

ISSN 0370-274X

Том 117, Выпуск 5–6

Март 2023



Письма
в
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ

www.sciencejournals.ru



2023 г. Том 117 вып. 5, стр. 323 – 396

2023 г. Том 117 вып. 6, стр. 397 – 484

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 117

Выпуск 5

10 марта 2023

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора

Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

Распады τ -лептона с рождением странных скалярных мезонов $K_0^*(700)$ и $K_0^*(1430)$ в расширенной модели НИЛ

М. К. Волков⁺¹⁾, К. Нурлан^{+*×1)}

⁺Лаборатория теоретической физики им. Н. Н. Боголюбова, Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

^{*}Институт ядерной физики, 050032 Алматы, Казахстан

[×]Евразийский национальный университет им. Л. Н. Гумилева, 010008 Астана, Казахстан

Поступила в редакцию 26 декабря 2022 г.

После переработки 17 января 2023 г.

Принята к публикации 17 января 2023 г.

В расширенной $U(3) \times U(3)$ киральной кварковой модели Намбу–Иона-Лазанио вычислены ширины распадов τ -лептонов с рождением странных скалярных мезонов в основном и первом радиально возбужденном состоянии $\tau^- \rightarrow \nu_\tau [K_0^*(700)^-, K_0^*(1430)^-]$ и $\tau^- \rightarrow \nu_\tau [K_0^*(700)^- \pi^0, K_0^*(1430)^- \pi^0, K_0^*(700)^- K^0, K_0^*(700)^- \eta]$. Все мезоны рассматриваются как $q\bar{q}$ системы. Полученные результаты следует рассматривать как предсказания для будущих экспериментов.

DOI: 10.31857/S1234567823050014, EDN: pwirqu

I. Введение. Различные варианты $U(3) \times U(3)$ кирально симметричной модели Намбу–Иона-Лазанио (НИЛ) являются хорошим инструментом для изучения низкоэнергетических взаимодействий легких мезонов [1–15]. При этом мезонные нонеты псевдоскалярных, векторных и аксиально-векторных типов в этих моделях рассматриваются как кварк-антикварковые структуры. Однако, при рассмотрении скалярного мезонного нонета встречаются трудности с описанием массы изовекторного мезона $a_0(980)$ [13, 16]. Кроме того, возникают сложности при описании ширин распадов $f_0 \rightarrow \pi\pi$ и $a_0 \rightarrow \pi\eta$, где первая ширина при $q\bar{q}$ структуре дает заниженное значение, а вторая ширина в том же предположении превышает экспериментальные значение ширины [16, 17]. В настоящее время эти трудности преодолеваются с помощью введения дополнительных компонент в состав мезонов $f_0(980)$ и $a_0(980)$ в форме каонной молекулы, либо в виде дополнительной тетракварковой структуры этих мезонов в качестве ведущих компонент по сравнению с $q\bar{q}$ структурой [17–21]. Остальные скалярные мезоны вполне удовлетворительно описываются как кварк-антикварковая система. Это прежде всего относится к σ -мезону, к странным мезонам $K_0^*(700)$ и $K_0^*(1430)$, а также мезонам в первом радиально возбужденном состоянии [13, 16]. Следует отметить, что существование системы $q\bar{q}$ для скалярных

мезонов вместе с аналогичной структурой для псевдоскалярных мезонов играет важную роль в обеспечении приближенной киральной симметрии сильных взаимодействий.

В недавней работе [22] было показано, что распады странных скалярных мезонов вполне удовлетворительно описываются как $q\bar{q}$ система в согласии с недавними экспериментальными данными коллаборации BaBar [23]. Это касается основных распадов странного скалярного мезона $K_0^*(700)^- \rightarrow K^- \pi^0$ в основном и в первом радиально-возбужденном состоянии $K_0^*(1430)^- \rightarrow K^- \pi^0, K^- \eta, K^- \eta', K_1^- \pi^0$. В настоящей работе мы продолжим эти исследования и даем предсказания для распадов тау-лептонов с рождением странных скалярных мезонов $\tau^- \rightarrow \nu_\tau [K_0^*(700)^-, K_0^*(1430)^-]$ и $\tau^- \rightarrow \nu_\tau [K_0^*(700)^- \pi^0, K_0^*(1430)^- \pi^0]$, $\tau^- \rightarrow \nu_\tau [K_0^*(700)^- K^0, K_0^*(700)^- \eta]$.

II. Эффективный кварк-мезонный лагранжиан модели НИЛ. Отличительной чертой нашего варианта $U(3) \times U(3)$ киральной модели НИЛ является относительно большое значение параметра обрезания, равного $\Lambda_4 = 1260$ МэВ [6, 13]. Это значение соизмеримо по своей величине не только с массами основных состояний четырех мезонных нонетов (скалярных, псевдоскалярных, векторных и аксиально-векторных), но и массами их первых радиально возбужденных состояний. Это дает основание для попытки включения в модель мезонов в первых радиально возбужденных состояниях без нару-

¹⁾e-mail: volkov@theor.jinr.ru; nurlan@theor.jinr.ru

шения частичного сохранения киральной симметрии. Подобная модель была построена в работах [24, 25]. При этом многие численные вычисления различных процессов с участием первых радиально возбужденных мезонов показали удовлетворительное согласие полученных результатов с экспериментальными данными [11, 14, 15]. Это позволяет надеяться на достоверность полученных нами результатов в настоящей работе.

В нашей расширенной версии модели НИЛ первые радиально возбужденные мезоны описываются с помощью введения простейшего формфактора в виде полинома второй степени по относительному импульсу кварков. Численный коэффициент при k^2 (параметр наклона) выбирается из требования сохранения основных параметров первоначальной стандартной модели. Такими параметрами являются массы кварков и параметр обрезания [24, 25].

Следующим шагом при построении модели является требование диагонализации свободного лагранжиана, поскольку после введения возбужденных состояний в модели появляются недиагональные члены, связанные возможными переходами между основными и возбужденными состояниями. Диагональность достигается с помощью введения углов смешивания. В результате при описании взаимодействия в новой модели произвольных параметров оказывается не более чем в первоначальной стандартной модели [6, 25, 13].

Полные лагранжианы взаимодействия мезонов с кварками приведены в работах [11, 13–15]. Часть Лагранжиана сильных взаимодействий скалярных, псевдоскалярных, векторных и аксиально-векторных мезонов с кварками, необходимые для описания рассматриваемых нами процессов, принимает вид

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_{\text{int}} = & \bar{q} \left[i\gamma_5 \sum_{i=\pm,0} \lambda_i^\pi (a_\pi \pi^i + b_\pi \hat{\pi}^i) + \right. \\ & + i\gamma_5 \sum_{i=\pm,0} \lambda_i^K (a_K K^i + b_K \hat{K}^i) + \\ & + \frac{1}{2} \gamma_\mu \gamma_5 \sum_{i=\pm,0} \lambda_i^K (a_{K_1} K_{1\mu}^i + b_{K_1} \hat{K}_{1\mu}^i) + \\ & + \frac{1}{2} \gamma_\mu \gamma_5 \sum_{i=\pm,0} \lambda_i^{a_1} (a_{a_1} a_{1\mu}^i + b_{a_1} \hat{a}_{1\mu}^i) + \\ & + \sum_{i=\pm} \lambda_K (a_{K_0^*} K_0^{*i} + b_{K_0^*} \hat{K}_0^{*i}) + \\ & \left. + i\gamma^5 \sum_{i=u,s} \lambda_i [A_\eta^i \eta + A_{\eta'}^i \eta' + A_{\hat{\eta}}^i \hat{\eta} + A_{\hat{\eta}'}^i \hat{\eta}'] \right] q, \quad (1) \end{aligned}$$

где q и $\bar{q}$ – $U(3)$ -триплеты u -, d - и s -кварковых полей с составляющими массами кварков $m_u \approx m_d = 270$ МэВ, $m_s = 420$ МэВ; возбужденные состояния мезонов отмечены шляпкой и λ -линейные комбинации матриц Гелл–Манна [15],

$$\begin{aligned} a_M &= a_M^0 [g_M \sin(\theta_M + \theta_M^0) + \\ &+ g'_M f_M(k_\perp^2) \sin(\theta_M - \theta_M^0)], \\ b_M &= -a_M^0 [g_M \cos(\theta_M + \theta_M^0) + \\ &+ g'_M f_M(k_\perp^2) \cos(\theta_M + \theta_M^0)], \end{aligned} \quad (2)$$

где $a_M^0 = 1/\sin(2\theta_M^0)$. Нижний индекс M обозначает соответствующий мезон. Углы смешивания приведены в табл. 1. Углы смешивания для K - и π -мезонов $\theta \approx \theta_0$, поэтому для основных состояний этих мезонов можно использовать $A_\pi = g_\pi$ и $A_K = g_K$.

