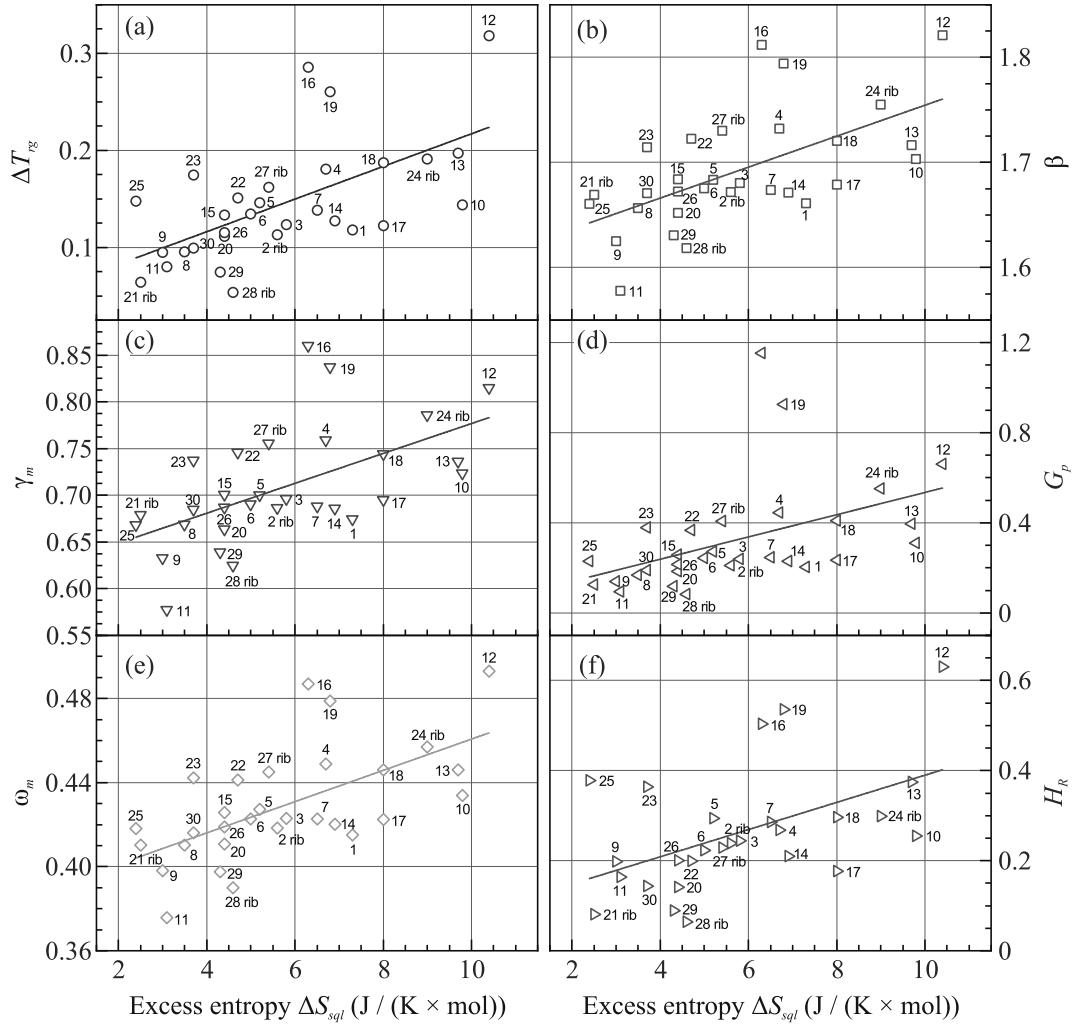


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости параметров стеклообразующей способности  $\Delta T_{rg}$  (а),  $\beta$  (б),  $\gamma_m$  (в),  $G_p$  (д),  $\omega_m$  (е) и  $H_R$  (ф), определяемых формулами (2), (3), (4), (5), (6) и (1), соответственно, от избыточной энтропии в состоянии переохлажденной жидкости  $\Delta S_{sq}$ . Точки соответствуют исследованным МС согласно табл. 1, прямые линии дают линейные аппроксимации. Угловые коэффициенты аппроксимаций и коэффициенты корреляции Пирсона для  $\Delta T_{rg}$  (а),  $\beta$  (б),  $\gamma_m$  (в),  $G_p$  (д),  $\omega_m$  (е) и  $H_R$  (ф) составляют 0.017 и 0.61, 0.015 и 0.60, 0.016 и 0.57, 0.049 и 0.46, 0.0074 и 0.62, 0.030 и 0.50 соответственно

сти и обращается в ноль при  $T = T_c$ . Значение  $\Delta\Phi$  при комнатной температуре существенно снижается в результате структурной релаксации. Аналогичная ситуация имеет место и для всех других МС. Очевидно, что снижение  $\Delta\Phi$  с температурой отражает монотонное снижение работы по превращению стекла в кристалл, но СОС величина  $\Delta\Phi$  не характеризует.

Возвращаясь к анализу роли избыточной энтропии в стеклообразовании, мы рассчитали параметры СОС по формулам (1)–(6) в зависимости от избыточной энтропии в состоянии переохлажденной жидкости  $\Delta S_{sq}$ . Соответствующие результаты для исследованных МС показаны на рис. 3. Как видно, несмотря на существенный разброс точек, все шесть

выбранных параметров СОС систематически растут с ростом  $\Delta S_{sq}$ , так что коэффициент корреляции Пирсона колеблется в пределах  $0.50 \leq R \leq 0.62$ . Наибольший коэффициент корреляции  $R = 0.62$  соответствует параметру СОС  $\omega_m$  (рис. 3е), рассчитываемому по формуле (6). С другой стороны, рис. 3 показывает, что различные параметры СОС дают в целом похожие зависимости от  $\Delta S_{sq}$ . Отметим, что в работе [17], оценившей СОС по 17 различным параметрам, наилучшим был назван параметр  $G_p$  (формула (5)). Отметим также, что разброс точек на рис. 3 связан, вероятно, с тем, что, как отмечалось в работе [1], ни один из рассматриваемых параметров не учитывает СОС в полной мере.

Подчеркнем, что целью настоящей работы является не определение наилучшего параметра для оценки СОС, а выявление связи СОС с избыточной энтропией в состоянии переохлажденной жидкости, что и демонстрирует рис. 3. Рост СОС с увеличением  $\Delta S_{sql}$ , имеющий место независимо от параметра СОС, используемого для оценки этой связи, вполне однозначно свидетельствует о том, что степень структурной неупорядоченности в интервале  $T_g < T < T_c$ , по крайней мере, в существенной степени определяет стеклообразующую способность переохлажденного расплава. Соответственно, величину СОС для разных МС можно оценивать по величине избыточной энтропии  $\Delta S_{sql}$ , которая относительно просто вычисляется исходя из калориметрических данных. Эти выводы являются новыми и представляются весьма важными.

Важно проанализировать причины зависимости СОС от избыточной энтропии. В 1952 году Франком было предсказано, что атомные кластеры с икосаэдрической симметрией действуют как ингибиторы кристаллизации, увеличивая тем самым СОС [23]. Эта идея впоследствии многократно подтверждалась [24, 25]. С другой стороны, нами было ранее показано, что избыточная энтропия МС обусловлена в основном дефектами типа межузельных гантелей, формирующимися при закалке расплава [21]. Эти дефекты формируют различные кластеры, причем кластер из семи дефектов близок по структуре к идеальному икосаэдру [26]. Соответственно, доля атомных конфигураций с ближним порядком икосаэдрического типа будет расти с увеличением концентрации дефектов межузельного типа [26, 27].

Было также установлено, что критический размер отливок МС (являющийся мерой СОС) пропорционален ширине первого пика структурного фактора на половине его высоты [28], которая является прямой мерой неупорядоченности стекла. При этом ширина первого пика структурного фактора в состоянии переохлажденной жидкости пропорциональна концентрации дефектов межузельного типа [29]. Таким образом, чем выше концентрация дефектов (больше доля областей с икосаэдрическим ближним порядком) и, соответственно, больше избыточная энтропия и выше структурная неупорядоченность в состоянии переохлажденной жидкости, тем большей СОС расплава можно ожидать.

Отметим также, что для интерпретации физических свойств МС широко используется так называемая энтропия смешения, определяемая как

$$\Delta S_{\text{mix}} = -R \sum_{i=1}^n c_i \ln c_i, \quad (9)$$

где  $c_i$  – молярная доля  $i$ -го элемента в сплаве и  $n$  – число элементов, составляющих сплав [30, 31]. В частности, энтропия смешения применяется и при анализе СОС [18]. МС, характеризуемые величинами  $\Delta S_{\text{mix}}/R \geq 1.5$  называются высокоэнтропийными [32] и им посвящена большая литература [33]. В силу этого представляет интерес определить, влияет ли  $\Delta S_{\text{mix}}$  на стеклообразующую способность.

Значения энтропии смешения в единицах универсальной газовой постоянной для исследуемых стекол, включая 7 высокоэнтропийных МС, приведены в табл. 1. На рисунке 4 показана зависимость параметра  $\omega_m$  (формула (6)) от  $\Delta S_{\text{mix}}/R$ . Как видно, какой-либо значимой корреляции между этими величинами нет. Аналогичный результат имеет место и для других вышеуказанных параметров СОС. Следует также отметить, что энтропия смешения уменьшается с ростом избыточной энтропии по отношению к материнскому кристаллу  $\Delta S$  и “высокоэнтропийные” МС являются на самом деле стеклами с низкой избыточной энтропией, независимо от температуры  $T_{rt}$ ,  $T_g$  или  $T_{sql}$ , для которой рассчитывается эта величина [34]. Именно низкая избыточная энтропия по отношению к материнскому кристаллу  $\Delta S$  определяет низкую атомную подвижность [35], замедленную диффузию [36, 37] и кинетику кристаллизации [38], а также замедленную кинетику гомогенного течения [37] высокоэнтропийных МС.

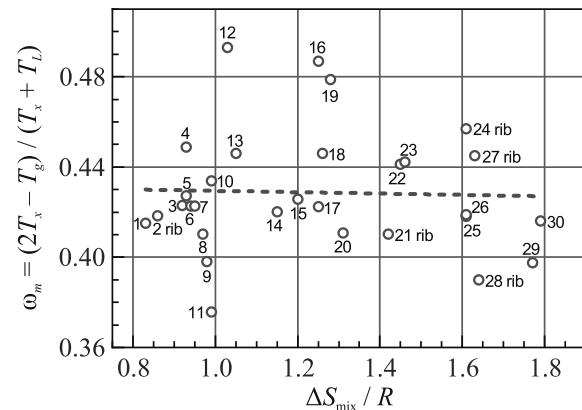


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость параметра стеклообразования  $\omega_m$  от энтропии смешения  $\Delta S_{\text{mix}}/R$ , рассчитываемых по формулам (6) и (9) соответственно. Штриховая линия дает линейную аппроксимацию

**Заключение.** С использованием калориметрических данных рассчитана температурная зависимость избыточной энтропии  $\Delta S$  по отношению к материнскому кристаллу для 30 МС. Показано, что значение этой величины  $\Delta S = \Delta S_{sql}$ , рассчитываемое для со-

стояния переохлажденной жидкости (т.е. для интервала  $T_g < T < T_x$ ), не зависит от термообработки стекла и поэтому  $\Delta S_{sql}$  является универсальным параметром, характеризующим стекло в этом состоянии.

Рассчитаны шесть параметров стеклообразующей способности (СОС) расплава, определяемых формулами (1)–(6). Показано, что все шесть параметров увеличиваются с ростом  $\Delta S_{sql}$  и, таким образом, СОС металлических расплавов увеличивается с ростом их структурной неупорядоченности в состоянии переохлажденной жидкости. Соответственно, оценку СОС расплавов различных МС можно проводить посредством относительно простого определения  $\Delta S_{sql}$ .

Аргументируется утверждение о том, что физической причиной зависимости СОС от избыточной энтропии  $\Delta S_{sql}$  является рост концентрации дефектов типа межузельных гантелей с увеличением  $\Delta S_{sql}$  и соответствующее увеличение доли областей с икосаэдрическим ближним порядком вследствие кластеризации дефектов.

Исследование также показало отсутствие какой-либо зависимости СОС от энтропии смешения, часто используемой для характеристики физических свойств МС.

**Финансирование работы.** Данная работа финансировалась за счет средств гранта Российского научного фонда № 23-12-00162. 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. C. Suryanarayana, I. Seki, and A. Inoue, *J. Non-Cryst. Sol.* **355**, 355 (2009).
2. C. Chatopadhyay, K.S.N. Satish Idury, J. Bhatt, K. Mondal, B.S. Murty, *Mater. Sci. Technol.* **32**, 380 (2016).
3. A. Inoue, *Acta Mater.* **48**, 279 (2000).
4. A. Takeuchi and A. Inoue, *Mater. Trans. JIM*, **41**, 1372 (2000).
5. A.-H. Cai, H. Chen, W.-K. An, J.-Y. Tan, and Y. Zhou, *Mater. Sci. Eng. A* **457**, 6 (2007).
6. P.K. Ray, M. Akinc, and M.J. Kramer, *J. Alloys Compd.* **489**, 357 (2010).
7. B.R. Rao, M. Srinivas, A.K. Shah, A.S. Gandhi, and B.S. Murty, *Intermetallics* **35**, 73 (2013).
8. A.S. Makarov, G.V. Afonin, R.A. Konchakov, V.A. Khonik, J.C. Qiao, A.N. Vasiliev, and N.P. Kobelev, *Scr. Mater.* **239**, 115783 (2024).
9. D. Turnbull, *Contemp. Phys.* **10**, 479 (1969).
10. A. Hrubý, *Czech. J. Phys. B* **22**, 1187 (1972).
11. A. A. Cabral Jr., C. Fredericci, and E.D. Zanotto, *J. Non-Cryst. Solids* **219**, 182 (1997).
12. X. Xiao, F. Shoushi, M. Guoming, H. Qin, and D. Yuanda, *J. Alloys Compd.* **376**, 145 (2004).
13. K. Mondal and B. Murty, *J. Non-Cryst. Solids* **351**, 1366 (2005).
14. X. H. Du, J. C. Huang, C. T. Liu, and Z. P. Lu, *J. Appl. Phys.* **101**, 086108 (2007).
15. M. K. Tripathi, S. Ganguly, P. Dey, and P. Chattopadhyay, *Comput. Mater. Sci.* **118**, 56 (2016).
16. P. Blyskun, P. Maj, M. Kowalczyk, J. Latuch, and T. Kulik, *J. Alloys Compd.* **625**, 13 (2015).
17. A. Ghorbani, A. Askari, M. Malekan, and M. Nili-Ahmabadi, *Sci. Rep.* **12**, 11754 (2022).
18. J. Xiong, S.-Q. Shi, and T.-Y. Zhang, *Comput. Mater. Sci.* **192**, 110362 (2021).
19. J. Verma, P. Bohane, J. Bhatt, and A.K. Srivastav, *J. Non-Cryst. Solids* **624**, 122710 (2024).
20. A.S. Makarov, G.V. Afonin, J.C. Qiao, A.M. Glezer, N.P. Kobelev, and V.A. Khonik, *J. Phys.: Condens. Matter* **33**, 435701 (2021).
21. А. С. Макаров, М. А. Кретова, Г. В. Афонин, Ц. Ч. Цзиао, А. М. Глезер, Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 110 (2022).
22. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, Физматлит, М. (1976), т. V.
23. F. C. Frank, *Proc. Roy. Soc. Lond. A* **215**, 43 (1952).
24. X. K. Xi, L. L. Li, B. Zhang, W. H. Wang, Y. Wu, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 095501 (2007).
25. J. Russo and H. Tanaka, *Sci. Rep.* **2**, 505 (2012).
26. R. A. Konchakov, A.S. Makarov, N.P. Kobelev, A. M. Glezer, G. Wilde, and V.A. Khonik, *J. Phys.: Condens. Matter* **31**, 385703 (2019).
27. Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, УФН, **193**, 718 (2013).
28. Z. Liu, C. Chen, Y. Zhou, L. Zhang, and H. Wang, *Scr. Mater.* **240**, 115848 (2024).
29. A. S. Makarov, G. V. Afonin, R. A. Konchakov, J. C. Qiao, A. N. Vasiliev, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *Intermetallics* **163**, 10804 (2023).
30. J.-W. Yeh, S.-K. Chen, S.-J. Lin, J.-Y. Gan, T.-S. Chin, T.-T. Shun, C.-H. Tsau, and S.-Y. Chang, *Adv. Eng. Mater.* **6**, 299 (2004).
31. B. Cantor, I. T. H. Chang, P. Knight, and A. B. Vincent, *Mater. Sci. Eng. A* **375–377**, 213 (2004).
32. W. H. Wang, *JOM* **66**, 2067 (2014).
33. Y. Du, Q. Zhou, and H. Wang, *Encycl. Mater.: Metals Alloys* **2**, 318 (2022).
34. G. V. Afonin, J. C. Qiao, A. S. Makarov, R. A. Konchakov, E. V. Goncharova, and N. P. Kobelev, *Appl. Phys. Lett.* **124**, 151905 (2024).

35. C. J. Chen, R. Xu, B. J. Yin, Y. Z. He, J. Y. Zhang, P. Zhang, and B. L. Shen, *Intermetallics* **157**, 107887 (2023).
36. Y. J. Duan, L. T. Zhang, J. C. Qiao, Y.-J. Wang, Y. Yang, T. Wada, H. Kato, J. M. Pelletier, E. Pineda, and D. Crespo, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 175501 (2022).
37. J. Jiang, Z. Lu, J. Shen, T. Wada, H. Kato, and M. Chen, *Nat. Commun.* **12**, 3843 (2012).
38. M. Yang, X. J. Liu, Y. Wu, H. Wang, X. Z. Wang, and P. Z. Lu, *Mater. Res. Lett.* **6**, 495 (2018).

# Эффект де Гааза–ван Альфена и гигантский температурный пик в тяжелофермионном материале SmB<sub>6</sub>

B. A. Зюзин<sup>1)</sup>

Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 3 октября 2024 г.

После переработки 8 октября 2024 г.

Принята к публикации 11 октября 2024 г.

В данной работе мы предлагаем возможное объяснение гигантского температурного пика амплитуды осцилляций де Гааза–ван Альфена, наблюдаемого при очень низких температурах в изоляторной системе SmB<sub>6</sub>. Наша теоретическая модель состоит из двух фермионов с частицеподобным спектрами, но с разными массами, один намного тяжелее другого, которые гибридизуются друг с другом, образуя энергетическую щель в точке вырождения спектров. В результате гибридизации на уровне Ферми возникает тяжелофермионный гибрид. Наши результаты свидетельствуют о том, что именно этот тяжелофермионный гибрид может приводить к гигантскому температурному пiku. Кроме того, мы предлагаем сценарий, когда этот гибрид может иметь краевые состояния.

DOI: 10.31857/S0370274X24110215, EDN: NFQJOD

Недавние эксперименты, в которых наблюдались квантовые осцилляции в Кондо-изоляторе SmB<sub>6</sub> [1, 2], до сих пор ставят вопросы к теории. Этот материал является изолятором из-за наличия щели на поверхности Ферми проводящих фермионов. Тем не менее он демонстрирует колебания де Гааза–ван Альфена (дГВА), и эффект имеет отклонения от стандартной зависимости амплитуды Лифшица–Косевича [3, 4] от температуры.

С нашей точки зрения, существует ряд основных экспериментальных фактов, взятых из [1, 2], которые должна учитывать теория. Прежде всего, наблюданная частота колебаний дГВА изолятора соответствует Фермиевской поверхности гипотетической металлической фазы системы [1, 2], т.е. до того, как она стала изолятором за счет образования энергетической щели. В экспериментах это было доказано путем сравнения частот материала LaB<sub>6</sub>, который имеет зонную структуру, аналогичную SmB<sub>6</sub>, но никогда не становится изолятором. Предлагаемые теории [5–9] действительно объясняют этот факт в различных моделях изоляторов. Изолятор в этих теориях [5–9] образуется за счет гибридизации электроноподобных и дырочно-подобных фермионов в точках их вырождения и, как следствие, открывании энергетической щели в спектре электронов.

Во-вторых, еще одним основным нерешенным вопросом является гигантский температурный пик, наблюдаемый при малых температурах [2] в темпе-

ратурной зависимости амплитуды колебаний дГВА SmB<sub>6</sub>. Это резкое отклонение от стандартной формулы Лифшица–Косевича [3, 4] амплитуды, и до сих пор не существует теории, объясняющей пик. В этой статье мы даем возможное объяснение этого гигантского температурного пика. Кроме того, из нашей теории можно вывести некоторые следствия о природе системы SmB<sub>6</sub>. Затем, чтобы проверить наше объяснение пика, на основании нашей теории мы предлагаем другие свойства, которые нужно искать в об разцах экспериментов [2].

Некоторые оригинальные аналитические детали температурной зависимости колебаний дГВА в коррелированных изоляторах были получены автором в [10]. Там изучалось возникновение гибридизации дисперсионной зоны, соответствующей коллективизированным *d*-электронам, с локализованной плоской зоной *f*-электронов, приводящей к энергетической щели электронов проводимости. Был рассмотрен случай, когда гибридизация рассматривается самосогласованно, что соответствует подходу [11]. По сути это обобщение модели Келдыша–Копаева экситонного изолятора [12] при наличии магнитного поля. В [10] подтверждено, что возможны колебания дГВА в соответствии с работами [5–9], и что вместо стандартной формулы Лифшица–Косевича [3, 4] для амплитуды существуют квантовые колебания амплитуды с обратной температурой, которые показывают характерные локальные максимумы и минимумы. В [10] удалось аналитически оценить температуру, при которой появляется первый пик, а также его высо-

<sup>1)</sup>e-mail: zyuzin@itp.ac.ru

ту. Однако этот результат, а также работы [5–9], не объясняют какого-либо гигантского температурного пика, подобного тому, что экспериментально наблюдался в [2] в выражении для амплитуды колебаний дГВА.

Обобщим теоретическую модель [10] на случай, когда  $f$ -электроны не локализованы, а имеют электроноподобную дисперсию с большой массой. Гамильтониан в базисе  $\bar{\psi} = [\bar{\phi}_d, \bar{\phi}_f]$ , и то же самое для  $\psi$ , определяется как

$$H_B = \int_{\mathbf{k}} \bar{\psi} \begin{bmatrix} \xi_{\mathbf{k}} & \theta \\ \bar{\theta} & \alpha \xi_{\mathbf{k}} \end{bmatrix} \psi, \quad (1)$$

где  $\alpha > 0$  и  $\alpha \ll 1$  – это мера насколько  $f$ -электроны тяжелые. Выражение  $\xi_{\mathbf{k}} = \frac{\mathbf{k}^2}{2m} - \mu$  выбрано для удобного описания пересечения спектров двух электронов, где  $m$  – эффективная масса. Параметр  $\theta$  соответствует гибридизации между  $d$ - и  $f$ -электронов, и в принципе его следует рассматривать самосогласованно, как это сделано в [10]. Обратите внимание, что  $\mu$  – это не энергия Ферми, а скорее параметр квадратичного разложения спектра. Энергия Ферми устанавливается в точке пересечения двух электронных спектров, т.е.  $\epsilon_F = 0$ . Мы могли бы выбрать и  $\epsilon_F \neq 0$ . Ожидается, что в небольшой близости от  $\epsilon_F = 0$  это отклонение не изменит наш анализ, представленный ниже. Однако значительное отклонение приведет к пространственной зависимости решения среднего поля для гибридизации. Мы хотим избежать этого случая в данной работе.

Дисперсия фермионов, полученная в предположении среднего поля для параметра гибридизации,  $\theta = \text{const}(t; \mathbf{r})$  и  $\theta^* = \bar{\theta}$ , равна

$$\epsilon_{\mathbf{k};\pm} = \frac{1+\alpha}{2} \xi_{\mathbf{k}} \pm \sqrt{\left(\frac{1-\alpha}{2} \xi_{\mathbf{k}}\right)^2 + \bar{\theta}\theta}. \quad (2)$$

Нуль энегетической зоны  $\epsilon_{\mathbf{k};-}$  находится в точке  $\xi_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\bar{\theta}\theta}{\alpha}}$ , которая является поверхностью Ферми тяжелофермионного  $d-f$ -гибрида. Нуля фермионной зоны  $\epsilon_{\mathbf{k};+}$  не существует. На рисунке 1) показан  $k_y = 0$  срез спектра Eq. (2), на котором левый и центральный графики соответствуют ситуации до и после гибридизации.

Давайте теперь добавим магнитное поле и изучим эффект дГВА. Как и в работе [10], мы рассмотрим только уравнение самосогласования параметра гибридизации, так как оно уже будет содержать всю необходимую температурную зависимость эффекта дГВА. Уравнение получается путем предварительного выполнения преобразования

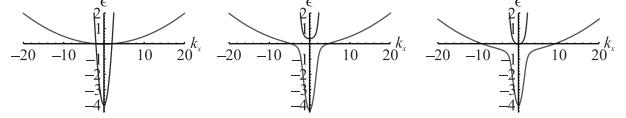


Рис. 1. (Цветной онлайн) График  $k_y = 0$  среза спектра модели тяжелых фермионов, заданного гамильтонианами (1) и (10) для  $\alpha = 1/200$ ,  $2m = 1$ ,  $\mu = 4$  в соответствующих единицах. Химический потенциал положен равным 0. Слева: до гибридизации. В центре: после гибридизации в модели (1) для  $\bar{\theta}\theta = 1, 5$ . Справа: после гибридизации в модели (10) для  $\bar{\theta}\theta = 1, 5/\mu$

Хаббарда–Стратоновича, которое разделяет взаимодействие  $H_{\text{int}} = U \int_x \bar{\phi}_d(x) \phi_d(x) \bar{\phi}_f(x) \phi_f(x)$  между разными фермионами. В результате развязки в действии появляются новые бозонные поля  $\theta(x)$  и  $\bar{\theta}(x)$  (см. уравнение (1)). Наконец, необходимо проварировать действие по отношению к этому бозонному полю, чтобы получить уравнение самосогласования для анзаца типа среднего поля на параметр гибридизации  $\bar{\theta}(x) = \theta^*(x) = \text{const}(x)$ . Мы рассматриваем модельное отталкивающее взаимодействие  $U > 0$ , которое не зависит от координат (в общем случае оно может быть функцией координат). В магнитном поле  $B$  уравнение самосогласования на параметр гибридизации  $\theta$  имеет вид

$$\theta = \theta \nu U \omega_B \sum_n \frac{\mathcal{F}_{\epsilon_{n,+}} - \mathcal{F}_{\epsilon_{n,-}}}{\sqrt{(1-\alpha)^2(\omega_B n + \frac{\omega_B}{2} - \mu)^2 + 4\bar{\theta}\theta}}, \quad (3)$$

где  $\mathcal{F}_x = \tanh\left(\frac{x}{2T}\right) = 1 - 2n_F(x)$ , где  $n_F(x)$  – функция распределения Ферми–Дирака, а  $\epsilon_{n,\pm}$  получены из уравнения (2) путем замены  $\xi_{\mathbf{k}} \rightarrow \omega_B(n + \frac{1}{2}) - \mu$ , где  $n$  – индекс уровня Ландау и где  $\omega_B$  – циклотронная частота  $\omega_B = \frac{eB}{mc}$ , а  $\nu = \frac{m}{2\pi}$ . Мы снова рассмотрим двумерный случай, но все результаты можно напрямую обобщить и на трехмерный случай. Мы используем формулу суммирования Пуассона для суммирования по уровням Ландау:

$$\sum_{n=0}^{\infty} g(n) = \int_0^{\infty} g(x) dx + \sum_{p \neq 0} \int_0^{\infty} e^{i2\pi px} g(x) dx, \quad (4)$$

где  $g(n)$  – некоторая функция. Уравнение (3) затем переписывается как  $1 = \nu U \omega_B \sum_p \mathcal{R}_p$ . Первая гармоника осцилляций дГВА определяется членами суммы с  $p = \pm 1$ . Следующим образом и обозначениям [10], член суммы с  $p = 1$  (член суммы с  $p = -1$  является комплексно-сопряженным членом с  $p = 1$ ) читается как

$$\mathcal{R}_{+1} = \frac{e^{i2\pi \frac{\mu}{\omega_B}}}{(1-\alpha)\omega_B} \int_{-\frac{\mu}{\omega_B} + \frac{1}{2}}^{\frac{\Delta}{\omega_B}} e^{i2\pi x} \frac{\mathcal{F}_{\epsilon_{x,+}} - \mathcal{F}_{\epsilon_{x,-}}}{\sqrt{x^2 + b^2}} dx, \quad (5)$$

где важно сохранить нижний предел как есть. Обычно нижний предел на этом этапе устремляется в  $\pm\infty$ . Член с  $p = -1$  получается комплексным сопряженением уравнения (5), т.е.  $\mathcal{R}_{-1} = \mathcal{R}_{+1}^*$ . Функцию распределения читается как

$$\mathcal{F}_{\epsilon_x, \pm} = \tanh \left[ \frac{\beta x \pm \sqrt{x^2 + b^2}}{4T/(1-\alpha)} \right], \quad (6)$$

где  $\beta = \frac{1+\alpha}{1-\alpha}$  и  $b = \frac{2\sqrt{\theta\theta}}{(1-\alpha)\omega_B}$ . Теперь проанализируем вычеты функции распределения и найдем их температурную зависимость. Вычеты функции распределения равны

$$x_{m;\pm} = \frac{i}{\beta^2 - 1} \left[ \beta T_m \pm \sqrt{T_m^2 - (\beta^2 - 1)b^2} \right], \quad (7)$$

где  $T_m = \frac{4\pi T}{(1-\alpha)\omega_B}(2m+1)$  – безразмерная фермионная мацубаровская частота. При  $\beta = 1$ , т.е.  $\alpha = 0$ , работает только вычет  $x_{m;-}$  и мы восстанавливаем случай, рассмотренный в [10]. Действительно,

$$\lim_{\beta \rightarrow 1} x_{m;-} = \frac{i}{2T_m} (T_m^2 + b^2). \quad (8)$$

Это также справедливо и для  $\alpha > 0$  и  $\alpha \ll 1$  при больших температурах, когда  $T_0^2 \gg (\beta^2 - 1)b^2$ , и мы ожидаем, что результаты [5, 10] справедливы и при этих температурах. Частота колебаний осцилляций дГВА при этих температурах есть  $F_1 = \mu$ , что согласуется с предыдущими работами [5–9]. В пределе  $T \rightarrow 0$  мы просто помещаем  $T = 0$  под квадратный корень в ур. (7),

$$x_{m;\pm} = \mp \sqrt{\frac{\bar{\theta}\theta}{|\alpha|} \frac{1}{\omega_B}} - i0\text{sign}(2m+1), \quad (9)$$

и в этом пределе осцилляции тяжелофермионного  $d-f$ -гибрида становятся когерентными. Действительная часть вычета соответствует частоте колебаний с обратным магнитным полем. Результат в этом пределе аналогичен стандартной формуле Лифшица–Косевича [3, 4]. Следуя строкам [10] на рис. 2 построен график зависимости амплитуды осциллирующей части параметра гибридизации  $\theta$  от температуры. Такая же зависимость от температуры, что и на рис. 2, будет и у осциллирующей части намагниченности.

Теперь стало ясно, почему пределы в уравнении (5) были зафиксированы в их оригинальном виде. Когда  $\mu > \sqrt{\frac{\bar{\theta}\theta}{|\alpha|}}$ , оба  $x_{m;\pm}$  вносят вклад в интегрирование, и в этом случае было безопасно с самого начала в уравнении (5) положить пределы в  $\pm\infty$ .

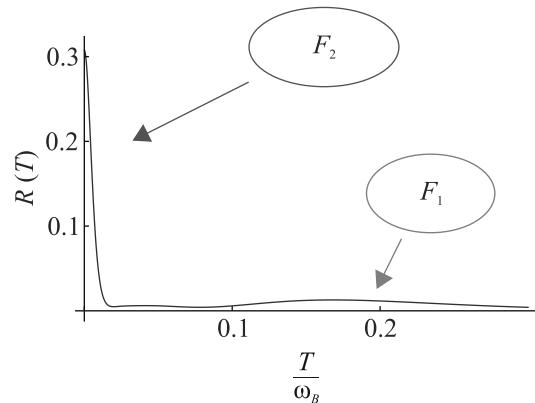


Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурная зависимость амплитуды осцилляций дГВА системы, описываемой Гамильтонианом (1). Для иллюстрации мы выбрали  $B = 35$  Тл,  $2\theta_0 = 35$  К,  $\alpha = 0.025$

Эта ситуация соответствует случаю, когда обе подзоны  $\epsilon_{\mathbf{k};\pm}$  заняты фермионами. Однако нас интересует противоположный предел  $\mu \leq \sqrt{\frac{\bar{\theta}\theta}{|\alpha|}}$ , т.е. предел тяжелого фермиона с  $\alpha \ll 1$ , когда занята только подзона  $\epsilon_{\mathbf{k};-}$ . Тогда из-за фиксированных пределов в ур. (5) вклад в интегрирование вносят только вычеты  $x_{m;-}$ . Частота  $F_2$  осцилляций дГВА при таких низких температурах будет соответствовать поверхности Ферми тяжелофермионного  $d-f$ -гибрида, а именно  $F_2 = \mu + \sqrt{\frac{\bar{\theta}\theta}{|\alpha|}}$ .

Давайте теперь попробуем сравнить наш теоретический анализ с экспериментом [2]. На рисунке 4 исследования [2] показан гигантский температурный пик на температурной зависимости амплитуды осцилляций дГВА в SmB<sub>6</sub>, наблюдаемый при очень низких температурах. Пик сам по себе не так уж и удивителен, поскольку даже регулярное выражение Лифшица–Косевича [3, 4] может дать такой пик для фермионов с тяжелой массой. Что необычного на рис. 4 в работе [2], так это ненулевая амплитуда осцилляций при более высоких температурах. Стандартная формула Лифшица–Косевича для фермионов с большой массой предсказывает экспоненциальное подавление амплитуды на высоких температурах. Заметим, что амплитуда осцилляций, показанная на рис. 4 работы [2], построена как функция температуры для частоты 330 Тл.

Наша теория утверждает, что гигантский температурный пик в температурной зависимости амплитуды осцилляций дГВА, наблюденный в [2] на низких температурах, обусловлен тяжелым фермионом. Тот факт, что система является изолятором, предполагает, что все фермионы легкой массы имеют щель на энергии Ферми и они осциллируют в эффекте дГВА с

подавленной амплитудой, простирающейся на высокие температуры (как это показано на рис. 2). Таким образом, выбор теоретической модели ур. (1), обладающей обеими температурными характеристиками, что и в эксперименте [2] оправдано. Однако в нашей теории высоко- и низкотемпературные области, показанные на рис. 2, осциллируют с разными частотами  $F_1 = \mu$  и  $F_2 = \mu + \frac{\theta_0}{\sqrt{\alpha}}$  соответственно, тогда как в эксперименте [2] обе области осциллируют с одинаковой частотой. В нашей модели они не могут быть строго одинаковыми, и, чтобы объяснить [2], мы полагаемся на совпадения. Мы предлагаем два вероятных сценария. В первом мы утверждаем, что имеется совпадение так, что вторая гармоника колебаний с  $F_1$  равна  $F_2$ . Другими словами,  $2F_1 \approx F_2$ . Это по-прежнему предел тяжелых фермионов, определяемый формулой  $\mu \leq \frac{\theta_0}{\sqrt{\alpha}}$ , когда заполнена только энергетическая ветка  $\epsilon_{k,-}$  и наши теоретические предсказания верны. Напомним, что при  $\mu > \frac{\theta_0}{\sqrt{\alpha}}$  обе ветви спектра будут заняты и система будет металлической. Кроме того, давайте посмотрим на рис. 2а в [2] и отождествим самый большой пик, соответствующий частоте  $F_3^{\text{exp}} = 330$  Тл, с  $F_2$ , а пик  $F_2^{\text{exp}} = 170$  Тл с  $F_1$ . Следовательно, действительно  $2F_2^{\text{exp}} \approx F_3^{\text{exp}}$ . Наше предложение может быть реалистичным, поскольку в работе [1] экспериментально наблюдалась в SmB<sub>6</sub> значительное усиление амплитуды второй и третьей гармоник осцилляций дГвА (рис. 2б в работе [1]) конкретной частоты.