Таблица 1. Значения углов смешивания мезонов в основном и первом радиально-возбужденных состояниях [11, 15]

	π	K	a_1	K_1	K_0^*
θ_M	59.48°	58.11°	81.80°	85.97°	74.0°
θ_M^0	59.12°	55.52°	61.50°	59.56°	60.0°

Для η -мезонов множитель A принимает несколько другой вид. Это связано с тем, что в данном случае смешиваются четыре состояния мезонов $\eta, \eta', \eta(1295)$ и $\eta(1475)$

$$\begin{aligned} A_M^u &= g_{\eta^u} a_{1M}^u + g'_{\eta^u} a_{2M}^u f_{uu}(k_\perp^2), \\ A_M^s &= g_{\eta^s} a_{1M}^s + g'_{\eta^s} a_{2M}^s f_{ss}(k_\perp^2). \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь $f(k_\perp^2) = (1 + dk_\perp^2) \Theta(\Lambda^2 - k_\perp^2)$ – формфактор, описывающий первые радиально возбужденные мезонные состояния. Параметры наклона $d_{uu} = -1.784 \times 10^{-6}$ МэВ $^{-2}$, $d_{us} = -1.761 \times 10^{-6}$ МэВ $^{-2}$ и $d_{ss} = -1.737 \times 10^{-6}$ МэВ $^{-2}$ однозначно фиксируются из условия неизменности кваркового конденсата после учета радиально возбужденных состояний и зависят только от кваркового состава соответствующего мезона [15].

Таблица 2. Параметры смешивания η -мезонов [11, 15]

	η	$\hat{\eta}$	η'	$\hat{\eta}'$
a_1^u	0.71	0.62	−0.32	0.56
a_2^u	0.11	−0.87	−0.48	−0.54
a_1^s	0.62	0.19	0.56	−0.67
a_2^s	0.06	−0.66	0.3	0.82

Константы кварк-мезонного взаимодействия имеют вид

$$\begin{aligned} g_\pi &= g_{\eta^u} = \left(\frac{4}{Z_\pi} I_{20} \right)^{-1/2}, & g'_\pi &= g'_{\eta^u} = \left(4I_{20}^{f^2} \right)^{-1/2}, \\ g_{\eta^s} &= \left(\frac{4}{Z_{\eta^s}} I_{02} \right)^{-1/2}, & g'_{\eta^s} &= \left(4I_{02}^{f^2} \right)^{-1/2}, \\ g_K &= \left(\frac{4}{Z_K} I_{11} \right)^{-1/2}, & g'_K &= \left(4I_{11}^{f^2} \right)^{-1/2}, \\ g_{K_0^*} &= (4I_{11})^{-1/2}, & g'_{K_0^*} &= \left(4I_{11}^{f^2} \right)^{-1/2}, \\ g_{a_1} &= \left(\frac{2}{3} I_{20} \right)^{-1/2}, & g'_{a_1} &= \left(\frac{2}{3} I_{20}^{f^2} \right)^{-1/2}, \\ g_{K_1} &= \left(\frac{2}{3} I_{11} \right)^{-1/2}, & g'_{K_1} &= \left(\frac{2}{3} I_{11}^{f^2} \right)^{-1/2}, \end{aligned} \quad (4)$$

здесь Z_π и Z_{η^s} – дополнительные константы перенормировки, возникающие при переходах между псевдоскалярными и аксиально-векторными мезонами [13, 15].

Интеграл, появляющийся в кварковых петлях, принимает вид

$$I_{n_1 n_2}^{f^m} = -i \frac{N_c}{(2\pi)^4} \times \int \frac{f^m(k_\perp^2)}{(m_u^2 - k^2)^{n_1} (m_s^2 - k^2)^{n_2}} \Theta(\Lambda_3^2 - k_\perp^2) d^4 k, \quad (5)$$

где $\Lambda_3 = 1030$ МэВ – трехмерный параметр обрезания, четырехмерный параметр обрезания принимает значение $\Lambda_4 = 1260$ МэВ [13].

При описании распадов с участием аксиально-векторных мезонов K_1 мы учитываем эффект смешивания состояний K_{1A} и K_{1B} [6, 26]. Смешивание аксиальных векторных мезонов K_{1A} и K_{1B} приводит к физическим состояниям $K_1(1270)$ и $K_1(1400)$ [26]. Это смешение описывается следующим образом:

$$\begin{aligned} K_{1A} &= K_1(1270) \sin \alpha + K_1(1400) \cos \alpha, \\ K_{1B} &= K_1(1270) \cos \alpha - K_1(1400) \sin \alpha, \end{aligned} \quad (6)$$

где $\alpha = 57^\circ$ [15]. Этот эффект смешивания также рассматривался в работах [27–31].

III. Амплитуды и ширины распадов τ -лептона. Начнем с рассмотрения простейшего распада τ -лептона с рождением мезонов $K_0^*(700)$ и $K_0^*(1430)$. Эти распады происходят за счет разности масс u - и s -кварков. В модели НИЛ данные процессы описываются кварковой диаграммой, изображенной на рис. 1. При вычислении данной диаграммы интеграл по кварковой петле разлагается по импульсу

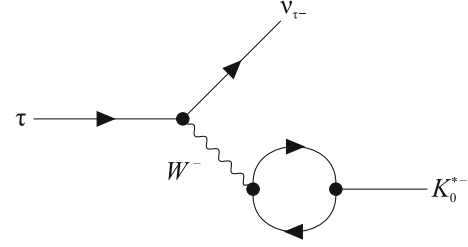


Рис. 1. Диаграмма, описывающая распад $\tau^- \rightarrow K_0^{*-} \nu_\tau$

внешних полей и удерживаются только расходящиеся части [6, 14, 15]. В результате получаем следующую формулу для ширины распада:

$$\begin{aligned} \Gamma(\tau^- \rightarrow K_0^{*}(700)^- \nu_\tau)_{NJL} &= \\ &= \frac{\sqrt{E_{K_0^*}^2 - M_{K_0^*}^2}}{4\pi} (M_\tau^2 - M_{K_0^*}^2) \times \\ &\times \left[G_F V_{us} \frac{m_s - m_u}{2} \frac{C_{K_0^*}}{g_{K_0^*}} \right]^2, \end{aligned} \quad (7)$$

где массы τ -лептона и мезонов взяты из Particle Data Group (PDG) [32]; $E_{K_0^*} = M_\tau^2 + M_{K_0^*}^2/2M_\tau$ – энергия скалярного мезона K_0^* в системе покоя τ -лептона; G_F – константа Ферми, V_{us} – элемент матрицы Кабиббо–Кобаяши–Маскавы; $C_{K_0^*} = 0.97$ – множитель, возникающий из-за кварковых петель, описывающий переход W -бозона в мезон K_0^* [15]. В модели НИЛ мы получаем $Br(\tau^- \rightarrow K_0^{*}(700)^- \nu_\tau)_{NJL} = 4.87 \times 10^{-4}$ для парциальной ширины этого распада.

Ширина распада $\tau^- \rightarrow K_0^{*}(1430)^- \nu_\tau$ может быть получена из формулы (7) заменой массы $M_{K_0^*}$ в $M_{K_0^*}(1430)$ и константы $C_{K_0^*} \rightarrow C_{K_0^*}'$, где $C_{K_0^*}' = 0.25$ [15]. В результате для парциальной ширины распада получаем $Br(\tau^- \rightarrow K_0^{*}(1430)^- \nu_\tau)_{NJL} = 4.07 \times 10^{-6}$. Эксперимент дает только ограничение для ширины распада $Br(\tau^- \rightarrow K_0^{*}(1430)^- \nu_\tau) < 5 \times 10^{-4}$ [32]. Наш результат не превышает это ограничение. Более того, мы можем сравнить наши результаты с теоретическими результатами, полученными в рамках модели с параметризацией скалярного πK форм-фактора $Br(\tau^- \rightarrow K_0^{*}(1430)^- \nu_\tau) = (0.07(3) - 0.78(38)) \times 10^{-4}$ [33]. Наши результаты также не противоречат этим теоретическим данным.

Далее рассмотрим распады τ -лептона с рождением мезонных пар $K_0^*(700)\pi$ и $K_0^*(1430)\pi$. Для этих распадов мы учитываем контактный канал, когда мезоны напрямую рождаются через W -бозон, а также каналы с аксиально-векторными и псевдоскалярными мезонами в основном и первом радиально-возбужденном состояниях. Соответствующие диаграммы изображены на рис. 2. В результате

Таблица 3. Парциальные ширины для распадов τ -лептонов. Вклады от разных каналов показаны в разных столбцах. Столбцы AV и AV' соответствуют диаграммам с промежуточными аксиально-векторными мезонами в основном и возбужденном состоянии. Вклады псевдоскалярных каналов показаны как PS и PS'. Столбец "Полная парциальная ширина" содержит итоговый результат вклада всех диаграмм

Распад	Контактный канал	AV	AV'	PS	PS'	Полная парциальная ширина
$Br(\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- \pi^0 \nu_\tau) \times 10^4$	0.719	4.859	0.022	0.528	0.003	4.757
$Br(\tau^- \rightarrow K_0^*(1430)^- \pi^0 \nu_\tau) \times 10^6$	0.085	0.027	2.09	0.008	0.079	1.801
$Br(\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- K^0 \nu_\tau) \times 10^4$	3.830	11.826	0.186	0.874	2.514×10^{-4}	5.005

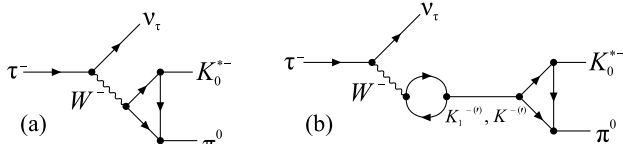


Рис. 2. Диаграммы распада $\tau^- \rightarrow K_0^{*-} \pi^0 \nu_\tau$. (a) – Контактная диаграмма. (b) – Диаграмма с промежуточными мезонами

для полной амплитуды распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- \pi^0 \nu_\tau$ получаем:

$$\begin{aligned} \mathcal{M}(\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- \pi^0 \nu_\tau) = \\ = 2G_F V_{us} L_\mu \left[\mathcal{M}_C + \mathcal{M}_{K_1+K'_1} + \mathcal{M}_{K+K'} \right]_{\mu\nu} \times \\ \times (p_{K_0^*} - p_\pi)_\nu, \end{aligned} \quad (8)$$

где L_μ – лептонный ток, $p_{K_0^*}$ и p_π – импульсы скалярного мезона $K_0^*(700)$ и пиона. Вклад контактной диаграммы описывается логарифмическим расходящимся интегралом $\mathcal{M}_{C\mu\nu} = I_{11}^{K_0^*\pi} g_{\mu\nu}$. Диаграммы с промежуточными аксиально-векторными мезонами $K_1(1270, 1400)$ и $K_1(1650)$ и псевдоскалярными мезонами K и $K(1460)$ дают следующий вклад в полную амплитуду:

$$\begin{aligned} \mathcal{M}_{K_1+K'_1\mu\nu} = \\ = \frac{C_{K_1}}{g_{K_1}} I_{11}^{K_1 K_0^* \pi} \left[\left[g_{\mu\nu} \left(p^2 - \frac{3}{2}(m_s + m_u)^2 \right) - \right. \right. \\ \left. \left. - p_\mu p_\nu \left(1 - \frac{3}{2} \frac{(m_s + m_u)^2}{M_{K_1(1270)}^2} \right) \right] BW_{K_1(1270)} \sin^2(\alpha) + \right. \\ \left. + \left[g_{\mu\nu} \left(p^2 - \frac{3}{2}(m_s + m_u)^2 \right) - \right. \right. \\ \left. \left. - p_\mu p_\nu \left(1 - \frac{3}{2} \frac{(m_s + m_u)^2}{M_{K_1(1400)}^2} \right) \right] BW_{K_1(1400)} \cos^2(\alpha) \right] + \\ + \frac{C_{K'_1}}{g_{K'_1}} I_{11}^{K'_1 K_0^* \pi} \left[g_{\mu\nu} \left(p^2 - \frac{3}{2}(m_s + m_u)^2 \right) - \right. \\ \left. - p_\mu p_\nu \left(1 - \frac{3}{2} \frac{(m_s + m_u)^2}{M_{K_1(1650)}^2} \right) \right] BW_{K_1(1650)}, \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{M}_{K+K'\mu\nu} = 4m_s F_K \times \\ \times \left[I_{11}^{KK_0^* \pi} BW_K + \gamma_{K'} I_{11}^{K'K_0^* \pi} BW_{K'} \right] g_{\mu\nu} p_\nu, \end{aligned} \quad (10)$$

где $\gamma_{K'} = F_{K'}/F_K \approx 0.26$ [15]; $C_{K_1} = 0.90$ и $C_{K'_1} = 0.42$ [15]; $p = p_{K_0^*} + p_\pi$. Интеграл, полученный из кварковых треугольных петель, имеет вид

$$\begin{aligned} I_{n_1 n_2}^{MM' \dots}(m_u, m_s) = -i \frac{N_c}{(2\pi)^4} \times \\ \times \int \frac{a(k_\perp^2) \dots b(k_\perp^2) \dots}{(m_u^2 - k^2)^{n_1} (m_s^2 - k^2)^{n_2}} \Theta(\Lambda_3^2 - \vec{k}^2) d^4 k, \end{aligned} \quad (11)$$

где $a(k_\perp^2)$ и $b(k_\perp^2)$ – коэффициенты для разных мезонов, определенные в (2). Промежуточные мезоны описываются пропагаторами Брейта–Вигнера.

$$BW_M = \frac{1}{M_M^2 - p^2 - i\sqrt{p^2} \Gamma_M}, \quad (12)$$

где массы и ширины мезонов взяты из PGD [32].

Для распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(1430)^- \pi^0 \nu_\tau$ амплитуда имеет аналогичную структуру с заменой вершин $W^- K_0^*(700)^- \pi^0 \rightarrow W^- K_0^*(1430)^- \pi^0$, $K_1^- K_0^*(700)^- \pi^0 \rightarrow K_1^- K_0^*(1430)^- \pi^0$ и массы мезона $M_{K_0^*(700)} \rightarrow M_{K_0^*(1430)}$. Численные оценки парциальных ширин распадов приведены в табл. 3.

Далее мы рассмотрим распад $\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- K^0 \nu_\tau$. Следует отметить, что этот распад отличается от вышеописанных распадов тем, что он идет через промежуточные каналы с участием нестранных мезонов a_1 , a'_1 , π и π' . В результате для полной амплитуды данного распада с учетом всех вкладов в рамках расширенной модели получаем следующую амплитуду

$$\begin{aligned} \mathcal{M}(\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- K^0 \nu_\tau) = 2\sqrt{2} G_F V_{ud} L_\mu \times \\ \times \left[\frac{C_{a_1}}{g_{a_1}} \left[g_{\mu\nu} (p^2 - 6m_u^2) - p_\mu p_\nu \right] BW_{a_1} I_{11}^{a_1 K_0^* K} + \right. \\ \left. + \frac{C_{a'_1}}{g_{a'_1}} \left[g_{\mu\nu} (p^2 - 6m_u^2) - p_\mu p_\nu \right] BW_{a'_1} I_{11}^{a'_1 K_0^* K} + \right. \\ \left. + 4m_s F_\pi \left(I_{11}^{\pi K_0^* K} BW_\pi + \gamma_{\pi'} I_{11}^{\pi' K_0^* K} BW_{\pi'} \right) g_{\mu\nu} p_\nu \right] \times \\ \times (p_{K_0^*} - p_K)_\nu, \end{aligned} \quad (13)$$

где $\gamma_{\pi'} = F_{\pi'}/F_{\pi} \approx 0.054$ [15] и $p = p_{K_0^*} + p_K$.