В нашем втором сценарии мы предполагаем, что существуют два фермионных кармана в зоне Брилюэна, обозначенные как 1 и 2, каждый из которых описывается гамильтонианом ур. (1) и каждый гибридизуется при низких температурах. Первый карман имеет параметры  $\alpha_1$ ,  $\mu_1$  и  $\theta_1$ , выбранные в режиме тяжелого фермиона, а второй  $\alpha_2 = 0$  (или  $\alpha < 0$ ),  $\mu_2$  и  $\theta_2$ , т.е. описываемые моделью, которая не имеет гибрида тяжелых фермионов и, следовательно, не имеет гигантского пика. Тогда можно предположить, что каким-то образом произошло совпадение  $\mu_1 + \frac{\theta_1}{\sqrt{\alpha_1}} \approx \mu_2$ , при котором осцилляции при высоких температурах на рис. 2 имеют частоту, равную  $\mu_2$ , а гигантский пик возникает от осцилляций с частотой, равной  $\mu_1 + \frac{\theta_1}{\sqrt{\alpha_1}}$ . Первые три самые низкие частоты, показанные на рис. 2а в работе [2], дают основания полагать, что этот сценарий вполне может быть реалистичным. В частности, либо частота  $F_1^{\text{exp}} = 50$  Тл, либо  $F_2^{\text{exp}} = 170$  Тл отвечает значению  $\mu_1$ , а частота  $F_3^{\text{exp}} = 330$  Тл отвечает как  $\mu_1 + \frac{\theta_1}{\sqrt{\alpha_1}}$ , так и  $\mu_2$ .

Проверим теперь, существуют ли квантовые осцилляции с обратной температурой, предложенные в

[10]. Посмотрим на рис. 4 в работе [2] и предположим, что небольшой пик, возникающий при  $T^* \approx 8$  К совпадает с предсказанным в [10] положением наибольшего пика, определенного по формуле  $T_{\text{peak}} = \frac{\theta_0}{\pi}$ . Сделав это, мы можем извлечь значение параметра гибридизации, равного  $2\theta_0 = 2\pi T^* \approx 48$  К, что согласуется с энергетической целью равной 40 К, определенной из поведения активированной электропроводимости, наблюдавшегося экспериментально [2]. Более того, используя это значение и используя условие  $2F_1 = F_2$ , которое читается как  $\mu = \frac{\theta_0}{\sqrt{\alpha}}$ , мы можем оценить параметр тяжести  $f$ -фермионов  $\alpha$  в нашей модели, который получается  $\alpha = \frac{\theta_0^2}{\mu^2} = \frac{24^2}{330^2} \approx \approx 0.005 = \frac{1}{200}$ . Наконец, мы можем оценить температуру  $T_g$ , при которой гигантский температурный пик начинает расти, установив  $T_{m=0}^2 - (\beta^2 - 1) b^2 = 0$ , что читается как  $T = \frac{\sqrt{\alpha}}{\pi} \theta_0$ , получаем  $T_g \approx 0.5$  К. Это число хорошо согласуется с рис. 4 в [2].

Область, в которой квантовые осцилляции как функция от температуры были предсказаны автором в [10], требует детального экспериментального сканирования, чтобы подтвердить, что небольшие пики, наблюдаемые на рис. 4 [2] при  $T \approx 8$  К и  $T \approx 5$  К – это не просто отклонения в пределах погрешности, а скорее уникальные физические особенности. Подчеркнем, что осцилляции как функция температуры гарантированы, если наблюдается гигантский низкотемпературный пик.

Мы утверждаем, что образцы SmB<sub>6</sub> в экспериментах [2] являются не изоляторами, а скорее системами с тяжелым фермионом на уровне Ферми. Хотя гибридизация между электронами проводимости  $d$ -электронами и локализованными  $f$ -электронами происходит при температуре перехода и в системе, по-видимому, образуется энергетическая щель  $d$ -электронов на энергии Ферми, возможная небольшая электроноподобная дисперсия  $f$ -электронов приводит к образованию тяжелого фермионного гибрида  $d-f$  с большой поверхности Ферми. Этот гибрид никогда не имеет щелей и, следовательно, является металлическим. Вполне вероятно, что наблюдаемое насыщение электросопротивления в SmB<sub>6</sub> при очень низкой температуре обусловлено остаточным сопротивлением этого тяжелофермионного  $d-f$ -гибрида. Если это так, то это исключает предположение [13] о том, что SmB<sub>6</sub> является топологическим изолятором. Поэтому, поскольку наша теория предполагает существование  $d-f$ -гибрида тяжелых фермионов на уровне Ферми, который становится видимым в осцилляциях дГвА при очень низких температурах, мы полагаем, что можно наблюдать и осцилля-

ции Шубникова–де Гааза с частотой  $F_2 = \mu + \sqrt{\frac{\theta\theta}{|\alpha|}}$  на этих низких температурах, несмотря на большое электрическое сопротивление.

Мы отмечаем, что существует теоретическое предложение [14], в котором утверждается, что SmB<sub>6</sub> может быть изолятороподобным металлом. В работе [14] был изучен гамильтониан, который представляет собой ур. (1), но с  $\alpha = 0$  и энергией Ферми, установленной на дне зоны проводимости (небольшое легирование). Заметим, что модель, изученная в настоящей работе, всегда является металлической с тяжелым фермионным  $d-f$ -гибридом на энергии Ферми.

Покажем теперь, как система может быть металлической, не топологическим изолятором, но тем не менее иметь краевые состояния. Наш выбор теоретической модели мотивирован оригинальными работами по краевым состояниям в металлических системах [15–17] и топологических изоляторах [18, 19]. Например, из [17] мы знаем, что в двумерном электронном газе со спин-орбитальным взаимодействием Рашбы будут краевые состояния. Чтобы сопоставить систему из работы [17] с нашей системой, мы должны потребовать, чтобы параметр гибридизации был нечетным по импульсу. Предположим, мы нашли такое взаимодействие между  $d$ - и  $f$ -фермионами, которое стабилизирует гибридизационную щель с  $\theta_{\mathbf{k}} = -\theta_{-\mathbf{k}}$  симметрией. Тогда наш минимальный модельный гамильтониан равен

$$H_C = \int_{\mathbf{r}} \bar{\psi}(\mathbf{r}) \begin{bmatrix} \hat{\xi}_{\mathbf{k}} & \theta(\hat{k}_x + i\hat{k}_y) \\ \bar{\theta}(\hat{k}_x - i\hat{k}_y) & \alpha\hat{\xi}_{\mathbf{k}} \end{bmatrix} \psi(\mathbf{r}), \quad (10)$$

где  $\theta_{\mathbf{k}} = \theta(\hat{k}_x + i\hat{k}_y)$ , шляпки обозначают операторы, а базис теперь содержит спин  $\bar{\psi}_{\mathbf{k}} = (\bar{\psi}_{d,\uparrow}, \bar{\psi}_{f,\downarrow})$  (существует независимый и аналогичный гамильтониан для базиса противоположных спинов). Заметим, что при  $\alpha = -1$  модель соответствует модели топологических изоляторов Волкова–Панкратова [18, 19], тогда как  $\alpha = 1$  соответствует двумерному электронному газу со спин-орбитальным взаимодействием Рашбы, краевые состояния которых изучались в [17]. Спектр объемных фермионов равен

$$\epsilon_{\mathbf{k};\pm} = \frac{1+\alpha}{2}\xi_{\mathbf{k}} \pm \sqrt{\left(\frac{1-\alpha}{2}\xi_{\mathbf{k}}\right)^2 + \bar{\theta}\theta k^2}, \quad (11)$$

и мы показываем его на правом графике рис. 1. Если химический потенциал положить равным нулю, то обе зоны  $\epsilon_{\mathbf{k};\pm}$  заняты. На правом графике рис. 1 небольшой карман (синий) соответствует полосе  $\epsilon_{\mathbf{k};+}$ . Спиноры

$$\psi_{\pm;\mathbf{k}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} \pm \frac{\sin \zeta_{\mathbf{k}}}{\sqrt{1 \pm \cos \zeta_{\mathbf{k}}}} e^{i\chi_{\mathbf{k}}} \\ \sqrt{1 \pm \cos \zeta_{\mathbf{k}}} \end{bmatrix}, \quad (12)$$

где  $\chi_{\mathbf{k}} = \arctan\left(\frac{k_y}{k_x}\right)$ , и который нечетен либо по  $k_x$ , или по  $k_y$ , и  $\cos(\zeta_{\mathbf{k}}) = \frac{1-\alpha}{2}\xi_{\mathbf{k}} \left[ \sqrt{\left(\frac{1-\alpha}{2}\xi_{\mathbf{k}}\right)^2 + \bar{\theta}\theta k^2} \right]^{-1}$ . Будем описывать границу системы стенкой с бесконечным потенциалом в точке  $x = 0$  и предположим наличие свободного пространства в области  $x > 0$ . Граничные условия выглядят как  $\psi(x = 0, y) = 0$ . Поэтому спиноры  $+$  и  $-$  перемешиваются, чтобы удовлетворить граничному условию, поскольку  $\chi_{k_x;k_y} = -\chi_{-k_x;k_y}$ .

Мы определяем

$$\zeta = 1 - \frac{2}{1 + \sqrt{1 + \frac{2\alpha\mu}{m\theta\theta}}} > 0, \quad (13)$$

который появляется в качестве параметра в нашем анализе. Можно показать, что при  $k_y^2 < \zeta 2m\mu$  краевые состояний нет. Плоские волны обеих подзон  $\epsilon_{\mathbf{k};\pm}$  рассеиваются от границы. При  $k_y^2 > \zeta 2m\mu$  возникают краевые состояния, возникающие из зоны  $\epsilon_{\mathbf{k};+}$ , которые затухают от границы как  $\psi_{+,k_y}(\mathbf{r}) \propto e^{-\sqrt{k_y^2 - \zeta 2m\mu}x} e^{ik_y y}$ . Отметим, что краевые состояния также будут присутствовать, если наша минимальная модель ур. (10) будет обобщена на более чем две подзоны при условии, что нечетность параметра гибридизационного по импульсу сохраняется.

В заключение мы предложили теоретическую модель, представленную в ур. (1), чтобы сделать попытку объяснить гигантский температурный пик амплитуды осцилляций дГвА, экспериментально наблюдаемый в материале SmB<sub>6</sub> при очень низких температурах [2]. Главный вывод, полученный из нашей модели, заключается в том, что система никогда не является по-настоящему изолирующей, а скорее металлической с тяжелым фермионным гибридом  $d-f$  при энергии Ферми, который может казаться изолирующим из-за своей большой массы. На рисунке 2 мы действительно получаем гигантский температурный пик, связанный с осцилляциями этого тяжелого фермионного  $d-f$ -гибрида. Слабость модели заключается в том, что, как показано на рис. 2, высокотемпературный хвост и гигантский температурный пик соответствуют колебаниям с двумя разными частотами:  $F_1$  и  $F_2$  соответственно. В нашей модели их невозможно сделать строго одинаковыми. Мы предположили, что либо  $F_2 \approx 2F_1$ , либо имеет место совпадение частот из разных ферми-карманов. В [1, 2] есть экспериментальные данные, подтверждающие

эти две гипотезы. Есть предположение, что является материал SmB<sub>6</sub> является топологическим изолятором. Мы предложили сценарий, описываемый гамiltonианом ур. (10), когда тяжелый фермионный  $d-f$ -гибрид, будучи металлическим, имеет краевые состояния.

Автор благодарит И. С. Бурмистрова, А. М. Финкельштейна, М. М. Глазова, П. Д. Григорьева, А. Каменева, Д. Г. Яковлеву и А. Ю. Зюзина за полезные обсуждения. Автор благодарен Пиринемской школе теоретической физики.

**Финансирование работы.** Работа была поддержанна Фондом развития теоретической физики и математики БАЗИС.

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

1. G. Li, Z. Xiang, F. Yu, T. Asaba et al. (Collaboration), *Science* **346**, 1208 (2014).
2. B. S. Tan, Y.-T. Hsu, B. Zeng et al. (Collaboration), *Science* **349**, 287 (2015).
3. I. M. Lifshitz and A. M. Kosevich, Sov. Phys. JETP **2**, 636 (1956).
4. E. M. Lifshits and L. P. Pitaevskii, *Statistical Physics, Part 2: Course of Theoretical Physics – Vol. 9*, Pergamon Press, Exeter (1980).
5. J. Knolle and N. R. Cooper, Phys. Rev. Lett. **115**, 146401 (2015).
6. L. Zhang, X.-Y. Song, and F. Wang, Phys. Rev. Lett. **116**, 046404 (2016).
7. Z. Z. Alisultanov, JETP Lett. **104**, 187 (2016).
8. H. K. Pal, F. Piechon, J.-N. Fuchs, M. Goerbig, and G. Montambaux, Phys. Rev. B **94**, 125140 (2016).
9. G. Singh and H. Pal, Phys. Rev. B **108**, L201103 (2023).
10. V. A. Zyuzin, Phys. Rev. B **109**, 235111 (2024).
11. A. Allocca and N. Cooper, SciPost Phys. **12**, 123 (2022).
12. L. V. Keldysh and Yu. V. Kopaev, Soviet Physics – Solid State. **6**, 2219 (1965).
13. M. Dzero, K. Sun, V. Galitski, and P. Coleman, Phys. Rev. Lett. **104**, 106408 (2010).
14. H. K. Pal, Phys. Rev. B **99**, 045149 (2019).
15. M. I. Dyakonov and A. V. Khaetskii, JETP Lett. **33**, 115 (1981).
16. T. D. Stanescu and V. Galitski, Phys. Rev. B **74**, 205331 (2006).
17. V. A. Zyuzin, P. G. Silvestrov, and E. G. Mishchenko, Phys. Rev. Lett. **99**, 106601 (2007).
18. B. A. Volkov and O. A. Pankratov, Pis'ma ZhETF **42**, 145 (1985) [JETP Lett. **42**, 178 (1985)].
19. O. A. Pankratov, S. V. Pakhomov, and B. A. Volkov, Solid State Commun. **61**, 93 (1987).

# Photonics of two-dimensional structures formed by cholesteric liquid crystals

P. V. Dolganov<sup>++1)</sup>, K. D. Baklanova<sup>++\*</sup>, V. K. Dolganov<sup>+</sup>, E. I. Kats<sup>×</sup>

<sup>+</sup>Osipyan Institute of Solid State Physics, Russian Academy of Sciences, 142432 Chernogolovka, Russia

<sup>\*</sup>National Research University Higher School of Economics, 101000 Moscow, Russia

<sup>×</sup>Landau Institute for Theoretical Physics, Russian Academy of Sciences, 142432 Chernogolovka, Russia

Submitted 10 October 2024

Resubmitted 10 October 2024

Accepted 13 October 2024

Chiral liquid crystal materials can self-organize into modulated structures with multilevel arrangement formed by curved cholesteric helices and spatially ordered defects. We managed to prepare periodic two-dimensional cholesteric domains with remarkable structure and photonic properties. They are formed due to geometrical frustration. Complex optical patterns with non-trivial dependence of the images on light polarization and on observation geometry were found and investigated in transmission and reflection. The obtained photonic structures of two-dimensional ordered confocal domains and their optical properties are a challenge both for theory and experiment.

DOI: 10.31857/S0370274X24110226, EDN: NWTOSF

Investigations of defects constitute an important part of the studies of different materials, including liquid crystals [1–9]. Focal conic domains are peculiar types of defects observed in thin films or near surfaces in smectic and cholesteric liquid crystals [1–3]. Investigations of focal conic structures date back to the seminal works of Friedel [10, 11]. Rosenblatt et al. [12] proposed the structure from parabolic defects to explain experimental observations of periodic defect pattern. In spite of numerous investigations the nature of focal conic domains and periodic patterns in cholesterics and their relation to optical properties are not completely clear. One of the reasons is that investigations of these structures are often performed on unordered samples.

In a recent work [13] we found two-dimensional (2D) periodic photonic structure which can be related to ordered focal conic domains in planar optical cells. They spontaneously appeared near the cholesteric–isotropic phase transition. In this paper the peculiarities of photonic properties and structures in mixtures composed by various liquid crystal ingredients and chiral dopants are studied. We pay special attention to the dependence of the optical pattern on polarization of light and analyze similarities of the structure in different materials.

The 2D photonic structures obtained and studied in our work are structures with multilevel ordering where the building blocks are not atoms or molecules but one-

dimensional cholesteric photonic crystals. Their spatial ordering gives rise to structures of higher level both with respect to complexity and functional possibilities. We investigated photonic properties of the periodic 2D structure in optical cells using cholesteric with different pitch value, materials composed by different nematic hosts and chiral dopants. A regularly arranged system of domains appeared on slow heating (typically at a rate about  $0.1^\circ/\text{min}$ ) near the transition to the isotropic phase. The domains are stable near the cholesteric–isotropic transition and metastable at low temperature (far from the transition). Wonderful images revealing nontrivial structure and properties were obtained in reflection and transmission. Figure 1 shows photographs of a region of the 2D structure in mixture of nematic liquid crystal E7 and chiral compound CB15 ( $\sim 40\%$  wt) in transmission with a single polarizer along  $x$  axis (Fig. 1a), between parallel polarizer and analyzer (Fig. 1b) and between crossed polarizer and analyzer (Fig. 1c). The images of the same region in reflected light are given in Fig. 1d, e.

The existence of complementary structures near the two surfaces of the cell was demonstrated by circular polarized light. We found that polarization of light transmitted through the sample substantially varies from region to region. We relate complex optical patterns observed in transmission to selective reflection and rotation of the plane of polarization of light. Our measurements allow to describe polarization state of transmis-

<sup>1)</sup>e-mail: pauldol@issp.ac.ru

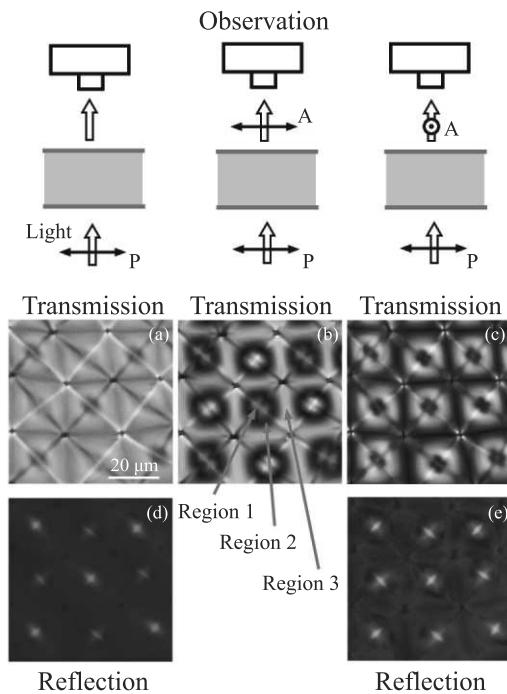


Fig. 1. (Color online) Periodic texture with square ordering viewed in transmission in linear polarized incident light (a)–(c). The photographs were taken with a single polarizer parallel to  $x$  axis (a), between parallel polarizer and analyzer (b) and with crossed polarizer and analyzer (c). The polarization of light passing through regions 1, 2 and 3 is substantially different at the exit of the sample, as indicated by the images with parallel and crossed polarizer and analyzer (b), (c). Frames (d) and (e) show images of the structure in reflected light with one polarizer along  $x$  axis and with crossed polarizer and analyzer. Rubbing direction on the cell surfaces is close to horizontal

sion modes in the whole unit cell of the structure. The domain structure is an interesting example of photonic crystal with square ordering in the plane of the film. We may state that the intrinsic properties of the periodic 2D domain structure are determined by chirality in confined geometry. Up to now there are only several publications about optical and spectral properties of the 2D domain structure. It is found that the structure is formed near the cholesteric–isotropic phase transition and by mate-

rials with reflection in visible and near infrared spectral ranges. We observed the periodic structure in a number of compounds with the cholesteric phase. In mixtures composed by different ingredients but with a close value of the helical pitch the structure and its optical properties are similar. We can conclude that the observed peculiarities have general character. Further investigations will show which additional conditions are necessary for the formation of the 2D domain structure.