Амплитуда распада $\tau^- \rightarrow K_0^{*-} \eta \nu_{\tau}$ принимает вид

$$\begin{aligned} \mathcal{M}(\tau^- \rightarrow K_0^{*}(700)^- \eta \nu_{\tau}) = & 8G_F V_{us} F_K L_{\mu} \times \\ & \times \left[\left(m_s I_{11}^{K K_0^* \eta_u} - \sqrt{2} m_u I_{11}^{K K_0^* \eta_s} \right) BW_K + \right. \\ & \left. + \gamma_{K'} \left(m_s I_{11}^{K' K_0^* \eta_u} - \sqrt{2} m_u I_{11}^{K' K_0^* \eta_s} \right) BW_{K'} \right] \times \\ & \times (p_{K_0^*} + p_{\eta})_{\mu}, \end{aligned} \quad (14)$$

здесь мы учитываем u -, d - и s -кварковые части η -мезона. Для перехода $K^-(K'^-) \rightarrow K_0^{*-} \eta$ используем вершину, полученную в [22]. Используя эту амплитуду для парциальной ширины, получаем

$$Br(\tau^- \rightarrow K_0^{*}(700)^- \eta \nu_{\tau})_{NJL} = 3.599 \times 10^{-8}. \quad (15)$$

IV. Заключение. Как было отмечено во Введении, для корректного описания ряда скалярных мезонов необходимо учитывать тетракварковые компоненты этих состояний. Это прежде всего относится к изовекторному состоянию $a_0(980)$ и изоскаляру $f_0(980)$. В то же время в рамках нашей расширенной $U(3) \times U(3)$ кварковой киральной модели НИЛ удастся получить вполне удовлетворительные результаты о предположении ведущей $q\bar{q}$ компоненты у легкого σ мезона, странных мезонов и всех первых радиально возбужденных состояний скалярного нонета [11, 16]. В нашей недавней работе [22] было показано, что в этом предположении в рамках расширенной НИЛ модели можно получить вполне удовлетворительное согласие для основных распадов мезонов $K_0^*(700)$ и $K_0^*(1430)$ с экспериментальными данными BaBar [23]. В настоящей работе мы продолжаем эти исследования и даем ряд предсказаний для парциальных и дифференциальных ширин распадов в рамках расширенной модели НИЛ.

Наши расчеты показывают, что основной вклад в ширину распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- \pi^0 \nu_{\tau}$ вносит аксиально-векторный канал с промежуточными мезонами $K_1(1270)$ и $K_1(1400)$, рассматриваемыми вместе с вкладом контактной диаграммы с промежуточным аксиальным-векторным W -бозоном. В случае распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(1430)^- \pi^0 \nu_{\tau}$ ширину определяет канал с промежуточным возбужденным K_1' -мезоном. В обоих случаях псевдоскалярные каналы дают маленький вклад в ширину распада. В определении ширины для распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- K^0 \nu_{\tau}$ основную роль играет промежуточный нестранный a_1 мезон с аксиально-векторной частью контактной диаграммы. Здесь псевдоскалярный канал также дает малый вклад в парциальную ширину. Предсказания для дифференциальных ширин распадов представлены на рис. 3, 4 и 5. Следует отметить, что все

результаты получены с ранее определенными параметрами модели НИЛ без использования каких-либо дополнительных свободных параметров [14, 15].

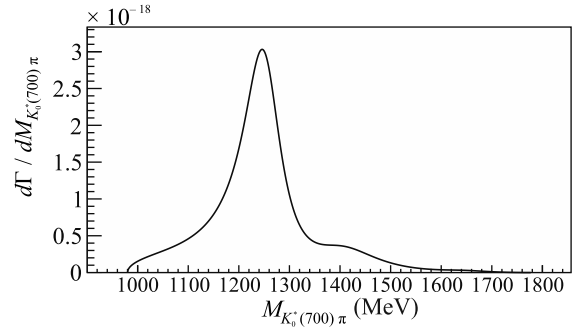


Рис. 3. Распределение по инвариантной массе для распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- \pi^0 \nu_{\tau}$

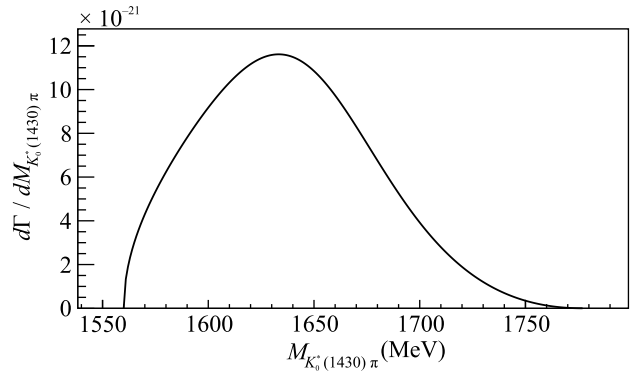


Рис. 4. Распределение по инвариантной массе для распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(1430)^- \pi^0 \nu_{\tau}$

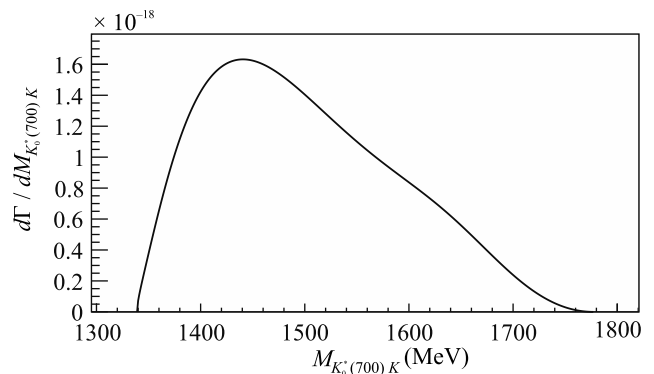


Рис. 5. Распределение по инвариантной массе для распада $\tau^- \rightarrow K_0^*(700)^- K^0 \nu_{\tau}$

К сожалению, в настоящее время странный скалярный мезон $K_0^*(1430)$ с экспериментальной точки зрения мало изучен в области низких энергий. Однако его масса и ширина достаточно хорошо опре-

делены в распадах тяжелых мезонов [23, 34–36], где скалярные мезоны играют важную роль при учете их вкладов в промежуточных состояниях. К сожалению, в настоящее время не существуют прямых экспериментальных данных по изучению описываемых нами распадов. Мы надеемся, что планируемые в будущем эксперименты по распадам тау-лептона на Super $c - \tau$ фабриках [37, 38] и Belle II [39] и др. позволят изучить распады тау-лептонов с достаточной высокой статистикой.

Авторы выражают благодарность проф. А. Б. Арбузову за интерес к нашей работе и полезные обсуждения.

Работа выполнена при поддержке гранта Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (номер гранта AP15473301).

1. Y. Nambu and G. Jona-Lasinio, Phys. Rev. **122**, 345 (1961); doi:10.1103/PhysRev.122.345.
2. T. Eguchi, Phys. Rev. D **14**, 2755 (1976); doi:10.1103/PhysRevD.14.2755.
3. D. Ebert and M. K. Volkov, Z. Phys. C **16**, 205 (1983); doi:10.1007/BF01571607.
4. M. K. Volkov, Ann. Phys. **157**, 282 (1984); doi:10.1016/0003-4916(84)90055-1.
5. D. Ebert and H. Reinhardt, Nucl. Phys. B **271**, 188 (1986); doi:10.1016/S0550-3213(86)80009-8.
6. M. K. Volkov, Sov. J. Part. Nucl. **17**, 186 (1986).
7. U. Vogl and W. Weise, Prog. Part. Nucl. Phys. **27**, 195 (1991); doi:10.1016/0146-6410(91)90005-9.
8. S. P. Klevansky, Rev. Mod. Phys. **64**, 649 (1992); doi:10.1103/RevModPhys.64.649.
9. T. Hatsuda and T. Kunihiro, Phys. Rep. **247**, 221 (1994); doi:10.1016/0370-1573(94)90022-1; arXiv:hep-ph/9401310 [hep-ph].
10. D. Ebert, H. Reinhardt, and M. K. Volkov, Prog. Part. Nucl. Phys. **33**, 1 (1994); doi:10.1016/0146-6410(94)90043-4.
11. M. K. Volkov and V. L. Yudichev, Phys. Part. Nucl. **31**, 282 (2000); arXiv:hep-ph/9906371 [hep-ph].
12. M. Buballa, Phys. Rept. **407**, 205 (2005); doi:10.1016/j.physrep.2004.11.004; arXiv:hep-ph/0402234 [hep-ph].
13. M. K. Volkov and A. E. Radzhabov, Phys.-Uspekhi **49**, 551 (2006); doi:10.1070/PU2006v049n06ABEH0005905; arXiv:hep-ph/0508263 [hep-ph].
14. M. K. Volkov and A. B. Arbuzov, Phys.-Uspekhi **60**(7), 643 (2017); doi:10.3367/UFNe.2016.11.037964.
15. M. K. Volkov, A. A. Pivovarov, and K. Nurlan, Symmetry **14**(2), 308 (2022); doi:10.3390/sym14020308; arXiv:2201.03951 [hep-ph].
16. M. K. Volkov, M. Nagy, and V. L. Yudichev, Nuovo Cim. A **112**, 225 (1999); doi:10.1007/BF03035844; arXiv:hep-ph/9804347 [hep-ph].
17. G. 't Hooft, G. Isidori, L. Maiani, A. D. Polosa, and V. Riquer, Phys. Lett. B **662**, 424 (2008); doi:10.1016/j.physletb.2008.03.036; arXiv:0801.2288 [hep-ph].
18. J. D. Weinstein and N. Isgur, Phys. Rev. Lett. **48**, 659 (1982); doi:10.1103/PhysRevLett.48.659.
19. H. J. Lee, N. I. Kochelev, and Y. Oh, Phys. Rev. D **87**(11), 117901 (2013); doi:10.1103/PhysRevD.87.117901; arXiv:1303.0610 [hep-ph].
20. N. N. Achasov, Nucl. Phys. A **675**, 279C (2000); doi:10.1016/S0375-9474(00)00266-9; arXiv:hep-ph/9910540 [hep-ph].
21. H. A. Ahmed and C. W. Xiao, Phys. Rev. D **101**(9), 094034 (2020); doi:10.1103/PhysRevD.101.094034; arXiv:2001.08141 [hep-ph].
22. M. K. Volkov, K. Nurlan, and A. A. Pivovarov, arXiv:2210.10557 [hep-ph].
23. J. P. Lees, V. Poireau, V. Tisserand et al. (BaBar Collaboration), Phys. Rev. D **104**(7), 072002 (2021); doi:10.1103/PhysRevD.104.072002; arXiv:2106.05157 [hep-ex].
24. M. K. Volkov and C. Weiss, Phys. Rev. D **56**, 221 (1997); doi:10.1103/PhysRevD.56.221; arXiv:hep-ph/9608347 [hep-ph].
25. M. K. Volkov, Phys. Atom. Nucl. **60**, 1920 (1997); arXiv:hep-ph/9612456 [hep-ph].
26. M. Suzuki, Phys. Rev. D **47**, 1252 (1993); doi:10.1103/PhysRevD.47.1252.
27. M. K. Volkov and A. A. Osipov, Sov. J. Nucl. Phys. **41**, 500 (1985); JINR-E2-84-298.
28. B. A. Li, Phys. Rev. D **55**, 1436 (1997); doi:10.1103/PhysRevD.55.1436; arXiv:hep-ph/9606402 [hep-ph].
29. D. M. Li, B. Ma, and H. Yu, Eur. Phys. J. A **26**, 141 (2005); doi:10.1140/epja/i2005-10155-6; arXiv:hep-ph/0509215 [hep-ph].
30. L. S. Geng, E. Oset, L. Roca, and J. A. Oller, Phys. Rev. D **75**, 014017 (2007); doi:10.1103/PhysRevD.75.014017; arXiv:hep-ph/0610217 [hep-ph].
31. H. Y. Cheng, PoS Hadron **2013**, 090 (2013); doi:10.22323/1.205.0090; arXiv:1311.2370 [hep-ph].
32. R. L. Workman, V. D. Burkert, V. Crede et al. (Particle Data Group), PTEP **2022**, 083C01 (2022); doi:10.1093/ptep/ptac097.
33. L. von Detten, F. Noël, C. Hanhart, M. Hoferichter, and B. Kubis, Eur. Phys. J. C **81**(5), 420 (2021); doi:10.1140/epjc/s10052-021-09169-7; arXiv:2103.01966 [hep-ph].
34. A. Garmash, K. Abe, H. Aihara et al. (Belle Collaboration), Phys. Rev. D **71**, 092003 (2005);

- doi:10.1103/PhysRevD.71.092003;
arXiv:hep-ex/0412066 [hep-ex].
35. R. Aaij, B. Adeva, M. Adinolfi et al. (LHCb Collaboration), Phys. Rev. D **90**(7), 072003 (2014); doi:10.1103/PhysRevD.90.072003; arXiv:1407.7712 [hep-ex].
36. R. Aaij, C.A. Beteta, B. Adeva et al. (LHCb Collaboration), Phys. Rev. Lett. **123**(23), 231802 (2019); doi:10.1103/PhysRevLett.123.231802; arXiv:1905.09244 [hep-ex].
37. A.E. Bondar, V.V. Anashin, V.M. Aulchenko et al. (Charm-Tau Factory Collaboration), Phys. Atom. Nucl. **76**, 1072 (2013); doi:10.1134/S1063778813090032.
38. Q. Luo and D. Xu, doi:10.18429/JACoW-IPAC2018-MOPML013.
39. E. Kou, P. Urquijo, W. Altmannshofer et al. (Belle-II Collaboration), PTEP **2019**(12), 123C01 (2019); Erratum: PTEP **2020**(2), 029201 (2020); doi:10.1093/ptep/ptz106; arXiv:1808.10567 [hep-ex].

Декомпозиция статического потенциала в $SU(3)$ глюодинамике

В. Г. Борняков¹⁾, И. Е. Кудров

Федеральное государственное бюджетное учреждение Институт физики высоких энергий имени А. А. Логунова
Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”, 142281 Протвино, Россия

Поступила в редакцию 3 февраля 2023 г.

После переработки 3 февраля 2023 г.

Принята к публикации 6 февраля 2023 г.

После фиксации максимальной абелевой калибровки в решеточной $SU(3)$ глюодинамике мы раскладываем неабелево калибровочное поле на абелево поле, созданное абелевыми монополями, и модифицированное неабелево поле с удаленными монополями. Затем мы вычисляем соответствующие статические потенциалы в фундаментальном представлении и показываем, что сумма этих потенциалов аппроксимирует неабелевый статический потенциал с хорошей точностью на всех рассматриваемых расстояниях. Проводится сравнение с другими способами разложения.

DOI: 10.31857/S1234567823050026, EDN: pwqwkd

1. Введение. Мы численно исследуем решеточную $SU(3)$ глюодинамику в максимальной абелевой калибровке (МАК) и рассматриваем декомпозицию решеточного калибровочного поля $U_\mu(x) \in SU(3)$

$$U_\mu(x) = U_\mu^{\text{mod}}(x)U_\mu^{\text{mon}}(x), \quad (1)$$

где $U_\mu^{\text{mon}}(x)$ – компонента калибровочного поля, создаваемая абелевыми монополями (определение будет дано позже) и $U_\mu^{\text{mod}}(x)$ – соответственно, компонента без монополей, которую мы называем модифицированным калибровочным полем. Под модификацией мы понимаем удаление абелевых монополей.