**Funding.** This work was supported by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (state contract with the Institute of Solid State Physics, Russian Academy of Sciences).

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

1. M. Kleman and O.D. Lavrentovich, *Soft Matter Physics: An Introduction*, Springer, N.Y. (2003).
2. P. Oswald and P. Pieranski, *Nematic and Cholesteric Liquid Crystals: Concepts and Physical Properties Illustrated by Experiments*, Taylor and Francis, Boca Raton (2005).
3. I. Dierking, *Textures of liquid crystals*, WILEY-VCH, Weinheim (2003).
4. N. D. Mermin, Rev. Mod. Phys. **51**, 591 (1979).
5. R. Mosseri, Comptes Rendus Chimie **11**, 192 (2008).
6. A. Fert, N. Reyren, and V. Cros, Nat. Rev. Mater. **2**, 17031 (2017).
7. S. A. Shvetsov, V. Yu. Rudyak, A. A. Gruzdenko, and A. V. Emelyanenko, J. Mol. Liq. **319**, 114149 (2020).
8. M. N. Krakhalev, A. P. Gardymova, V. Yu. Rudyak, V. A. Barashov, and V. Ya. Zyryanov, J. Mol. Liq. **385**, 122379 (2023).
9. I. S. Lobanov and V. M. Uzdin, JETP Lett. **119**, 768 (2024).
10. G. Friedel and F. Grandjean, Bull. Soc. Fr. Miner. Cristallogr. **33**, 409 (1910).
11. G. Friedel, Ann. Phys. **18**, 273 (1922).
12. Ch. S. Rosenblatt, R. Pindak, N. A. Clark, and R. B. Meyer, Journal de Physique **38**, 1105 (1977).
13. P. V. Dolganov, K. D. Baklanova, and V. K. Dolganov, Phys. Rev. E **106**, 014703 (2022).

# Компенсация влияния несовершенства структуры Нуклotronа/ОИЯИ на поляризацию протонов в области целого спинового резонанса (Миниобзор)

Ю. Н. Филатов<sup>+∇1)</sup>, А. М. Кондратенко<sup>++\*</sup>, Н. Н. Николаев<sup>+×∇</sup>, Ю. В. Сеничев<sup>+○</sup>,  
М. А. Кондратенко<sup>++\*</sup>, С. В. Виноградов<sup>+</sup>, Е. Д. Цыплаков<sup>+</sup>, А. И. Чернышов<sup>+○</sup>, А. В. Бутенко<sup>∇</sup>,  
С. А. Костромин<sup>∇</sup>, В. П. Ладыгин<sup>∇</sup>, Е. М. Сыресин<sup>∇</sup>, Е. А. Бутенко<sup>∇</sup>, И. Л. Гурылева<sup>+∇</sup>,  
А. А. Мельников<sup>+○×</sup>, А. Е. Аксентьев<sup>+</sup>

<sup>+</sup> Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

<sup>\*</sup> Научно-техническая лаборатория “Заряд”, 630090 Новосибирск, Россия

<sup>×</sup> Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия

<sup>○</sup> Институт ядерных исследований РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

<sup>∇</sup> Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

Поступила в редакцию 19 сентября 2024 г.

После переработки 27 сентября 2024 г.

Принята к публикации 28 сентября 2024 г.

В управлении спинами сталкивающихся пучков, которое является ключевым аспектом для работы коллайдеров поляризованных частиц NICA (ОИЯИ, Дубна, Россия) и EIC (BNL, Брукхейвен, США), есть открытые вопросы. Единственно реалистичный для управления поляризацией дейtronов режим спиновой прозрачности все еще не апробирован экспериментально. При существующей конфигурации ускорительных колец в ОИЯИ пилотный эксперимент по спиновой прозрачности возможен с протонами на синхротроне Нуклotron на целом спиновом резонансе. Анализируется динамика поляризации протонов при быстром пересечении целого резонанса с управляющими спиновыми навигаторами на основе штатных корректирующих орбит диполей. Разработана схема компенсации когерентного влияния на спин ошибок установки и изготовления магнитных элементов структуры Нуклotronа, основанная на измерении спинового поля несовершенства структуры по адиабатическому отклонению спинов в области резонанса с учетом синхротронной модуляции энергии. Компенсация мощности целых резонансов возможна вплоть до ограничений, связанных с орбитальными эмиттансами пучка. Результаты проведенного численного моделирования предлагаемого спинового компенсатора подтверждают возможность экспериментальной верификации режима спиновой прозрачности в присутствии сильного искажения замкнутой орбиты несовершенством структуры Нуклotronа.

DOI: 10.31857/S0370274X24110233, EDN: SLKPVJ

**Введение.** В Объединенном институте ядерных исследований (ОИЯИ, г. Дубна) вводится в эксплуатацию ускорительный комплекс NICA (Nuclotron-based Ion Collider fAcility). Если первая стадия работы NICA в режиме коллайдера релятивистских ядер будет посвящена изучению в детекторе MPD (Multi-Purpose Detector) [1, 2] ядерной материи в области кирального фазового перехода, то во второй стадии столкновений поляризованных частиц в детекторе SPD (Spin Physics Detector) [3–5] ключевой

задачей становится управление поляризацией накаленных пучков. Задача управления спином остается ключевой и в аспекте расширения программы спиновой физики в область фундаментальных симметрий [6]: поиска ЭДМ протонов и дейtronов как возможного ключа к загадке барионной асимметрии Вселенной [7–9], поиска аксионов [10–12] и аксионоподобных частиц как вероятного кандидата на темную материю во Вселенной [6, 7, 13–17], проверки Стандартной Модели по несохранению четности при высоких и промежуточных энергиях [18, 5].

<sup>1)</sup>e-mail: filatov.iun@mipt.ru

В настоящее время в лаборатории BNL (Брукхейвен, США) идет активная работа по созданию электрон-ионного коллайдера EIC (Electron Ion Collider) [19]. Ионное кольцо будет реализовано на базе существующего кольца коллайдера RHIC (Relativistic Heavy Ion Collider), который позволяет проводить эксперименты с поляризованными пучками протонов [20]. Для сохранения поляризации в диапазоне энергий до 255 ГэВ в RHIC используются две сибирские змееки, реализованные на спиральных магнитах [21], расположенных в противоположных промежутках коллайдера. Каждая из змеек поворачивает спины на  $180^\circ$  вокруг направлений, лежащих в плоскости коллайдера и составляющих углы со скоростью  $+45^\circ$  и  $-45^\circ$ , что обеспечивает значение спиновой частоты равным половине для любой энергии. Устойчивая поляризация направлена вдоль вертикали в арках коллайдера и меняет знак после прохождения каждой змееки. Продольная поляризация обеспечивается с помощью двух спиновых ротаторов на спиральных магнитах, расположенных с обоих сторон детектора: первый поворачивает поляризацию из вертикального в продольное направление, а второй возвращает поляризацию обратно в вертикальное направление. Характерный интеграл поля для каждого ротатора или каждой змееки составляет около 25 Тл·м. Особую роль при проведении спиновых исследований в EIC играют поляризованные дейtronы и ядра гелий-3, так как они открывают возможность проведения экспериментов с поляризованными нейтронами. Для управления поляризацией ядрами гелий-3 можно использовать схему управления с двумя спиральными змееками. Однако для дейtronов, из-за малого значения гиромагнитного отношения, схема со змееками не применима, так как для змеек потребуется интеграл поперечного поля на два порядка больший, чем для протонов. В работе [22] рассматривалась возможность получения вертикальной поляризации дейtronов во всем диапазоне энергий RHIC, за исключением дискретных значений энергий, соответствующих целым спиновым резонансам, поляризация которых стабилизировалась с помощью частичных сибирских змеек.

Новая концепция управления вектором поляризации пучков адронов – режим спиновой прозрачности (ST-режим) – позволяет реализовать в коллайдерах контроль направления поляризации любого sorta частиц, в том числе и дейtronов [23–25]. В этом режиме полностью компенсируется действие структурных элементов магнитной системы ускорителя на спин при движении частицы по дизайн-орбите. В ST-

режиме управление поляризацией осуществляется с помощью специальных спиновых ротаторов на базе слабых магнитных полей – спиновых навигаторов [26–28]. Требуемый интеграл магнитных полей спиновых навигаторов как минимум на два порядка меньше, чем для спиновых ротаторов, использующихся в RHIC.

Впервые идея спиновой прозрачности была сформулирована в работе для управления поляризацией протонов и дейtronов в кольцах формы “восьмь” [23]. Далее идеи спиновой прозрачности были расширены и на традиционные коллайдеры формы “рейстerek”. Установка двух идентичных сибирских змеек в противоположные промежутки традиционного коллайдера обеспечивает ST-режим во всем диапазоне энергий [29]. Для реализации столкновений поляризованных пучков протонов и дейtronов в комплексе NICA планируется использовать ST-режим с двумя соленоидальными змееками [30].

ST-режим может быть реализован и без использования сибирских змеек в традиционных коллайдерах на дискретных значениях энергий, соответствующих целым спиновым резонансам [31]. Манипуляция направлением поляризации дейtronов во время проведения эксперимента в традиционных кольцах в ST-режиме на целых резонансах является реалистичным сценарием как для существующего коллайдера RHIC (EIC), так и для строящегося коллайдера NICA. Более того, использование соленоидальных змеек позволит проводить исследования с поляризованными дейtronами в непрерывном диапазоне энергий NICA.

Для проведения высокоточных экспериментов с поляризованными пучками необходима разработка системы многократных переворотов спинов (системы спин-флипа) без существенной потери степени поляризации, которая позволяет значительно уменьшить систематические ошибки в поляризационных экспериментах. В коллайдере RHIC система спин-флипа основана на пересечении спинового резонанса, индуцированного высокочастотным (ВЧ) полем. Пересечение резонанса осуществляется за большое число оборотов путем адиабатического изменения частоты ВЧ-поля. Эффективность спин-флипа протонов в этом случае составила около 97 % в диапазоне энергий до 255 ГэВ [32]. Особенностью такого метода является то, что при каждом пересечении индуцированного ВЧ-резонанса происходит заметная деполяризация пучка на уровне нескольких процентов, что ограничивает максимальное число переворотов спина за время проведения эксперимента. В коллайдере NICA система спин-флипа будет реализована на

базе спинового навигатора, который позволяет поддерживать постоянной спиновую частоту в процессе адиабатической перестройки спинового движения, что исключает резонансную деполяризацию во время манипуляций с направлениями спинов [33].

Запланированный к использованию в комплексе NICA режим спиновой прозрачности требует экспериментальной верификации. При существующей конфигурации колец комплекса NICA такая верификация может быть выполнена в действующем синхротроне Нуклotron, в котором можно организовать ST-режим на целом резонансе (ST-резонансе) для пучка протонов [31].

Для Нуклотрона навигатор на базе двух слабых соленоидов был представлен в работе [33]. Из-за дефицита свободного места в Нуклotronе был предложен альтернативный спиновый навигатор на основе штатных корректирующих диполей [34]. В отличие от традиционных спиновых ротаторов, в которых локализуется отклонение замкнутой орбиты на участке вставки поперечных полей, в предложенном спиновом навигаторе отклонение замкнутой орбиты, индуцируемое штатным корректором, оставляют вдоль всего кольца синхротрона. В результате спины частиц, кроме прямого действия участка с радиальным полем в корректоре, будут также испытывать дополнительное действие, вызванное возникающими радиальными полями в квадруполях при движении частицы вдоль отклоненной замкнутой орбиты. Появляется возможность организовать когерентное сложение действия радиальных полей в квадруполях, приводящее к интерференционному усилинию действия корректирующих диполей на спин.

Интерференционное усиление увеличивается с ростом энергии. Поэтому для проведения пилотного эксперимента с корректирующими диполями целесообразно выбрать целый резонанс, соответствующий максимальной границе диапазона импульсов, в котором решена проблема сохранения поляризации протонов. В структуре Нуклотрона, с числом суперпериодов  $N = 8$ , при выборе вертикальной нормализованной бетатронной частоты (в единицах частоты обращения частицы) в диапазоне  $7 < \nu_y < 8$  максимальное значение целого резонанса равно  $\gamma G = 7$  (здесь  $G$  – аномальная часть гиромагнитного отношения,  $\gamma$  – релятивистский фактор), при котором в процессе ускорения протонов до импульса  $3.54 \text{ ГэВ}/c$  внутренние резонансы пересекаться не будут [35]. В указанном диапазоне импульсов поляризация при ускорении протонов может быть сохранена с помощью штатных корректирующих диполей и слабого продольного поля с интегралом  $\sim 50 \text{ мТл} \cdot \text{м}$  [36].

В работе [37] была предложена система спин-флипа протонов в Нуклotronе на резонансе  $\gamma G = 7$ , которая может быть экспериментально проверена. Навигаторная частота (сила навигатора) задавалась посредством контролируемого отклонения замкнутой орбиты штатными корректирующими диполями, не превышающим 10 мм. При этом полагалось, что действие навигатора на спин значительно превышает действие несовершенства структуры. Отклонение орбиты, индуцированное навигатором, было значительно больше искажения замкнутой орбиты, вызванного неточностью установки и исполнения магнитных элементов Нуклотрона, которое не превышало 1 мм.

Из-за строительства и ввода в эксплуатацию коллайдера NICA в настоящее время искажение замкнутой орбиты составляет не несколько миллиметров, как полагалось при проектировании спинового навигатора в работе [37], а достигает значений в несколько сантиметров. В этой связи необходимо расширить возможности системы управления поляризацией на случай, когда искажение орбиты становится сравнимым с ее отклонением, вызываемым навигаторными корректорами. Для этих целей представляется возможным использовать идею компенсации когерентного воздействия на спины несовершенства структуры с помощью слабых магнитных полей, предложенную в работе [34]. Последующее изложение посвящено новым идеям в решении этой актуальной задачи. В развитие идей предыдущих работ [37, 34], посвященных возможности проведения пилотного эксперимента по проверке ST-режима в Нуклotronе, далее излагаются оригинальные результаты по контролю поляризации разработанным на основе штатных корректирующих диполей навигатором, действие которого на спины сравнимо с действием ST-резонанса.

**Спиновая динамика в области ST-резонанса.** В реальной структуре динамика спина в области ST-резонанса представляет собой вращение вокруг итогового поля  $\omega_{\text{tot}}$ , являющегося суммой полей навигатора и ST-резонанса [25, 34]:

$$\omega_{\text{tot}} = \mathbf{h}_{\text{nav}} + \boldsymbol{\omega}. \quad (1)$$

Навигаторное поле  $\mathbf{h}_{\text{nav}}$  описывает динамику спина при движении частицы вдоль замкнутой орбиты, индуцированной поперечными магнитными полями навигатора. Учет влияния на спин дополнительных полей, вызванных несовершенством структуры и бетатронными колебаниями пучка, описывается полем ST-резонанса:

$$\boldsymbol{\omega} = \boldsymbol{\omega}_{\text{coh}} + \boldsymbol{\omega}_{\text{emit}}. \quad (2)$$

Когерентная часть поля ST-резонанса  $\boldsymbol{\omega}_{\text{coh}}$ , учитывающая когерентное действие на спин ошибок

установки и изготовления магнитных элементов структуры, описывает динамику спина при движении частицы вдоль искаженной этими ошибками замкнутой орбиты. Некогерентная часть  $\omega_{\text{emit}}$ , пропорциональная поперечным эмиттансам пучка, учитывает действие на спин дополнительных магнитных полей, возникающих при движении частиц по орбитам, отклоненным от замкнутой. В Нуклotronе компоненты полей  $\mathbf{h}_{\text{nav}} = (h_x, 0, h_z)$  и  $\omega_{\text{coh}} = (\omega_x, 0, \omega_z)$  лежат в плоскости орбиты ( $xz$ ), а поле  $\omega_{\text{emit}} = (0, \omega_y, 0)$  направлено по вертикали. Навигаторное поле задает нормализованную частоту (в единицах частоты обращения частицы) и ось навигатора:

$$\nu_{\text{nav}} = |\mathbf{h}_{\text{nav}}|, \quad \mathbf{n} = \mathbf{h}_{\text{nav}} / |\mathbf{h}_{\text{nav}}|. \quad (3)$$

Здесь и далее по тексту для частот спинового и орбитального движения термин “нормализованная” будет опускаться. Величина поля ST-резонанса определяет мощность резонанса  $\omega$ . Навигатор будет определять спиновую динамику, если

$$\nu_{\text{nav}} \gg \omega. \quad (4)$$

В этом случае спины частиц, направленные вдоль поля навигатора, будут вращаться внутри конуса вокруг его оси (см. рис. 1)

$$\mathbf{n}_{\text{tot}} = \frac{\omega_{\text{tot}}}{|\omega_{\text{tot}}|} \approx \mathbf{n} + \frac{\omega_{\perp}}{\nu_{\text{nav}}}, \quad \omega_{\perp} = \omega - (\omega \cdot \mathbf{n})\mathbf{n}. \quad (5)$$

Малый угол раствора  $\psi$  конуса поляризации определяется поперечной к  $\mathbf{n}$ -оси компонентой поля ST-резонанса  $\omega_{\perp}$ :

$$\psi \approx \omega_{\perp} / \nu_{\text{nav}}. \quad (6)$$

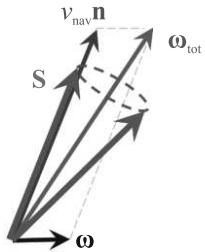


Рис. 1. (Цветной онлайн) Динамика спина в присутствии навигатора и поля ST-резонанса

Спины частиц, направленные вдоль оси навигатора  $\mathbf{n}$ , будут совершать устойчивое периодическое движение. Напротив, движение спинов частиц, направленных поперечно к оси навигатора, будет неустойчивым, так как спины частиц будут размешиваться из-за разброса спиновой частоты  $\omega_{\text{tot}}$ .