Этот вид разложения изучался ранее в $SU(2)$ глюодинамике в работе [1]. Было показано, что в то время как монополярная компонента $U_\mu^{\text{mon}}(x)$ воспроизводит линейную часть статического потенциала, безмонополярная компонента $U_\mu^{\text{mod}}(x)$ создает чисто кулоновский потенциал, и их сумма обеспечивает хорошее приближение исходного статического потенциала на всех расстояниях:

$$V(R) \approx V_{\text{mod}}(R) + V_{\text{mon}}(R). \quad (2)$$

Недавно в работе [2] было показано, что это приближение становится лучше, когда шаг решетки уменьшается, указывая на возможность того, что соотношение (2) становится точным в континуальном пределе. Также было показано, что (2) удовлетворяется и в $SU(2)$ КХД. В настоящей работе мы расширяем исследование разложения (1) на более реалистичный случай – $SU(3)$ глюодинамику.

Хорошо известно [3–7], что после выполнения абелевой проекции в МАК [8, 9], абелево натяжение струны, полученное из абелева статического потен-

циала очень близко к неабелеву натяжению струны. Это наблюдение, подтвержденное в глюодинамике и в КХД, подтверждает концепцию абелевой доминантности (обзор см., например, [10–12]). Далее было обнаружено [5, 13, 14], что так называемый монополярный статический потенциал также имеет натяжение струны, близкое к неабелеву. Эти наблюдения согласуются с предположением, что монополярные степени свободы ответственны за конфайнмент [15, 16].

Интересный вопрос заключается в том, какова роль других, т.е. безмонополярных, степеней свободы. Результаты, полученные в $SU(2)$ глюодинамике, позволяют предположить, что они ответственны за кулоновскую часть статического потенциала как на малых, так и на больших расстояниях. Это говорит о том, что если на малых расстояниях $U_\mu^{\text{mod}}(x)$ дает пертурбативный вклад в статический потенциал, то на больших расстояниях он дает непертурбативный вклад.

Следует отметить, что калибровочно ковариантное разложение было введено в работах [17] и [18] и развито далее в работах [19–24], см. обзор [25]. Численные результаты, демонстрирующие аналоги абелевой доминантности и монополярной доминантности в рамках этого подхода были получены в [26]. Было бы интересно проверить, работает ли разложение на монополярные и безмонополярные компоненты в этом подходе.

Разложение, отличное от уравнения (1), было рассмотрено в $SU(3)$ глюодинамике после фиксации МАК [7]. Использовалось обычное разложение калибровочного поля на абелевы и недиагональные компоненты:

¹⁾e-mail: vitaly.borniyakov@ihep.ru

$$U_\mu(x) = U_\mu^{\text{offd}}(x)U_\mu^{\text{Abel}}(x) \quad (3)$$

и было проверено соответствующее разложение для статического потенциала:

$$V(R) \approx V_{\text{offd}}(R) + V_{\text{Abel}}(R). \quad (4)$$

Мы сравним наши результаты для декомпозиции (4) с результатами из работы [7] в разделе 3.

Разложение, подобное (2) для статического потенциала в максимальной центральной калибровке,

$$V(R) \approx V_{\text{cent}}(R) + V_{\text{mod,cent}}(R), \quad (5)$$

соответствующее разложению калибровочного поля на центральную и модифицированную (безвихревую) компоненты:

$$U_\mu(x) = U_\mu^{\text{mod,cent}}(x)U_\mu^{\text{cent}}(x), \quad (6)$$

было впервые проверено в решеточной $SU(2)$ глюодинамике [1] и недавно изучено в решеточной КХД [27]. Мы прокомментируем эти численные результаты позже в разделе 3.

2. Декомпозиция калибровочного поля. Мы рассматриваем решеточную $SU(3)$ глюодинамику после фиксации МАК. Мы используем определение МАК, введенное для решеточной $SU(N)$ теории в [28] и позже уточненное для $SU(3)$ группы в [29]. МАК фиксируется путем максимизации функционала

$$F = \frac{1}{8V} \sum_{x,\mu} \left[|U_\mu^{(11)}(x)|^2 + |U_\mu^{(22)}(x)|^2 + |U_\mu^{(33)}(x)|^2 - 1 \right] \quad (7)$$

относительно локальных калибровочных преобразований $g(x)$ решеточного калибровочного поля,

$$U_\mu(x) \rightarrow U_\mu^g(x) = g(x)^\dagger U_\mu(x) g(x + \hat{\mu}). \quad (8)$$

Для фиксации калибровки был использован алгоритм имитированного отжига с тремя случайными калибровочными копиями. Этот алгоритм был впервые использован для фиксации МАК в случае $SU(2)$ глюодинамики [5] и затем был распространен на $SU(3)$ группу в [30]. Детали реализации алгоритма имитированного отжига в случае калибровочной группы $SU(3)$ можно найти в работе [31]. Для функционала F мы получили среднее значение $\langle F \rangle = 0.73388(1)$, которое можно сравнить со значением $\langle F \rangle = 0.7322(2)$, приведенным в [7, 32]. Чем больше значение максимизированного функционала, тем лучше фиксация калибровки. Разница в $\langle F \rangle$ обусловлена эффектами грибовских копий и подразумевает, что различие между нашими результатами и

результатами из работы [7] для калибровочно зависящих величин, таких как абелево натяжение струны, может быть существенным, как подробно обсуждается в [31].

Абелева проекция означает разложение (3) неабелева решеточного калибровочного поля $U_\mu(x) \in SU(3)$ на абелево поле $U_\mu^{\text{Abel}}(x) \in U(1) \times U(1)$ и неабелево поле $U_\mu^{\text{offd}}(x) \in SU(3)/U(1) \times U(1)$. Абелево поле $U_\mu^{\text{Abel}}(x)$ определяется как

$$U_\mu^{\text{Abel}}(x) = \text{diag} \left(u_\mu^{(1)}(x), u_\mu^{(2)}(x), u_\mu^{(3)}(x) \right), \quad (9)$$

где

$$u_\mu^{(a)}(x) = e^{i\theta_\mu^{(a)}(x)} \quad (10)$$

с

$$\theta_\mu^{(a)}(x) = \arg \left(U_\mu(x) \right)_a - \frac{1}{3} \sum_{b=1}^3 \arg \left(U_\mu(x) \right)_b \Big|_{\text{mod } 2\pi} \quad (11)$$

такой, что

$$\theta_\mu^{(a)}(x) \in \left[-\frac{4}{3}\pi, \frac{4}{3}\pi \right]. \quad (12)$$

Это определение абелевой проекции $u_\mu(x)$ максимизирует выражение $|\text{Tr} (U_\mu^\dagger(x) u_\mu(x))|^2$ [33]. Абелевы калибровочные поля, в свою очередь, могут быть разложены на монопольную (сингулярную) и фотонную (обычную) компоненты:

$$\theta_\mu^{(a)}(x) = \theta_\mu^{(a)\text{mon}}(x) + \theta_\mu^{(a)ph}(x). \quad (13)$$

Монопольная компонента определяется следующим образом [34]:

$$\theta_\mu^{(a)\text{mon}}(x) = 2\pi \sum_y D(x-y) \partial_\alpha^- m_{\alpha\mu}^{(a)}(y), \quad (14)$$

где целые числа $m_{\mu\nu}^{(a)}(x)$ обозначают сингулярную часть абелевого плакета (дираковский плакет), ∂_α^- — обратная решеточная производная, а $D(x)$ обозначает решеточный кулоновский пропагатор. Тогда $U_\mu^{\text{mon}}(x)$, введенная в (1), определяется как

$$U_\mu^{\text{mon}}(x) = \text{diag} \left(e^{i\theta_\mu^{(1)\text{mon}}(x)}, e^{i\theta_\mu^{(2)\text{mon}}(x)}, e^{i\theta_\mu^{(3)\text{mon}}(x)} \right). \quad (15)$$

3. Декомпозиция статического потенциала. Мы вычислили $R \times T$ прямоугольные вильсоновские петли $W(R, T)$, $W_{\text{mon}}(R, T)$ и $W_{\text{mod}}(R, T)$ с использованием решеточных калибровочных полей $U_\mu(x)$, $U_\mu^{\text{mon}}(x)$, $U_\mu^{\text{mod}}(x)$, введенных выше. Для вычисления соответствующих статических потенциалов $V(R)$, $V_{\text{mon}}(R)$ и $V_{\text{mod}}(R)$ была использована