В Нуклotronе спиновая частота пропорциональна энергии, что приводит к дополнительным ограничениям на поля спиновых навигаторов из-за синхротронных колебаний, которые расщепляют ST-резонанс на серию сателлитных резонансов [38]. Для того, чтобы спиновый навигатор осуществлял адиабатический захват спинов в области ST-резонанса, помимо условия (4), необходимо выполнить дополнительное условие [31, 33]

$$\nu_{\text{nav}} \gg \max(\nu_{\gamma}, \sigma_{\gamma}), \quad (7)$$

где  $\sigma_{\gamma} = G\Delta\gamma$  – амплитуда синхротронной модуляции спиновой частоты,  $\nu_{\gamma}$  – частота синхротронных колебаний. При этом направление спинового поля незначительно отклоняется от оси навигатора.

**Компенсация когерентной части поля ST-резонанса в Нуклotronе.** Коррекция мощностей целых резонансов с целью их быстрого пересечения при ускорении протонов успешно применялась в 1970-х гг. в синхротронах ZGS и AGS [39, 40]. В AGS коррекция осуществлялась с помощью 96 ВЧ-дипольных корректоров, осциллирующих на частотах, соответствующих резонансам  $\gamma G = k$  с подходящими амплитудами и фазами, которые подбирались в процессе многократных измерений степени поляризации после ускорения пучка. Процесс коррекции оказался трудоемким и впоследствии для минимизации деполяризации при пересечении целых резонансов стала использоваться частичная сибирская змейка, обеспечивавшая их адиабатическое пересечение [41, 42].

С развитием метода спиновой прозрачности для эффективного управления вектором поляризации с помощью предельно малых квазистационарных полей, помимо уменьшения мощностей целых резонансов, возникла задача полной компенсации влияния на спины несовершенств структуры. Полная компенсация такого влияния открывает уникальные возможности по проведению прецизионных экспериментов с поляризованными пучками, таких как поиск электрического дипольного момента [6–9] и поиск аксионоподобных частиц [6, 7, 15, 16].

Идея компенсации мощности ST-резонанса с помощью спиновых компенсаторов на основе слабых стационарных магнитных полей была предложена в работах [34, 43]. После измерения когерентной части поля ST-резонанса спиновый компенсатор по своей сути является навигатором, который индуцирует спиновое поле

$$\mathbf{h}_{\text{comp}} = -\omega_{\text{coh}}. \quad (8)$$

После компенсации спиновое движение будет эквивалентно динамике спинов в идеальной структуре

синхротрона, в котором поле ST-резонанса связано лишь с бетатронными и синхротронными колебаниями пучка. Спиновый компенсатор позволяет расширить область, в которой навигатор будет определять спиновую динамику для случая, когда

$$\nu_{\text{nav}} \sim \omega_{\text{coh}}, \quad \nu_{\text{nav}} \gg \omega_{\text{emit}}. \quad (9)$$

Измерение компонент поля ST-резонанса можно производить различными способами, анализируя проекции вектора поляризации. Например, в работе [34] радиальную и продольную компоненты  $\boldsymbol{\omega}_{\text{coh}}$  предлагалось определить, находясь непосредственно в ST-резонансе, измеряя последовательно радиальные компоненты поляризации при стабилизации навигатором в поляриметре продольных и радиальных осей с противоположными знаками. В настоящее время в ОИЯИ имеющиеся поляриметры позволяют измерять в Нуклotronе только вертикальную поляризацию пучка [44–46], поэтому рассмотрим процедуры определения поля ST-резонанса по измерению вертикальной компоненты спинов.

При отстройке от ST-резонанса на величину  $\varepsilon$  вертикальная компонента поляризации равна [38]

$$P_y = P_\infty \frac{\varepsilon + \omega_{\text{emit}}}{\sqrt{(\varepsilon + \omega_{\text{emit}})^2 + \Omega_\perp^2}}, \quad \varepsilon = \gamma G - k, \quad (10)$$

где  $P_\infty$  – поляризация вдали от ST-резонанса, а  $\Omega_\perp$  задается полем навигатора и когерентной частью поля ST-резонанса

$$\Omega_\perp^2 = |\mathbf{h}_{\text{nav}} + \boldsymbol{\omega}_{\text{coh}}|^2. \quad (11)$$

Измеряя зависимости вертикальной компоненты поляризации  $P_y(\varepsilon)$  в зависимости от отстройки от резонанса при различных направлениях поля навигатора, можно определить компоненты когерентной части поля ST-резонанса. Экспериментально определяя величины  $\Omega_{x+}$ ,  $\Omega_{x-}$  и  $\Omega_{z+}$ ,  $\Omega_{z-}$ , которые соответствуют  $\Omega_\perp$  в формуле (11) при стабилизации навигатором радиального,  $\mathbf{h}_{\text{nav}} = \pm \nu_{\text{nav}} \mathbf{e}_x$ , и продольного,  $\mathbf{h}_{\text{nav}} = \pm \nu_{\text{nav}} \mathbf{e}_z$ , направлений с противоположными знаками, получим соответственно следующие компоненты поля ST-резонанса:

$$\omega_x = \frac{\Omega_{x+}^2 - \Omega_{x-}^2}{4\nu_{\text{nav}}}, \quad \omega_z = \frac{\Omega_{z+}^2 - \Omega_{z-}^2}{4\nu_{\text{nav}}}. \quad (12)$$

При таком определении компонент поля  $\boldsymbol{\omega}_{\text{coh}}$  важно, чтобы в процессе сканирования вертикальной компоненты поляризации выполнялось условие адиабатического движения спинов. С учетом (7) такой подход применим для области, где

$$\omega_{\text{coh}} \gg \max(\nu_\gamma, \sigma_\gamma), \quad \nu_{\text{nav}} \sim \omega_{\text{coh}}. \quad (13)$$

При достаточно точном определении величин  $\Omega_{x+}$ ,  $\Omega_{x-}$  и  $\Omega_{z+}$ ,  $\Omega_{z-}$  область применимости метода можно расширить и на случай, когда условие адиабатического движения спинов обеспечивается навигатором:

$$\omega_{\text{coh}} \sim \max(\nu_\gamma, \sigma_\gamma), \quad \nu_{\text{nav}} \gg \omega_{\text{coh}}. \quad (14)$$

Для малых значений мощности когерентной части ST-резонанса, когда

$$\omega_{\text{coh}} \ll \max(\nu_\gamma, \sigma_\gamma), \quad (15)$$

определение поля  $\boldsymbol{\omega}_{\text{coh}}$  по адиабатическому отклонению поляризации становится нецелесообразным. В этом случае для измерения  $\boldsymbol{\omega}_{\text{coh}}$  более эффективно использовать изменение вертикальной проекции поляризации после быстрого пересечения области ST-резонанса. При пересечении уединенного ST-резонанса с постоянной скоростью  $\varepsilon'$  компоненты вертикальной поляризации до и после пересечения связаны формулой Фруассара–Стора (FS-пересечение) [47]

$$P_y^{\text{after}} = P_y^{\text{before}} \left( -1 + 2 \exp \left( -\frac{\pi \Omega_\perp^2}{2 \varepsilon'} \right) \right), \quad (16)$$

где  $\Omega_\perp$  из формулы (11) учитывает вклад поля навигатора и поля ST-резонанса, а нормализованная скорость пересечения резонанса определяется темпом подъема поля в арочных диполях

$$\varepsilon' = R \frac{d\varepsilon}{dz} = \frac{eGR\rho}{mc^3} \left( \frac{dB}{dt} \right). \quad (17)$$

Здесь  $2\pi R$  – длина дизайн-орбиты,  $z$  – продольная координата вдоль нее, а  $\rho$  – радиус орбиты в арочных диполях.

Формула (16) применима и с учетом синхротронных колебаний энергии в случае быстрого пересечения резонанса при условии

$$\Omega_\perp^2 \ll \varepsilon', \quad (18)$$

когда результат пересечения всех сателлитных резонансов эквивалентен пересечению уединенного резонанса без учета синхротронной модуляции энергии.

На практике удобно использовать быстрое FS-пересечение ST-резонанса, варьируя темп подъема поля, чтобы относительное изменение вертикальной проекции поляризации после пересечения составило 10–30 %. Сначала, можно определить по формуле (16) величину когерентной части ST-резонанса с выключенным навигатором. Направление поля  $\boldsymbol{\omega}_{\text{coh}}$  можно определить по скалярному произведению  $(\boldsymbol{\omega}_{\text{coh}} \cdot \mathbf{h}_{\text{nav}})$ , измерив изменение поляризации

после быстрого FS-пересечения с включенным навигатором с заданным направлением.

В Нуклotronе, при скорости подъема поля около 1 Тл/с, с помощью быстрого FS-пересечения можно измерить когерентную часть поля ST-резонанса с мощностью  $\omega_{coh} < 10^{-3}$ . В оставшемся диапазоне  $\omega_{coh} > 10^{-3}$  измерение поля  $\omega_{coh}$  лучше производить по адиабатическому отклонению вертикальной поляризации в области ST-резонанса.

**Моделирование компенсации мощности резонанса  $\gamma G = 7$ .** Приведем результаты численного моделирования спиновой динамики, выполненные с помощью спин-трекинг кода Zgoubi [48], при компенсации мощности резонанса  $\gamma G = 7$ , когда искажения орбиты, вызванные несовершенствами структуры, значительно превышают отклонение замкнутой орбиты, индуцируемое спиновым навигатором на основе корректирующих диполей.

**Спиновый навигатор.** Спиновый навигатор, использующий дипольные корректоры Нуклотрона, для резонанса  $\gamma G = 7$  был представлен в работе [37]. Корректоры в количестве  $N_{dip}$  штук задают итоговое навигаторное поле [34]:

$$\mathbf{h}_{\text{nav}}(z) = \sum_{i=1}^{N_{\text{dip}}} \mathbf{h}_i(z) = \sum_{i=1}^{N_{\text{dip}}} \nu_i \mathbf{n}_i(z), \quad (19)$$

где вклад в парциальные поля  $\mathbf{h}_i$  от каждого  $i$ -го диполя с радиальным полем  $b_{x,i}$  длиной  $L$ , расположенного в месте с координатой  $z_i$ , определяется периодической спиновой функцией отклика  $\mathbf{F}_x$  для режима спиновой прозрачности [49, 50]:

$$\nu_i = \frac{|\mathbf{F}_x(z_i)| b_{x,i} L}{2\pi B\rho}, \quad \mathbf{n}_i(z) = \sum_{j=1}^3 \frac{F_{xj}(z_i)}{|\mathbf{F}_x(z_i)|} \mathbf{s}_j(z). \quad (20)$$

Здесь  $B\rho$  – магнитная жесткость,  $\mathbf{s}_j$  – единичные орты спиновой системы координат, которые в начале координат совпадают с ортами ускорительной системы [51]. При движении частицы по дизайн-орбите спиновые орты  $\mathbf{s}_j(z)$  воспроизводят динамику спинов, изначально направленных вдоль радиального  $\mathbf{e}_x$ , вертикального  $\mathbf{e}_y$  и продольного  $\mathbf{e}_z$  направлений. Функция отклика, кроме прямого действия на спин радиального поля корректора, учитывает также и дополнительное действие полей, возникающих на отклоненной этим корректором замкнутой орбите.

На рисунке 2 приведены компоненты радиальной функции отклика  $\mathbf{F}_x$  протонов для резонанса  $\gamma G = 7$ . Сплошная красная и пунктирная синяя линии соответствуют радиальной  $F_{x1}$  и продольной  $F_{x3}$  компонентам функции отклика. В Нуклotronе вер-

тикальная компонента функции отклика отсутствует ( $F_{x2} = 0$ ) [34]. Также на рис. 2 показана структура Нуклотрона: зелеными прямоугольниками обозначены арочные диполи. Места расположения корректоров указаны треугольниками под структурой Нуклотрона.

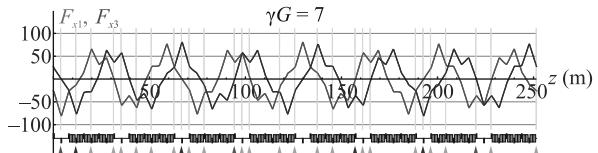


Рис. 2. (Цветной онлайн) Компоненты функции отклика для протонов

Спиновый навигатор в статье [37] был реализован используя 1-й и 9-й корректоры, которые индуцировали соответственно радиальную и продольную компоненты навигаторного поля. При  $\nu_{\text{nav}} = 0.02$  отклонение замкнутой орбиты этими корректорами не превышало значения 10 мм.

В этой работе управление радиальной и продольной компонентами навигаторного поля осуществляется группами корректоров (1-й, 12-й, 26-й) и (2-й, 9-й, 19-й, 23-й), обозначенные соответственно красными и синими треугольниками на рис. 3, что позволяет примерно в два раза сократить отклонение орбиты при  $\nu_{\text{nav}} = 0.02$  (см. рис. 3).

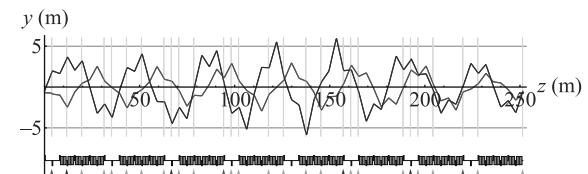


Рис. 3. (Цветной онлайн) Отклонение замкнутой орбиты при стабилизации радиальной и продольной поляризации

В Нуклотроне для  $\gamma G = 7$  при ускоряющем напряжении  $V_{\text{rf}} = 10$  кВ и кратности ускорения  $q = 5$  разброс спиновой частоты  $\sigma_\gamma \approx 1.4 \cdot 10^{-3}$ , а частота синхротронных колебаний  $\nu_\gamma \approx 4.3 \cdot 10^{-4}$  и значения  $\nu_{\text{nav}} = 0.02$  достаточно для обеспечения адиабатического захвата поляризации навигатором в присутствии синхротронной модуляции энергии [37].

**Несовершенства структуры.** Для учета несовершенства структуры Нуклотрона использовалась модель случайных сдвигов квадрупольей в радиальном и вертикальном направлениях, диаграмма которых приведена на рис. 4 при нормальном распределении ошибок со средним квадратичным отклонением  $\sigma_{x,y} = 1.5$  мм.

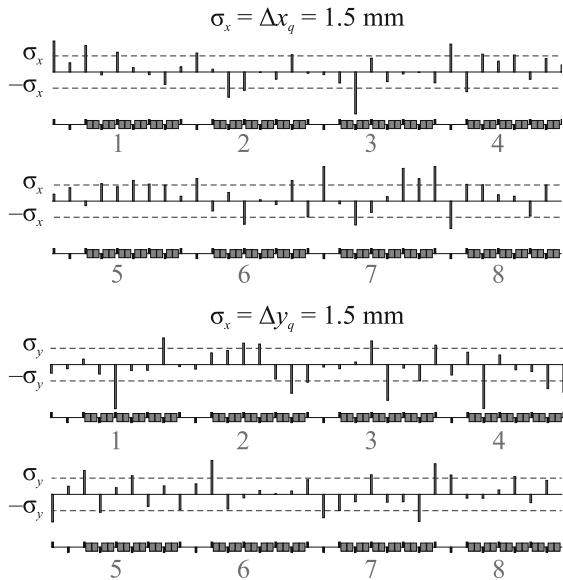


Рис. 4. (Цветной онлайн) Диаграмма ошибок установки квадрупольей

Ошибки установки квадрупольей приводят к искажению замкнутой орбиты, показанному на рис. 5. Среднеквадратичные отклонения  $\sigma_{x,y}$  квадрупольей выбирались таким образом, чтобы максимальное искажение замкнутой орбиты, составляющее примерно 40 мм, было порядка апертурных ограничений в Нуклotronе, что примерно в 10 раз превышает отклонение замкнутой орбиты, вызываемое спиновым навигатором.

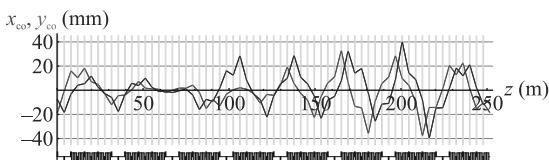


Рис. 5. (Цветной онлайн) Искажения замкнутой орбиты в Нуклotronе из-за случайных сдвигов квадрупольей

**Компенсация мощности резонанса.** В рассматриваемой модели среднеквадратичное искажение замкнутой орбиты составляет порядка 1 см, чему соответствует среднестатистическая мощность резонанса, равная  $\sim 0.03$  для  $\gamma G = 7$  [36]. В этом случае эффективно измерять мощность резонанса по адиабатическому отклонению поляризации в области ST-резонанса. На рисунке 6 приведен результат моделирования сканирования вертикальной компоненты поляризации при адиабатическом изменении  $\gamma G$  (энергии протонов) при стабилизации навигатором частоты  $\nu_{\text{nav}} = 0.015$  в продольном (красные кривые) и радиальном (синие кривые) направлениях. Сплош-

ные кривые соответствуют осям навигатора вдоль направлений  $e_x$  и  $e_z$ , а пунктирные – против. Вдали от резонанса поляризация была направлена по вертикали.

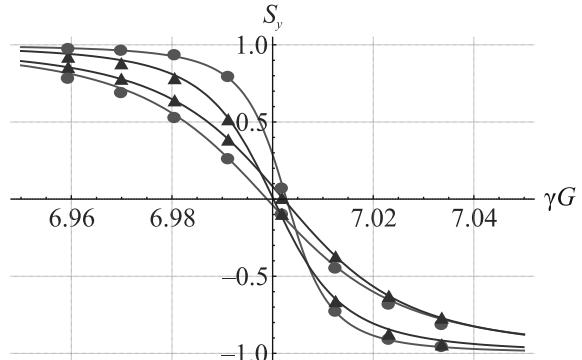


Рис. 6. (Цветной онлайн) Сканирование вертикальной поляризации в области резонанса  $\gamma G = 7$  по энергии

“Экспериментально измеряя” величины

$$\begin{aligned} \Omega_{x+} &\approx 0.0261, & \Omega_{x-} &\approx 0.0140, \\ \Omega_{z+} &\approx 0.0277, & \Omega_{z-} &\approx 0.0093, \end{aligned} \quad (21)$$

получим компоненты поля ST-резонанса

$$\omega_x \approx 0.0081, \quad \omega_z \approx 0.0114, \quad (22)$$

которым соответствует “измеренная” когерентная часть мощности резонанса  $\omega_{\text{coh}} \approx 0.014$ .

При моделировании спиновый компенсатор был реализован на тех же корректорах, что и спиновый навигатор (см. рис. 2). График изменения вертикальной компоненты спина после пересечения резонанса  $\gamma G = 7$  с темпом подъема поля 0.3 Тл/с с включенным спиновым компенсатором приведен на рис. 7, из которого следует, что мощность резонанса уменьшилась примерно в 60 раз и скомпенсировалась до уровня  $\omega_{\text{coh}} \approx 2.2 \cdot 10^{-4}$ . Следует подчеркнуть, что такая значительная компенсация обусловлена достаточно “точным измерением” отклонения поляризации в процессе моделирования. На практике, эффективность компенсации будет определяться погрешностью измерения отклонения спинов поляриметром.

Максимальное отклонение замкнутой орбиты, индуцируемое спиновым компенсатором, не превышает 5 мм (см. рис. 8), что на порядок меньше искажения замкнутой орбиты вызываемого несовершенствами структуры.

Стабилизация навигатором требуемого направления спина в Нуклotronе без компенсации и с компенсацией мощности резонанса  $\gamma G = 7$  показана на

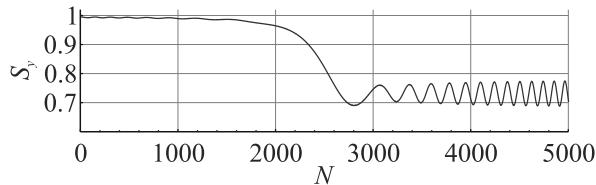


Рис. 7. (Цветной онлайн) Пересечение резонанса  $\gamma G = 7$  после компенсации по адиабатическому отклонению спинов

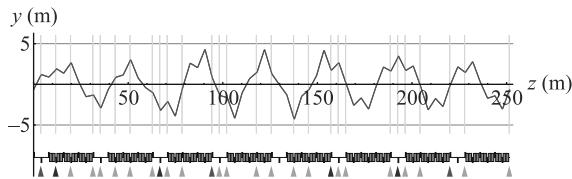


Рис. 8. (Цветной онлайн) Отклонение замкнутой орбиты спиновым компенсатором

рис. 9. В качестве примера была выбрана стабилизация навигатором с частотой  $\nu_{\text{nav}} = 0.02$  радиально-направления поляризации. Без компенсации спин значительно отклоняется от своего изначально радиального направления – действие ошибок установки квадрупольей сравнимо с действием навигатора. После компенсации отклонение спина от радиального направления не превышает 0.2 %.

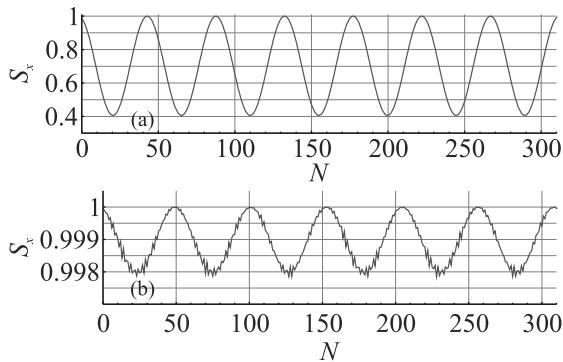


Рис. 9. (Цветной онлайн) Стабилизация радиальной компоненты спина навигатором: (а) – без компенсации мощности резонанса, (б) – с компенсацией

Для проведения прецизионных экспериментов можно провести дальнейшую компенсацию мощности резонанса. По быстрому FS-пересечению, приведенному на рис. 7, определяется лишь остаточная мощность резонанса (абсолютная величина остаточного поля ST-резонанса  $\delta\omega$ ). Направление остаточного поля ST-резонанса можно определить по изменению вертикальной поляризации после быстрого FS-пересечения с навигатором, индуцирующим поле вдоль продольного направления. Численный ана-

лиз показывает, что угол остаточного поля  $\delta\omega$  с направлением скорости составляет примерно  $309^\circ$ , а его компоненты имеют следующие значения:

$$\delta\omega_x \approx 0.00014, \quad \delta\omega_z \approx -0.00017. \quad (23)$$

Для определения мощности резонанса после дополнительной компенсации на рис. 10 приведен график изменения вертикальной компоненты спина после пересечения резонанса  $\gamma G = 7$  с темпом подъема поля 0.3 Тл/с. Спиновый компенсатор индуцирует обратное суммарное поле с компонентами из (22) и (23). В результате мощность резонанса еще уменьшилась примерно в 5 раз и скомпенсировалась до уровня  $\omega_{\text{coh}} \approx 4.6 \cdot 10^{-5}$ .

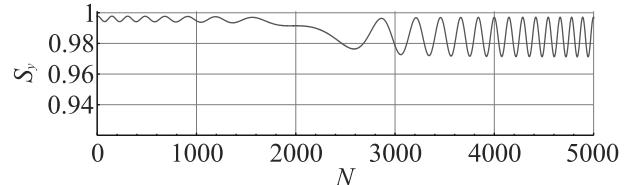


Рис. 10. (Цветной онлайн) Пересечение резонанса  $\gamma G = 7$  после компенсации по быстрому FS-пересечению

После дополнительной компенсации поле ST-резонанса, как и в случае идеальной структуры Нуклotronа, будет определяться лишь бетатронными колебаниями пучка – некогерентной частью мощности резонанса, которая при нормализованных эмиттансах  $\epsilon_{x,y} = 4.5 \cdot \pi \text{ мм мрад}$  примерно равна  $10^{-4}$ .

**Выводы.** Предложена система компенсации когерентного влияния на поляризацию несовершенства структуры Нуклotronа на базе штатных корректирующих диполей, в основе которой лежит измерение не только величины мощности целого резонанса, но и направления спинового поля несовершенства структуры синхротрона. Такая компенсация позволяет провести первые эксперименты по проверке концепции спиновой прозрачности в Нуклotronе в условиях, когда искажения замкнутой орбиты, вызванные ошибками установки и изготовления его магнитных элементов, сравнимы с отклонениями орбиты, вызванными слабыми полями спинового навигатора, который стабилизирует требуемое направление поляризации протонов в детекторе.

Открывается возможность для проведения прецизионных экспериментов. Компенсация мощности целых спиновых резонансов может быть осуществлена вплоть до предельного уровня, когда мощность резонанса определяется лишь орбитальными эмиттансами пучка, что позволит существенно увеличить время спиновой когерентности в режиме спиновой прозрачности. В этой ситуации реальная структура

Нуклонона с ошибками установки и изготовления его магнитных элементов становится эквивалентна идеальной структуре, в которой отсутствуют указанные ошибки.

Предложенная система компенсации несовершенства структуры синхротрона актуальна в ST-режиме на целых резонансах для управления поляризацией протонов и дейtronов в коллайдере NICA [30], а также для управления поляризацией дейtronов в коллайдере EIC [19].

**Финансирование работы.** Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда 22-42-04419, <https://rscf.ru/project/22-42-04419/>.

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

1. V. D. Kekelidze, A. D. Kovalenko, I. N. Meshkov, A. S. Sorin, and G. V. Trubnikov, Phys. Atom. Nucl. **75**, 542 (2012).
2. N. N. Agapov, V. D. Kekelidze, A. D. Kovalenko, R. Lednitsky, V. A. Matveev, I. N. Meshkov, V. A. Nikitin, Yu. K. Potrebennikov, A. S. Sorin, and G. V. Trubnikov, Phys.-Uspekhi **59**, 383 (2016).
3. I. A. Savin, A. V. Efremov, D. V. Peshkhanov, A. D. Kovalenko, O. V. Teryaev, O. Yu. Shevchenko, A. P. Nagajcev, A. V. Guskov, V. V. Kukhtin, and N. D. Topilin, EPJ Web Conf. **85**, 02039 (2015).
4. A. Arbuzov, A. Bacchetta, M. Butenschoen et al. (Collaboration), Prog. Part. Nucl. Phys. **119**, 103858 (2021).
5. V. V. Abramov, A. Aleshko, V. A. Baskov et al. (Collaboration), PEPAN **52**(6), 1044 (2021).
6. Yu. V. Senichev, A. E. Aksent'ev, S. D. Kolokolchikov, A. A. Mel'nikov, N. N. Nikolaev, V. P. Ladygin, and E. M. Syresin, Phys. Part. Nucl. Lett. **21**(3), 261 (2024).
7. S. N. Vergeles, N. N. Nikolaev, Yu. N. Obukhov, A. Ya. Silenko, and O. V. Teryaev, Phys.-Uspekhi **66**(2), 109 (2023).
8. T. Chupp, P. Fierlinger, M. Ramsey-Musolf, and J. Singh, Rev. Mod. Phys. **91**(1), 015001 (2019).
9. F. Abusaif, A. Aggarwal, A. Aksentev et al. (Collaboration), CERN Yellow Reports: Monographs, CERN-2021-003, arXiv:1912.07881 (2021).
10. R. D. Peccei, and H. R. Quinn, Phys. Rev. Lett. **38**, 1440 (1977).
11. S. Weinberg, Phys. Rev. Lett. **40**, 223 (1978).
12. P. V. Vorob'ev, I. V. Kolokolov, and V. F. Fogel', JETP Lett. **50**, 65 (1989) Pis'ma v ZhETF **50**, 58 (1989) [P. V. Vorob'ev, I. V. Kolokolov, and V. F. Fogel', JETP Lett. **50**, 65 (1989)].
13. P. Sikivie and Q. Yang, Phys. Rev. Lett. **103**, 111301 (2009).
14. P. Sikivie, Rev. Mod. Phys. **93** (1), 015004 (2021).
15. N. N. Nikolaev, Pis'ma v ZhETF **115**, 683 (2022) [N. N. Nikolaev, JETP Lett. **115**, 639 (2022)].
16. A. J. Silenko, Eur. Phys. J. C **82**, 856 (2022).
17. S. Karanth, E. J. Stephenson, S. P. Chang et al. (Collaboration), Phys. Rev. X **13**, 031004 (2023).
18. I. A. Koop, A. I. Milstein, N. N. Nikolaev, A. S. Popov, S. G. Salnikov, P. Yu. Shatunov, and Yu. M. Shatunov, Pisma Fiz. Elem. Chast. Atom. Yadra **17**(2), 122 (2020) [I. A. Koop, A. I. Milstein, N. N. Nikolaev, A. S. Popov, S. G. Salnikov, P. Yu. Shatunov, and Yu. M. Shatunov, Phys. Part. Nucl. Lett. **17** (2), 154 (2020)].
19. A. Accardi, J. L. Albacete, M. Anselmino et al. (Collaboration), Eur. Phys. J. A **52**, 268 (2016).
20. M. Harrison, S. Peggs, and T. Roser, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. **52**(1), 425 (2002).
21. V. I. Ptitsin and Yu. M. Shatunov, Nucl. Instr. Meth. A **398**, 126 (1997).
22. H. Huang, F. Méot, V. Ptitsyn, V. Ranjbar, and T. Roser, Phys. Rev. Accel. Beams **23**, 021001 (2020).
23. V. S. Morozov, Ya. S. Derbenev, Y. Zhang, P. Chevtsov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, and Yu. N. Filatov, in Proc. IPAC2012, New Orleans, Louisiana, USA (2012), p. 2008.
24. Y. S. Derbenev, Y. N. Filatov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, and V. S. Morozov, Symmetry **13**(3), 1 (2021).
25. Y. N. Filatov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, Y. S. Derbenev, and V. S. Morozov, Phys. Rev. Lett. **124**, 194801 (2020).
26. V. S. Morozov, Y. S. Derbenev, F. Lin, Y. Zhang, Y. Filatov, A. M. Kondratenko, and M. A. Kondratenko, in Proc. IPAC2015, Richmond, VA, USA (2015), p. 2301.
27. A. D. Kovalenko, A. V. Butenko, V. D. Kekelidze, V. A. Mikhaylov, Y. Filatov, A. M. Kondratenko, and M. A. Kondratenko, in Proc. IPAC'15, Richmond, VA, USA (2015), p. 2031.
28. Yu. N. Filatov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, Y. S. Derbenev, V. S. Morozov, A. V. Butenko, E. M. Syresin, and E. D. Tsyplakov, Eur. Phys. J. C **81**, 986 (2021).
29. A. D. Kovalenko, Yu. N. Filatov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, and V. A. Mikhaylov, PEPAN **45**(1), 321 (2014).
30. Yu. N. Filatov, A. D. Kovalenko, A. V. Butenko, E. M. Syresin, V. A. Mikhaylov, S. S. Shimanskiy, A. M. Kondratenko, and M. A. Kondratenko, EPJ Web Conf. **204**, 10014 (2019).
31. Y. N. Filatov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, V. V. Vorobyov, S. V. Vinogradov, E. D. Tsyplakov, and V. S. Morozov, Phys. Rev. Accel. Beams **24**(6), 061001 (2021).
32. H. Huang, J. Kewisch, C. Liu, A. Marusic, W. Meng, F. Méot, P. Oddo, V. Ptitsyn, V. Ranjbar, and T. Roser, Phys. Rev. Lett. **120**, 264804 (2018).

33. Y. Filatov, A. Kondratenko, M. Kondratenko, V. Vorobyov, S. Vinogradov, E. Tsyplakov, A. Butenko, E. Syresin, S. Kostromin, Y. Derbenev, and V. Morozov, JINST **16** (12), P12039 (2021).
34. Yu. N. Filatov , A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko E.D. Tsyplakov, A.V. Butenko, S.A. Kostromin, V.P. Ladygin, E.M. Syresin, I.L. Guryleva, A.A. Melnikov, and A.E. Aksentyev, Pis'ma v ZhETF, **116** (7), 411 (2022) [Yu.N. Filatov , A.M. Kondratenko, M. A. Kondratenko E.D. Tsyplakov, A.V. Butenko, S.A. Kostromin, V.P. Ladygin, E.M. Syresin, I.L. Guryleva, A.A. Melnikov, and A.E. Aksentyev, JETP Lett. **116** (7), 413 (2022)].
35. Y. N. Filatov, A. V. Butenko, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, A. D. Kovalenko, and V. A. Mikhaylov, in Proc. IPAC2017, Copenhagen, Denmark (2017), p. 2349.
36. Yu. N. Filatov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, S. V. Vinogradov, E. D. Tsyplakov, A. V. Butenko, S. A. Kostromin, V. P. Ladygin, E. M. Syresin, and A. Butenko, PEPAN **55**(4), 731(2024).
37. Yu. N. Filatov, A. M. Kondratenko, N. N. Nikolaev, Yu. V. Senichev, M. A. Kondratenko, S. V. Vinogradov, E. D. Tsyplakov, A. V. Butenko, S. A. Kostromin, V. P. Ladygin, E. M. Syresin, I. L. Guryleva, A. A. Melnikov, and A. E. Aksentyev, JETP Lett. **118** (6), 387 (2023).
38. Y. S. Derbenev, A. M. Kondratenko, and A. N. Skrinskii, Sov. Phys. JETP **33**, 658 (1971).
39. T. Khoe, R. L. Kustom, R. L. Martin, E. F. Parker, C. W. Potts, L. G. Ratner, R. E. Timm, A. D. Krisch, J. B. Roberts, and J. R. O'Fallon, Particle Accelerators **6**, 213 (1975).
40. L. G. Ratner, H. Brown, I-H Chiang et al. (Collaboration), IEEE Trans. Nucl. Sci. **32**(5), 1656 (1985).
41. H. Huang , L. Ahrens, J. G. Alessi et al. (Collaboration), Phys. Rev. Lett. **73**, 2982 (1994).
42. H. Huang, L. A. Ahrens, M. Bai et al. (Collaboration), Phys. Rev. Lett. **99**, 154801 (2007).
43. Ya. S. Derbenev, F. Lin, V. S. Morozov, Y. Zhang, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, and Yu. N. Filatov, in Proc. IPAC2014, Dresden, Germany (2014), p. 68.
44. P. K. Kurilkin, V. P. Ladygin, T. Uesaka et al. (Collaboration), Nucl. Instr. Methods A **642**, 45 (2011).
45. A. A. Terekhin, I. S. Volkov, Y. V. Gurchin, A. Y. Isupov, V. P. Ladygin, S. G. Reznikov, A. V. Tishevsky, A. N. Khrenov, and M. Janek, Phys. Part. Nucl. **54** (4), 634 (2023).
46. L. S. Azhgirey, V. P. Ladygin, F. Lehar, A. N. Prokofiev, G. D. Stoletov, A. A. Zhdanov, and V. N. Zhmyrov, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **497**, 340 (2003).
47. M. Froissart and R. Stora, Nucl. Instr. Methods, **7** (3), 297 (1960).
48. F. Méot, Nucl. Instr. Methods A **427**, 353 (1999).
49. Yu. N. Filatov, A. M. Kondratenko, M. A. Kondratenko, Ya. S. Derbenev, V. S. Morozov, and A. D. Kovalenko, Eur. Phys. J. C **80**, 778 (2020).
50. V. S. Morozov, Y. S. Derbenev, F. Lin, Y. Zhang, Y. Filatov, A. M Kondratenko, and M. A. Kondratenko, in Proc. IPAC2018, Vancouver, BC (2018), p. 400.
51. A. M. Kondratenko, Y. N. Filatov, M. A. Kondratenko, A. D. Kovalenko, and S. V. Vinogradov, J. Phys.: Conf. Ser. **1435**, 012037 (2020).

# Наноструктурированные микропорошки $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{Yb}$ для антибактериальной гипертермии<sup>1)</sup>

Д. П. Щербинин<sup>2)</sup>, Д. В. Булыга<sup>+</sup>, И. Н. Сараева<sup>×</sup>, Э. Р. Толордава<sup>×</sup>, А. А. Пеунков<sup>+</sup>, Д. М. Долгинцев<sup>+</sup>, А. Н. Бабкина<sup>+</sup>, А. В. Иванов<sup>+</sup>, С. И. Кудряшов<sup>×</sup>

<sup>+</sup> Университет ИТМО, 197101 С.-Петербург, Россия

\* Акционерное общество “Научно-производственное объединение Государственный оптический институт им. С. И. Вавилова”, 192171 С.-Петербург, Россия

<sup>×</sup> Физический институт им. П. Н. Лебедева, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 30 августа 2024 г.