процедура сглаживания [35]. Вычисления проводились с решеточным действием Вильсона при $\beta = 6.0$ на решетках 24^4 с использованием 5000 статистически независимых конфигураций решеточного калибровочного поля. Шаг решетки при таком значении голой константы связи определяется значением $a/r_0 = 0.186(4)$ [36], где $r_0 = 0.5$ Фм называется параметром Зоммера. На рисунке 1 и в табл. 1

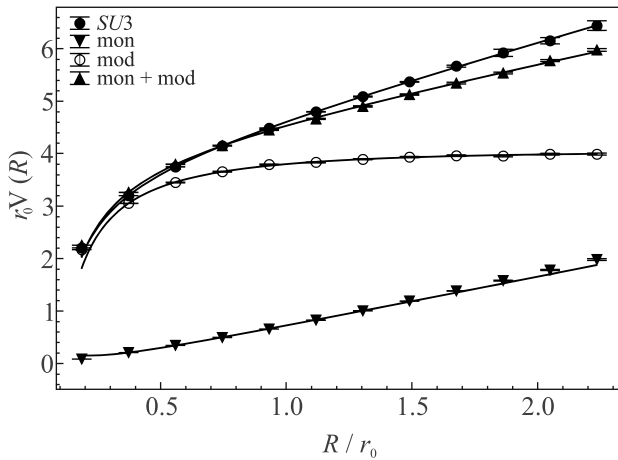


Рис. 1. Сравнение неабелевого потенциала $V(R)$ (заполненные кружки) с суммой $V_{\text{mod}}(R) + V_{\text{mon}}(R)$ (заполненные треугольники) для $\beta = 6.0$. $V_{\text{mod}}(r)$ (пустые кружки) и $V_{\text{mon}}(r)$ (заполненные перевернутые треугольники) также изображены. Сплошные кривые показывают подгонку к корнелльскому потенциалу $V_0 + \alpha/R + \sigma R$

Таблица 1. Параметры потенциала, полученные фитированием функцией $V_0 + \alpha/R + \sigma R$

Потенциал	σr_0^2	α	$r_0 V_0$
$V(R)$	1.34(2)	-0.34(1)	3.61(2)
$V_{\text{mon}}(R)$	0.99(1)	0.09(1)	-0.36(2)
$V_{\text{mod}}(R)$	0	-0.42(1)	4.22(1)
$V_{\text{mon}}(R) + V_{\text{mod}}(R)$	0.94(1)	-0.39(1)	3.98(2)

представлены наши результаты. Видно, что аналогично $SU(2)$ глюодинамике [2], монополярный потенциал $V_{\text{mon}}(R)$ почти идеально линейный с небольшой кривизной на малых расстояниях, в то время как модифицированный потенциал $V_{\text{mod}}(R)$ хорошо описывается кулоновским потенциалом. Также видно, что соотношение (2) справедливо на всех расстояниях с наиболее существенным расхождением около 10 % на больших расстояниях. Очевидно, что это расхождение в основном связано с довольно низким наклоном $V_{\text{mon}}(R)$. Как мы уже упоминали, в $SU(2)$ глюодинамике было обнаружено, что с уменьшением шага

решетки согласие в (2) улучшается существенно. В будущем это следует проверить в $SU(3)$ глюодинамике.

Далее мы переходим к нашим результатам для разложения (4), предложенного в работе [7]. Эти результаты представлены на рис. 2. На этом рисунке

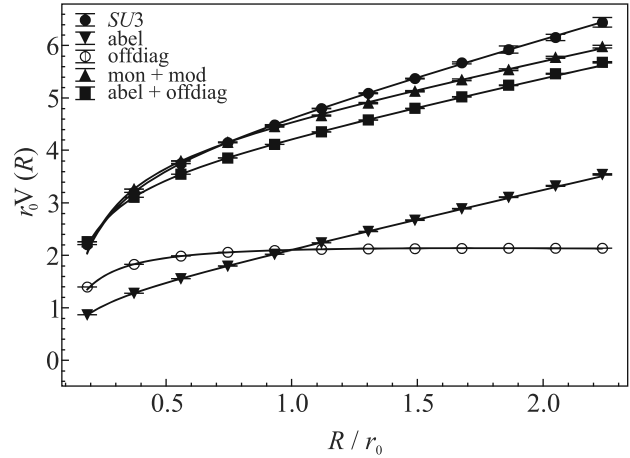


Рис. 2. Сравнение неабелева потенциала $V(R)$ (заполненные кружки) с суммой $V_{\text{mod}}(R) + V_{\text{mon}}(R)$ (заполненные треугольники) и суммой $V_{\text{abel}}(R) + V_{\text{offd}}(R)$ (заполненные квадраты). Также изображены $V_{\text{offd}}(r)$ (заполненные перевернутые треугольники) и $V_{\text{abel}}(r)$ (пустые кружки). Сплошные кривые показывают подгонку к корнелльскому потенциалу

мы сравниваем исходный потенциал $V(R)$ с разложениями (2) и (4). Можно видеть, что разложение (2) явно работает лучше. Оба разложения должны быть проверены в пределе нулевого шага решетки. В любом случае, наши результаты явно противоречат заключению, сделанному в работе [7], что разложение (4) удовлетворяется очень хорошо уже при $\beta = 6.0$. Сравнивая наши результаты, представленные в данной работе, с результатами, полученными на решетках 16^4 , мы обнаружили, что эффекты конечного объема малы и не могут быть причиной отличия наших результатов от результатов работы [7]. Следует отметить, что в работе [7] использовалась несколько иная процедура абелевой проекции, но, как утверждалось в работе [37], различия между этими двумя процедурами абелевой проекции пренебрежимо малы. Таким образом, мы понимаем, что причиной полученного расхождения с результатами работы [7] является разница в качестве фиксации калибровки. В прошлом было показано, что эффекты грибовских копий для калибровочно инвариантных величин могут быть весьма существенными [31, 37].

Далее мы хотим сделать замечание о декомпозиции (5). Впервые это соотношение было изучено в [1] с использованием прямой центральной калибровки в $SU(2)$ глюодинамике. Был сделан вывод, что это разложение выполняется с существенно меньшей точностью, чем разложение (2), прежде всего, из-за малого значения натяжения струны, обеспечиваемого центральной вихревой компонентой. Для решения проблемы низкого натяжения струны, полученного после центральной проекции, был сформулирован новый подход к определению центральной калибровки и успешно применен к $SU(2)$ глюодинамике в работе [38]. Недавно это разложение было изучено в решеточной КХД с легкими кварками [27]. Было обнаружено, что в этой теории натяжение струны в центральной проекции находится в очень хорошем согласии с физическим натяжением струны. С другой стороны, модифицированная компонента $U_{\mu}^{\text{mod,cent}}(x)$ создает статический потенциал, который не совместим с кулоновским потенциалом. Таким образом, разложение (5) не работает на малых расстояниях.

4. Выводы. Есть несколько предложений по разложению калибровочного поля на компоненты, описывающие (в основном) либо инфракрасную, либо ультрафиолетовую физику. К ним относятся калибровочно ковариантная декомпозиция Чо [17–24], два разложения в МАК – уравнения (1) и (3) и одно разложение в максимальной центральной калибровке (6). В этой работе мы расширили наше исследование разложения в МАК на монополярную и модифицированную (безмонополярную) компоненты в $SU(2)$ глюодинамике и $SU(2)$ КХД [2] на случай $SU(3)$ глюодинамики. Мы представили наши результаты для одного значения шага решетки, чтобы продемонстрировать, что разложение работает достаточно хорошо. Наши результаты, полученные в [2] для $SU(2)$ глюодинамики, дают надежду, что разложение (1) будет работать еще лучше, когда шаг решетки будет уменьшен.