После переработки 24 сентября 2024 г.

Принята к публикации 3 октября 2024 г.

В работе предложен метод фотоиндуцированной гипертермии патогенных грамотрицательных бактерий *P. aeruginosa* с использованием микропорошка  $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{Yb}$ . Предлагаемый метод гипертермии основан на возможности возбуждения лазерным излучением антристоксовой люминесценции на ионах иттербия в микропорошке оксида гадолиния, что позволяет с одной стороны осуществлять нагрев порошка до необходимой температуры, а с другой стороны проводить точный контроль температуры порошка методами удаленной люминесцентной термометрии. В работе показано, что при длительном облучении микропорошка  $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{Yb}$  наносекундным лазерным излучением на длине волны 1035 нм наблюдается изменение формы спектров антристоксовой люминесценции, ассоциированное с нагревом микропорошка в диапазоне от 27 до 63 °C. Применение предложенного метода фотоиндуцированной гипертермии к смеси растворов микропорошка  $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{Yb}$  и бактерий *P. aeruginosa* продемонстрировало уменьшение популяции бактерий на 90 %.

DOI: 10.31857/S0370274X24110247, EDN: SZNPIT

**1. Введение.** Методы гипертермии биообъектов на базе наночастиц (НЧ) активно исследуются уже в течение нескольких десятков лет. На сегодняшний день гипертермия с использованием НЧ рассматривается как один из перспективных подходов лечения онкологических заболеваний [1–7]. Метод гипертермии основан на повышении температуры биообъектов, находящихся в контакте с НЧ. Умеренное повышение температуры биообъектов до 41–46 °C, спровоцированное бесконтактным нагревом НЧ, может изменить функциональность межклеточных белков, что способно привести к деградации клеток и, в конечном итоге, к их апоптозу [2–4]. В области терапии раковых опухолей данный режим гипертермии требует длительного времени воздействия, поскольку для достижения нужного эффекта требуется несколько часов и часто необходимо его сочетание с дополнительными методами лечения [5, 6]. Терапия методом гипертермии при температуре выше 46 °C может привести непосредственно к гибели кле-

ток в течение всего нескольких минут. Кроме того, высокотемпературный режим гипертермии приводит к некрозу пораженных тканей, их коагуляции или карбонизации [7].

Такие современные вызовы, как развитие резистентности к антибиотикам, появление суперинфекций и угроза новых пандемий привело к разработке новых материалов для антибактериальной гипертермии [8–10]. Так, в работе [11] было показано, что применение НЧ оксида железа приводит к повышению проницаемости биопленок *P. aeruginosa* (PA) к антибиотикам. В статье [12] авторы приводят результаты по уничтожению бактерий *S. aureus* путем гипертермии с использованием золотых НЧ.

За последние годы в подавляющей части научных работ, посвященных методам гипертермии, использовались металлические и магнитные НЧ. Для бесконтактного разогрева таких НЧ используются внешние источники радиочастотного магнитного поля (100 кГц–1 МГц) [1, 13–15]. При этом используемые магнитные поля быстро затухают при распространении вглубь биологических тканей, что не позволяет проводить терапию на глубине более 5 см [1]. В связи с этим в ряде работ обсуждается возмож-

<sup>1)</sup> См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала [www.jetletters.ac.ru](http://www.jetletters.ac.ru)

<sup>2)</sup> e-mail: shcherbinin.dmitrij@gmail.com

ность использования лазерного излучения для бесконтактного разогрева НЧ [16–18]. В работе [18] показано, что при попадании в клеточную среду наблюдается резкое снижение эффективности нагрева наночастиц с использованием магнитного поля. В то же время эффективность нагрева НЧ с использованием оптического излучения практически не изменилась по сравнению с их коллоидными растворами. Кроме того, показано, что фотоиндуцированная гипертермия требует более низких концентраций НЧ для проведения терапии [19], чем в случае использования магнитного поля.

Для реализации методов фотоиндуцированной гипертермии необходимо, чтобы используемые НЧ поглощали излучение в области прозрачности биологических тканей (750–1050 нм). В таком случае возбуждающее излучение может распространяться вглубь тканей, не вызывая повреждения здоровых клеток. Так, например, нагрев при воздействии лазерного излучения на длине волны 808 нм был продемонстрирован для НЧ  $Fe_3O_4$  в оболочке  $SiO_2$  [20], НЧ  $Si$  [16], а также магнитосомных НЧ [18]. В работе [17] используются гибридные наноструктуры, состоящие из золотых наностержней, покрытых оболочкой  $SiO_2$  с внедренными люминесцентными метками. Разогрев достигается также с использованием излучения на длине волны 808 нм. При этом в работе ставится вопрос о важности бесконтактного измерения температуры НЧ для контроля хода терапии. В указанной работе контроль температуры осуществлялся по люминесцентному отклику внедренных меток. При этом для возбуждения люминесценции использовалось излучение на длине волны 488 нм. Такое излучение не способно проникать вглубь биологических тканей и, более того, будет приводить к повреждению здоровых клеток, что существенно ограничивает применимость таких материалов. Таким образом, разработка новых НЧ, позволяющих производить дистанционный нагрев и измерение температуры с использованием оптического излучения на длинах волн, соответствующих области прозрачности биологических тканей, является важным вопросом для дальнейшего развития методов фотоиндуцированной гипертермии.

В настоящей работе впервые исследуется возможность использования наноструктурированных микропорошков  $Gd_2O_3:Yb$  для реализации фотоиндуцированной гипертермии. Химическая стабильность и оптическая анизотропия [21], биосовместимость и парамагнитные свойства [22, 23] делают НЧ оксида гадолиния перспективным материалом для применения в области биомедицины. В свою очередь ио-

ны иттербия  $Yb^{3+}$  обладают полосами поглощения и люминесценции в спектральной области 900–1100 нм [24, 25], соответствующей области прозрачности биологических тканей. Таким образом, материалы на базе  $Gd_2O_3$ , легированные ионами  $Yb^{3+}$ , представляют собой особый интерес для разработки нового класса НЧ для оптической гипертермии.

В работе представлен анализ структурных и оптических свойств микропорошков  $Gd_2O_3:Yb$ , а также исследована динамика изменения спектров антристоксовой люминесценции и температуры микропорошка при воздействии возбуждающего излучения на длине волны 1035 нм в течение 200 с. Показано, что в течение 200 с происходит нагрев микропорошка до температуры 63 °С, сопровождаемый изменением формы спектров антристоксовой люминесценции. В настоящей работе впервые проведены исследования антибактериальных свойств микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  для реализации методов фотоиндуцированной гипертермии на примере культуры грамотрицательных патогенных бактерий РА, взятых из коллекции НИЦЭМ им. Н. Ф. Гамалеи. Грамотрицательные бактерии РА являются частыми возбудителями глазных инфекций и заболеваний носоглотки [26], в связи с чем, их инактивация является важной задачей исследований в современной медицине.

**2. Материалы и методы.** Наноструктурированные микропорошки  $Gd_2O_3:Yb$  были синтезированы полимерно-солевым методом с использованием в качестве прекурсоров нитрата гадолиния 6-водного, нитрата иттербия 5-водного, поливинилпирролидона (ПВП) и дистиллированной дейонизованной воды. В ходе работы было проведено три независимых синтеза микропорошков  $Gd_2O_3$ , легированных ионами иттербия  $Yb^{3+}$ , и микропорошков без легирующих добавок для сравнительных исследований (процедура и условия синтеза подробно описаны в Дополнительных материалах). Для визуализации исследуемых наноструктурированных микропорошков использовался сканирующий электронный микроскоп (Thermo Fisher Scientific, США). Оценка среднего размера нанокристаллитов в составе микропорошка и постоянной решетки исследуемых материалов производилась на основе рентгеновских дифрактограмм, зарегистрированных при помощи рентгеновского дифрактометра DRON-8 (Буревестник, Санкт-Петербург, Россия).

Измерение спектров люминесценции выполнялось с использованием портативного спектрометра Vision2GO (R-aero, Санкт-Петербург, Россия), оснащенного оптоволоконным выводом и микрообъективом. Возбуждение стоксовой люминесценции осу-

ществлялось с использованием полупроводникового лазера с длиной волны 915 нм и выходной мощностью до 20 Вт. Антистоксовая люминесценция возбуждалась на длине волны 1035 нм с выходной мощностью до 10 Вт. Регистрация температуры в начале и в конце лазерного воздействия осуществлялась с использованием тепловизионной камеры P2Pro (iRay technology, Китай).

Гипертермия микроорганизмов осуществлялась на примере культуры грамотрицательных бактерий РА, взятых из коллекции НИЦЭМ им. Н. Ф. Гамалеи. Изначальное количество колониеобразующих единиц в 1 мл (КОЕ/мл) составляло  $2 \times 10^6$ . Для гипертермии использовалось излучение наносекундного лазерного маркера HTFMark (Булат, Москва, Россия) с длиной волны 1064 нм, длительностью импульса 120 нс, энергией в импульсе 0.4 мДж, частотой повторения импульсов 20 кГц. На пластинку кремния наносилась капля бактериальной культуры (3 мкл), после чего образец без дополнительного высушивания располагался на расстоянии 1/2 фокусного расстояния *F*-theta (*F* = 120 мм) объектива сканаторной головки маркера. С целью полной обработки капли бактериальной культуры лазерный луч перемещался в области 5 × 5 мм со скоростью 200 мм/с, заполнением 0.1 линий/мм, и в данном режиме осуществлялось облучение образца без локального вскипания воды в капле (при отсутствии микропорошка). Таким образом, были получены следующие образцы: бактерии без обработки (контроль); после экспонирования лазерным излучением; после смешивания с раствором микропорошка в соотношении 1:1 (для определения токсичности частиц *per se*); после смешивания с микропорошком и экспонирования лазерным излучением (режим гипертермии). Каждый образец помещался в отдельную пробирку со стерильным физиологическим раствором и интенсивно встряхивался на вортексе в течение 15 мин для смывания бактериальных клеток, после чего определялось количество жизнеспособных микроорганизмов в смыве методом серийных разведений.

**3. Результаты и обсуждения.** Формирующиеся в ходе синтеза порошки состоят из плоских микроразмерных кластеров, образованных из отдельных нанокристаллитов (полученные СЭМ изображения представлены в Дополнительных материалах, рис. S1). Дифрактометрический анализ показал, что средний размер нанокристаллов в синтезированных порошках составляет 34.6–38 нм. Постоянная решетки материала исследуемых микропорошков составляла 10.78–10.79 Å. Аморфной фазы в исследуемых образцах выявлено не было (полученные дифракто-

грамммы и их анализ подробно представлен в Дополнительных материалах, рис. S2). Химический состав определялся методом рентгенофлуоресцентной спектроскопии (ARL PERFORM'X, Thermo Scientific, страна). Показано, что содержание ионов иттербия в исследуемых микропорошках составляет 2 масс. %, с отклонением в пределах погрешности.

Пример спектров стоксовой (при возбуждении на длине волны 915 нм) и антистоксовой люминесценции (при возбуждении на длине волны 1035 нм) исследуемых образцов  $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{Yb}$ , представлены на рис. 1. Красная линия соответствует спектру стоксовой люминесценции, синяя – антистоксовой.

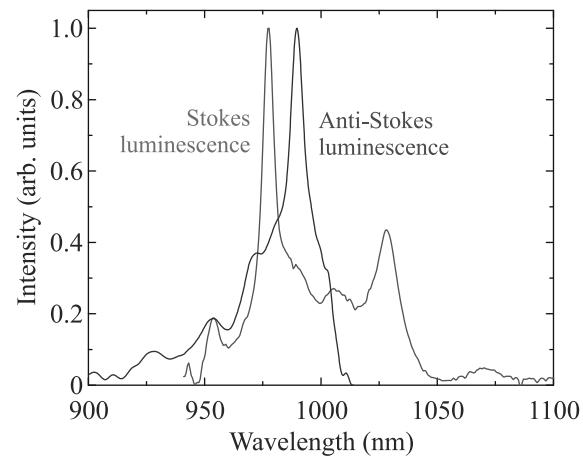


Рис. 1. (Цветной онлайн) Нормированные спектры стоксовой (красная кривая) и антистоксовой (синяя кривая) люминесценции микропорошка  $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{Yb}$ . Возбуждение стоксовой люминесценции производилось с помощью лазерного излучения на длине волны 915 нм, возбуждение антистоксовой люминесценции – с помощью лазерного излучения на длине волны 1035 нм

Из рисунка 1 видно, что спектры стоксовой люминесценции характеризуются хорошо разрешенными полосами на 953, 977, 1005 и 1028 нм и спектральным плечом на 990 нм. Спектры антистоксовой люминесценции характеризуются пиками на 928, 953, 971, 989 нм и спектральным плечом на 1003 нм. Таким образом, можно заключить, что положение пиков стоксовой и антистоксовой люминесценции хорошо согласуется между собой, однако в зависимости от условий возбуждения изменяется соотношение интенсивности полос люминесценции, что требует дополнительного анализа. Спектральные свойства ионов иттербия определяются двумя электронными уровнями с энергией перехода, соответствующей ближней инфракрасной (БИК) области спектра. Основной ( ${}^2\text{F}_{7/2}$ ) и возбужденный ( ${}^2\text{F}_{5/2}$ ) уров-

ни энергии иона иттербия в кристаллической матрице обычно расщеплены на четыре и три подуровня, соответственно, за счет эффекта Штарка [27, 28]. Благодаря данной энергетической структуре, ионы иттербия обладают набором полос поглощения и испускания излучения в спектральной области 900–1100 нм [24, 25, 29].

При возбуждении антистоксовой люминесценции излученные фотоны имеют большую энергию, чем поглощенные. При этом недостаток энергии берется из фононной подсистемы кристаллической матрицы. В очень чистых легированных ионами иттербия кристаллических матрицах (содержание не редкоземельных примесей менее 1 ppm), возбуждение антистоксовой люминесценции может приводить к оптическому охлаждению матрицы [30]. В легированных матрицах, содержащих дополнительные примеси, оптическое охлаждение реализовать не получается, но удается получить термостабилизированный режим воздействия оптическим излучением накачки.

Возможность возбуждения антистоксовой люминесценции в исследуемых микропорошках открывает возможность для бесконтактного контроля температуры, что является одним из условий эффективной реализации фотоиндуцированной гипертермии. Ранее было показано, что спектры антистоксовой люминесценции ионов иттербия чувствительны к температуре матрицы [29, 31]. На рисунке 2 приведены нормированные спектры антистоксовой люминесценции микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  при непрерывном возбуждении на протяжении 200 с. Из представленных данных видно, что при увеличении времени экспозиции наблюдается рост вклада коротковолновой части спектра антистоксовой люминесценции. Было показано, что температура микропорошка составляла 27.1 °C перед облучением и 63.2 °C сразу после облучения в течение 225 с. Таким образом, изменение формы спектров люминесценции связано с увеличением температуры микропорошка, приводящем к перераспределению носителей заряда по штарковским расщепленным подуровням [29, 31].

Для анализа температуры по спектрам антистоксовой люминесценции удобно использовать зависимость отношения интенсивностей коротковолнового и самого интенсивного пиков в спектре [31]. На рисунке 3 представлена зависимость отношения интенсивности полос люминесценции на длинах волн 928 и 989 нм, которая близка к экспоненциальному. Выход соотношения на плато говорит о термостабилизации исследуемых образцов вследствие уравновешивания эффективности нагрева и теплоотвода в системе. Из зависимостей, представленных на

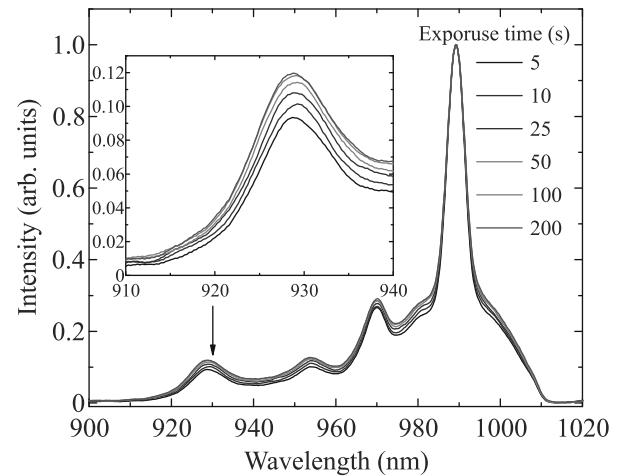


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры антистоксовой люминесценции микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  при увеличении времени экспозиции возбуждающего лазерного излучения на длине волны 1035 нм до 200 с

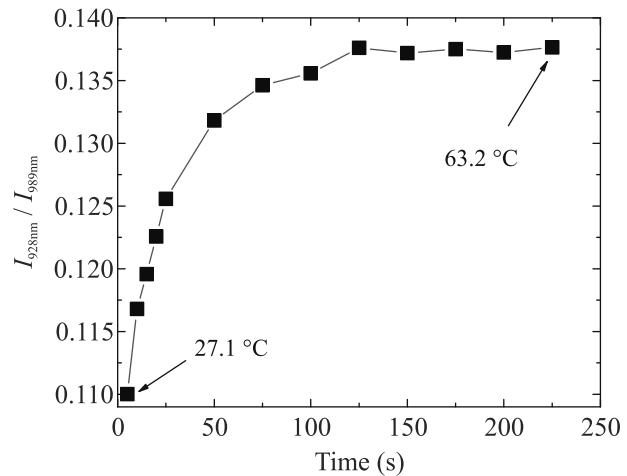


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость соотношения интенсивности люминесценции на длинах волн 928 и 989 нм микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  от времени экспозиции при возбуждении антистоксовой люминесценции с помощью лазерного источника на длине волны 1035 нм и мощности 10 Вт

рис. 3 можно сделать вывод, что наиболее интенсивный нагрев микропорошка происходит в течение первых 100 с.

Таким образом, облучение микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  в БИК области спектра приводит к его нагреву до температуры 63 °C. Известно, что в большинстве случаев белки денатурируют при 50–60 °C [32], к тому же дополнительными причинами гибели клеток могут стать разрушение мембранных липидов и повреждение ДНК/РНК [33]. В настоящей работе пилотные исследования антибак-

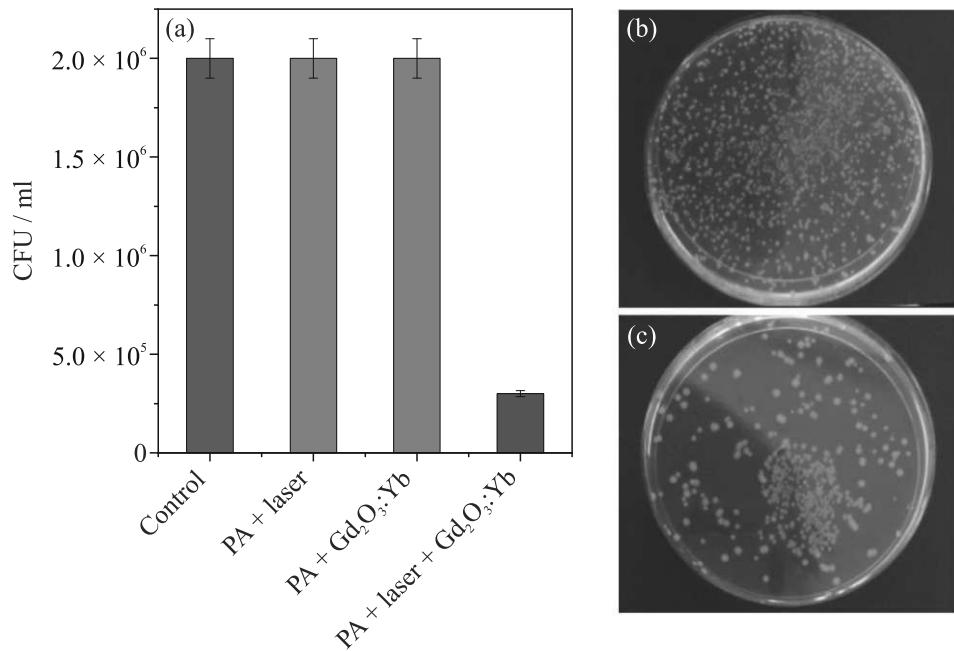


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Результаты высевов бактерий РА (control – количество КОЕ/мл в необработанной бактериальной культуре; РА + laser – количество КОЕ/мл в бактериальной культуре после экспонирования лазерным излучением БИК диапазона; РА + Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb – количество КОЕ/мл в бактериальной культуре после ее смешивания с микропорошком; РА + laser + Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb – количество КОЕ/мл в бактериальной культуре после ее смешивания с микропорошком и последующего экспонирования лазерным излучением БИК диапазона). (б) – Фото чашек Петри с микробиологическими посевами без обработки (control) и (в) – после облучения наносекундным лазером с добавлением микрочастиц Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb (РА + laser + Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb). Каждая белая точка обозначает колонию бактерий

териальных свойств Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb были проведены на примере культуры грамотрицательных бактерий РА. Для этого исследовались бактериологические посевы контрольного образца РА, образца РА после облучения в БИК области спектра, образца РА при смешивании с микрочастицами Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb, а также образца РА, смешанного с микрочастицами Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb, после лазерной обработки (режим гипертермии). Результаты бактериологического посева представлены на рис. 4. Видно, что число колониеобразующих единиц в миллилитре в необработанном образце составляет  $2 \times 10^6$  КОЕ/мл, так же, как и в образцах после смешивания с микропорошком, что свидетельствует об отсутствии токсичности Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb *per se*. Экспонирование образца РА без микропорошка также не привело к уменьшению количества КОЕ/мл. Тем не менее при экспонировании бактерий, смешанных с раствором микропорошка, значение КОЕ/мл снижается до  $3 \times 10^5$ . Снижение КОЕ/мл также наблюдается на фотографиях чашек Петри, где изначальное количество колоний в необработанном образце (рис. 4б) визуально больше числа колоний, выросших при посеве образца после смешивания с микропорошком

и последующего экспонирования (рис. 4в). Таким образом, в результате добавления микрочастиц и их последующего лазерно-индукционного нагрева происходит снижение бактериальной обсемененности на 90 %, что является многообещающим результатом, открывающим перспективу использования метода фотоиндуцированной гипертермии с использованием микрочастиц Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb.

**4. Заключение.** Полученные в рамках представленных пилотных исследований результаты говорят о высоком потенциале использования микропорошков оксида гадолиния, легированных ионами иттербия, для проведения фотоиндуцированной гипертермии биообъектов. Потенциал использования обусловлен уникальными свойствами микропорошка Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb<sup>3+</sup>, который обладает химической стойкостью в биологических средах, отсутствием токсичности и полосами поглощения и люминесценции в спектральной области, соответствующей области прозрачности биологических тканей. Кроме того, наличие оптической анизотропии и парамагнитных свойств легированного оксида гадолиния создает дополнительные степени свободы для использования этого материала с целью реализации гипер-

термии биообъектов. Таким образом, исследование физических свойств микропорошка  $Gd_2O_3:Yb^{3+}$  является актуальной научной задачей, решение которой позволяет определить условия реализации различных режимов гипертермии на всех стадиях проведения терапии.

С этой целью в работе проведено всестороннее исследование наноструктурированных микропорошков, а также проанализированы их морфологические, структурные и оптические свойства. Впервые показана возможность возбуждения стоксовой и антистоксовой люминесценции на ионах иттербия в микропорошках оксида гадолиния в БИК области спектра, соответствующего области прозрачности биоткани. Следует отметить, что именно возбуждение антистоксовой люминесценции позволяет получить необходимую максимальную температуру микропорошка, соответствующую температуре денатурации белков. В настоящей работе показано, что при длительном (более 100 с) облучении микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  наблюдается изменение формы спектров антистоксовой люминесценции, ассоциированные с нагревом микропорошка в диапазоне от 27 °C до 63 °C. Зависимость спектров антистоксовой люминесценции от температуры микропорошка позволяет осуществлять точный контроль температуры микропорошка методами удаленной люминесцентной термометрии, что важно для регулирования режимов гипертермии. Вместе с тем режим стоксового возбуждения люминесценции микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  позволяет получить более высокие температуры этого материала для реализации различных температурных режимов гипертермии. Реализация различных температурных режимов гипертермии будет зависеть от длины волны и длительности экспозиции излучения накачки.

В настоящей работе впервые демонстрируется возможность реализации метода фотоиндуцированной гипертермии с использованием микропорошка  $Gd_2O_3:Yb$  на примере культуры грамотрицательных бактерий РА. Показано, что экспонирование смеси микропорошка и бактерий наносекундным лазером на длине волны 1064 нм вызывает уменьшение популяции бактерий на 90 %. Полученные результаты подтверждают эффективность и перспективность предложенного метода фотоиндуцированной гипертермии с использованием микропорошков оксида гадолиния, легированных ионами иттербия.

Авторы выражают благодарность ЦКП “Нанотехнологии” Университета ИТМО за исследования

методами сканирующей электронной микроскопии и рентгенофлуоресцентной спектроскопии.

**Финансирование работы.** Исследование выполнено при финансовой поддержке грантов Российского научного фонда № 24-79-00225 и № 24-25-00403.

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

1. A. Włodarczyk, S. Gorgon, A. Radon, and K. Bajdak-Rusinek, *Nanomaterial* **12**(11), 1807 (2022).
2. C. Christophi, A. Winkworth, V. Muralihdaran, and P. Evans, *Surgical oncology* **7**, 83 (1998).
3. B. V. Harmon, Y. S. Takano, C. M. Winterford, and G. C. Gobe, *Int. J. Radiat. Biol.* **59**(2), 849 (1991).
4. K. S. Sellins and J. J. Cohen, *Radiat. Res.* **126**(1), 88 (1991).
5. T. S. Herman, B. A. Teicher, M. Jochelson, J. Clark, G. Svensson, and C. N. Coleman, *Int. J. Hyperth* **4**(2), 143 (1988).
6. J. Overgaard, D. G. Gonzalez, M. C. Hulshof, G. Arcangeli, O. Dahl, O. Mella, S. M. Bentzen, *Int. J. Hyperthermia* **12**(1), 3 (1996).
7. C. S. S. R. Kumar and F. Mohammad, *Adv. Drug Deliv. Rev.* **63**(9), 789 (2011).
8. Y. Li, Y. Zhu, C. Wang, Y. Shen, L. Liu, S. Zhou, P. F. Cui, H. Hu, P. Jiang, X. Ni, L. Qiu, and J. Wang, *Mol. Pharm.* **19**(3), 819 (2022).
9. I. Ali, Y. Pan, Y. Jamil, J. Chen, A. A. Shah, M. Imran, U. Alvi, N. Nasir, and Z. Shen, *J. Phys. Condens. Matter* **650**, 414503 (2023).
10. Y. Yang, C. Wang, N. Wang, J. Li, Y. Zhu, J. Zai, J. Fu, and Y. Hao, *J. Nanobiotech.* **20**(1), 195 (2022).
11. T. K. Nguyen, H. T. Duong, R. Selvanayagam, C. Boyer, and N. Barraud, *Sci. Rep.* **5**(1), 18385 (2015).
12. L. Mocan, F. A. Tabaran, T. Mocan, T. Pop, O. Mosteanu, L. Agoston-Coldea, C. T. Matea, D. Gonciar, C. Zdrehus, and C. Iancu, *Int. J. Nanomed.* **2017**, 2255 (2017).
13. S. Zhao, N. Hao, J. X. J. Zhang, P. J. Hoopes, F. Shubitzidze, and Z. Chen, *J. Nanobiotechnol.* **19**, 63 (2021).
14. R. Das, J. A. Masa, V. Kalappattil, Z. Nemati, I. Rodrigo, E. Garaio, J. Á. Garcia, M. H. Phan, and H. Srikanth, *Nanomaterials* **11**, 1380 (2021).
15. X. Zuo, H. Ding, J. Zhang, T. Fang, and D. Zhang, *Results Phys.* **32**, 105095 (2022).
16. V. A. Oleshchenko, A. Y. Kharin, A. F. Alykova, N. V. Karpov, A. A. Popov, V. V. Bezotosnyi, S. M. Klimentov, I. N. Zavestovskaya, A. V. Kabashin, and V. Yu. Timoshenko, *Appl. Surf. Sci.* **516**, 145661 (2020).
17. S. George, A. Srinivasan, S. V. Tulimilli, S. V. Madhunapantula, and S. J. Palantavida, *J. Mater. Chem. B* **11**(29), 6911 (2023).

18. A. P. Sangnier, S. Preveral, A. Curcio, A. K. A. Silva, C. T. Lefevre, D. Pignol, Y. Lalatonne, and C. Wilhelm, *J. Control. Release* **279**, 271 (2018).
19. D. Jaque, L. M. Maestro, B. del Rosal, P. Haro-Gonzalez, A. Benayas, J. L. Plaza, E. M. Rodríguez, and J. G. Solé, *Nanoscale* **6**(16), 9494 (2014).
20. H. Rodríguez-Rodríguez, G. Salas, and J. R. Arias-Gonzalez, *J. Phys. Chem. Lett.* **11**(6), 2182 (2020).
21. A. Moussaoui, D. V. Bulyga, S. K. Evstropiev, A. I. Ignatiev, N. V. Nikonorov, Y. F. Podruhin, and R. V. Sadovnichii, *Ceram. Int.* **47**, 34307 (2021).
22. D. Luo, S. Cui, Y. Liu, C. Shi, Q. Song, X. Qin, T. Zhang, Z. Xue, and T. Wang, *J. Am. Chem. Soc.* **140**, 14211 (2018).
23. S. K. Pandey, S. Singh, and S. K. Mehta, *J. Colloid Interface Sci.* **529**, 496 (2018).
24. D. C. Brown, R. L. Cone, Y. Sun, and R. W. Equall, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **11**, 604 (2005).
25. D. V. Bulyga and S. K. Evstropiev, *Rev. Chem. Intermed.* **47**, 3501 (2021).
26. G. P. Bodey, R. Bolivar, V. Fainstein, and L. Jadeja, *Reviews of Infectious Diseases* **5**(2), 279 (1983).
27. G. Leniec, S. M. Kaczmarek, and G. Boulon, *Proc. SPIE* **5958**, 595825 (2005).
28. A. Ivanov, Y. Rozhdestvensky, and E. Perlin, *J. Opt. Soc. Am. B* **33**, 1564 (2016).
29. U. Demirbas, J. Thesinga, M. Kellert, F. X. Kartner, and M. Pergament, *Opt. Mater. Express* **10**, 3403 (2020).
30. D. V. Seletskiy, R. Epstein, and M. Sheik-Bahae, *Rep. Prog. Phys.* **79**(9), 096401 (2016).
31. D. Shcherbinin, V. Sidelnikov, S. Rudyi, V. Rybin, and A. Ivanov, *J. Phys. Conf. Ser.* **2680**, 012041 (2024).
32. A. O'Toole, E. B. Ricker, and E. Nuxoll, *Biofouling* **31**, 665 (2015).
33. M. C. Allwood and A. D. Russell, *Adv. Appl. Microbiol.* **12**, 89 (1970).

# Содержание

## Том 120, выпуск 9

### Астрофизика и космология

Volovik G.E. Schwinger vs Unruh .....	659
---------------------------------------	-----

### Оптика, лазерная физика

Кузнецов Н.Ю., Григорьев К.С., Макаров В.А. Формула Марбургера для эллиптически поляризованных световых пучков в нелинейной нелокальной среде .....	661
---	-----

### Плазма, гидро- и газодинамика

Сорокина Е.А. Трансформация геодезической акустической моды в присутствии низкочастотного зонального течения в плазме токамака .....	667
--	-----

### Конденсированное состояние

Клумов Б.А. Кластеризация дефектов и кристаллитов в двумерной жидкости Юкавы .....	675
--	-----

Катков Д.С., Апостолов С.С., Бурмистров И.С. Связанные состояния и рассеяние магнонов на сверхпроводящем вихре в гетероструктурах ферромагнетик–сверхпроводник .....	681
--	-----

Симдянкин И.В., Гейвандов А.Р., Палто С.П. Обратимый топологически эквивалентный переход в хиральном жидкокристалле с отрицательной диэлектрической анизотропией .....	690
--	-----

Сорокин С.В., Климко Г.В., Седова И.В., Галимов А.И., Серов Ю.М., Кириленко Д.А., Прасолов Н.Д., Торопов А.А. Молекулярно-пучковая эпитаксия метаморфных гетероструктур с квантовыми точками InAs/InGaAs, излучающими в телекоммуникационном диапазоне длин волн .....	694
--	-----

Дотдаев А.Ш., Родионов Я.И., Рожков А.В., Григорьев П.Д. Квазиклассическое рассеяние на краевых дефектах в топологических изоляторах в магнитном поле .....	701
---	-----

### Методы физических исследований

Шуклин Ф.А., Барулина Е.Ю., Новиков С.М., Чернов А.И., Барулин А.В. Концепция собирающей металинзы на чипе в качестве миниатюрного сенсора флуоресценций одиночных молекул .....	714
--	-----

Макаров Д.Н., Есеев М.К., Гусаревич Е.С., Макарова К.А., Борисов М.С. Ультракороткие импульсы в структурном анализе алмазных слоев с NV-центрами .....	723
--	-----

### Нелинейные явления

Ростом А.М., Томилин В.А., Ильичев Л.В. Кvantовые корреляции в коллективных стратегиях взаимного поиска/антипоиска для трех партнеров .....	728
---	-----

<b>Белан С.А.</b> Метод стохастического уравнения обновления в определении статистики времени ожидания первого появления определенной последовательности состояний, последовательно посещенных чередующимся процессом обновления .....	733
--	-----

# Содержание

## Том 120, выпуск 10

### Оптика, лазерная физика

Рубан В.П. Мелкомасштабные световые структуры в керровской среде ..... 745

Козловский А.В. Генерация и поглощение фотонов двухуровневым атомом в режиме ультрасильной связи с ЭМ полем ..... 752

Батталова Э.И., Харинцев С.С. Термометрия разупорядоченных твердых тел на основе электронного комбинационного рассеяния света ..... 760

### Конденсированное состояние

Ткачев А.В., Журенко С.В., Бикмухаметова М.Р., Лиханов М.С., Шевельков А.В., Гиппиус А.А. Влияние электрон-дефицитного замещения на спиновую динамику в FeGa<sub>3</sub> ..... 765

Дерец Н.К., Федосеев А.И., Смирнова Т.А., Ко Дж.-Х., Лушников С.Г. Аномальное поведение длинноволновых оптических фононов в релаксорном сегнетоэлектрике PbNi<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>O<sub>3</sub> .. 774

Темная О.С., Никитов С.А. Влияние спинового эффекта Холла на резонансную частоту и магнитную восприимчивость магнонного нановолновода ..... 781

Балаев Д.А., Красиков А.А., Князев Ю.В., Столляр С.В., Шохрина А.О., Балаев А.Д., Исхаков Р.С. Магнитные межчастичные взаимодействия и полевая зависимость температуры суперпарамагнитной блокировки в порошковой системе ультрамалых частиц феррита никеля ..... 785

Макаров А.С., Кончаков Р.А., Афонин Г.В., Цзиао Ц.Ч., Кобелев Н.П., Хоник В.А. Избыточная энтропия металлических стекол и ее связь со стеклообразующей способностью материнских расплавов ..... 794

Зюзин В.А. Эффект де Гааза–ван Альфена и гигантский температурный пик в тяжелофермионном материале SmB<sub>6</sub> ..... 802

Dolganov P.V., Baklanova K.D., Dolganov V.K., Kats E.I. Photonics of two-dimensional structures formed by cholesteric liquid crystals ..... 808

### Методы теоретической физики

Филатов Ю.Н., Кондратенко А.М., Николаев Н.Н., Сеничев Ю.В., Кондратенко М.А., Виноградов С.В., Цыплаков Е.Д., Чернышов А.И., Бутенко А.В., Костромин С.А., Ладыгин В.П., Сыресин Е.М., Бутенко Е.А., Гурылева И.Л., Мельников А.А., Аксентьев А.Е. Компенсация влияния несовершенства структуры Нуклotronа/ОИЯИ на поляризацию протонов в области целого спинового резонанса (Миниобзор) ..... 810

**Биофизика**

- Щербинин Д.П., Булыга Д.В., Сараева И.Н., Толордава Э.Р., Пеунков А.А., Долгинцев Д.М., Бабкина А.Н., Иванов А.В., Кудряшов С.И. Наноструктурированные микропорошки Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Yb для антибактериальной гипертермии ..... 820