Наши результаты для другого разложения в МАК, (3), противоречат результатам из работы [7] и также показывают, что разложение (1) работает лучше. Есть еще одна причина считать разложение (1) лучше мотивированным физически, чем разложение (3). Разложение (1) отделяет монополярную компоненту $U_{\mu}^{\text{mon}}(x)$, которая отвечает за линейную часть статического потенциала, а также за нарушение киральной симметрии. Модифицированная (безмонополярная) компонента $U_{\mu}^{\text{mod}}(x)$ дает чисто кулоновский потенциал, который согласуется с исходной кулоновской частью как на малых, так и на больших

расстояниях. В то же время в разложении (3) кулоновская часть распределяется неестественным образом между двумя компонентами: абелевой и недиагональной.

Очевидно, что изучение обоих разложений для разных значений шага решетки необходимо для того, чтобы понять их судьбу в пределе нулевого шага решетки (континуальном пределе). Это тема нашей будущей работы.

Компьютерное моделирование проводилось на Центральном Linux-кластере Федерального государственного бюджетного учреждения Институт физики высоких энергий имени А.А. Логунова Национального исследовательского центра “Курчатовский институт” (Протвино) и Linux-кластере Курчатова комплекса теоретической и экспериментальной физики Национального исследовательского центра “Курчатовский институт” (Москва).

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант # 20-02-00737 А.

1. V. G. Bornyakov, M. I. Polikarpov, G. Schierholz, T. Suzuki, and S. N. Syritsyn, Nucl. Phys. B Proc. Suppl. **153**, 25 (2006); arXiv:hep-lat/0512003 [hep-lat].
2. V. G. Bornyakov, I. Kudrov, and R. N. Rogalyov, Phys. Rev. D **105**(5), 054519 (2022); arXiv:2101.04196 [hep-lat].
3. T. Suzuki and I. Yotsuyanagi, Phys. Rev. D **42**, 4257 (1990).
4. S. Hioki, S. Kitahara, S. Kiura, Y. Matsubara, O. Miyamura, S. Ohno, and T. Suzuki, Phys. Lett. B **272**, 326 (1991); Erratum ibid.: Phys. Lett. B **281**, 416 (1992).
5. G. S. Bali, V. Bornyakov, M. Muller-Preussker, and K. Schilling, Phys. Rev. D **54** (1996) 2863.
6. V. Bornyakov and M. Muller-Preussker, Nucl. Phys. Proc. Suppl. **106**, 646 (2002).
7. N. Sakumichi and H. Suganuma, Phys. Rev. D **90**(11), 111501 (2014).
8. A. S. Kronfeld, M. L. Laursen, G. Schierholz, and U. J. Wiese, Phys. Lett. B **198**, 516 (1987).
9. G. 't Hooft, Nucl. Phys. B **190**, 455 (1981).
10. M. N. Chernodub and M. I. Polikarpov, in *Confinement, Duality and Non-perturbative Aspects of QCD*, Plenum Press, Cambridge (1998), p. 387; hep-th/9710205.
11. R. W. Haymaker, Phys. Rept. **315**, 153 (1999).
12. J. Greensite, Prog. Part. Nucl. Phys. **51**, 1 (2003).
13. H. Shiba and T. Suzuki, Phys. Lett. B **333**, 461 (1994).
14. J. D. Stack, S. D. Neiman, and R. J. Wensley, Phys. Rev. D **50**, 3399 (1994).

15. G. 't Hooft, in *High Energy Physics*, ed. by A. Zichichi, EPS International Conference, Palermo (1975).
16. S. Mandelstam, *Phys. Rep.* **23**, 245 (1976).
17. Y.M. Cho, *Phys. Rev. D* **21**, 1080 (1980); doi:10.1103/PhysRevD.21.1080.
18. Y.S. Duan and M.L. Ge, *Sinica Sci.* **11**, 1072 (1979).
19. L. Faddeev and A.J. Niemi, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1624 (1999).
20. L.D. Faddeev and A.J. Niemi, *Nucl. Phys. B* **776**, 38 (2007).
21. S.V. Shabanov, *Phys. Lett. B* **458**, 322 (1999).
22. S.V. Shabanov, *Phys. Lett. B* **463**, 263 (1999).
23. K.I. Kondo, T. Murakami, and T. Shinohara, *Prog. Theor. Phys.* **115**, 201 (2006).
24. S. Kato, K.I. Kondo, T. Murakami, A. Shibata, T. Shinohara, and S. Ito, *Phys. Lett. B* **632**, 326 (2006).
25. K.I. Kondo, S. Kato, A. Shibata, and T. Shinohara, *Phys. Rept.* **579**, 1 (2015).
26. S. Kato, K.I. Kondo, and A. Shibata, *Phys. Rev. D* **91**(3), 034506 (2015).
27. J.C. Biddle, W. Kamleh, and D.B. Leinweber, *Phys. Rev. D* **106**(5), 054505 (2022); doi:10.1103/PhysRevD.106.054505; arXiv:2206.00844 [hep-lat].
28. A.S. Kronfeld, G. Schierholz, and U.J. Wiese, *Nucl. Phys. B* **293**, 461 (1987).
29. F. Brandstater, U.J. Wiese, and G. Schierholz, *Phys. Lett. B* **272**, 319 (1991).
30. V. Bornyakov, G. Schierholz, and T. Streuer, *Nucl. Phys. B Proc. Suppl.* **106**, 676 (2002); doi:10.1016/S0920-5632(01)01813-8; arXiv:hep-lat/0111018 [hep-lat].
31. V.G. Bornyakov, H. Ichie, Y. Koma, Y. Mori, Y. Nakamura, D. Pleiter, M.I. Polikarpov, G. Schierholz, T. Streuer, H. Stüben, and T. Suzuki, *Phys. Rev. D* **70**, 074511 (2004); doi:10.1103/PhysRevD.70.074511; arXiv:hep-lat/0310011 [hep-lat].
32. H. Ohata and H. Suganuma, *Phys. Rev. D* **102**(1), 014512 (2020).
33. V.G. Bornyakov, M.N. Chernodub, H. Ichie, Y. Koma, Y. Mori, Y. Nakamura, M.I. Polikarpov, G. Schierholz, A.A. Slavnov, H. Stüben, T. Suzuki, P.V. Uvarov, and A.I. Veselov, *Phys. Rev. D* **71**, 114504 (2005); doi:10.1103/PhysRevD.71.114504; arXiv:hep-lat/0401014 [hep-lat].
34. J. Smit and A. van der Sijs, *Nucl. Phys. B* **355**, 603 (1991).
35. M. Albanese, F. Costantini, G. Fiorentini et al. (APE), *Phys. Lett. B* **192**, 163 (1987).
36. S. Necco and R. Sommer, *Nucl. Phys. B* **622**, 328 (2002).
37. J.D. Stack, W.W. Tucker, and R.J. Wensley, *Nucl. Phys. B* **639**, 203 (2002); doi:10.1016/S0550-3213(02)00537-0; arXiv:hep-lat/0110196 [hep-lat].
38. R. Golubich and M. Faber, *Particles* **3**(2), 444 (2020).

Каналы филаментов аксиально-несимметричных оптических вихрей на длине волны 1800 нм в кристалле LiF

С. А. Шленов^{+*1)}, В. О. Компанец*, В. П. Кандидов⁺⁺, С. В. Чекалин*, Е. В. Васильев⁺

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

^{*} Институт спектроскопии РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 декабря 2022 г.

После переработки 23 января 2023 г.

Принята к публикации 24 января 2023 г.

Экспериментально и численно исследован процесс формирования множества филаментов и плазменных каналов в оптическом вихре фемтосекундной длительности. Впервые экспериментально зарегистрировано продольное распределение треков центров окраски протяженностью 1 см в кристалле LiF, записанных аксиально-несимметричным пучком в одноимпульсном режиме. Показано, что разделенные областью фазовой дислокации две горячие точки на кольцевом профиле вихревого пучка при достаточном превышении пиковой мощности над критической формируют последовательности треков центров окраски, каждая из которых в поперечном сечении пучка локализована в окрестности исходной горячей точки. С ростом энергии импульсов возникают вторичные филаменты и связанные с ними треки. Численно выполнена оценка параметров фемтосекундных филаментов во фториде лития.

DOI: 10.31857/S1234567823050038, EDN: pwzlxn

1. Введение. Нелинейный режим распространения фемтосекундного излучения с образованием филаментов успешно используется для микромодификации прозрачных твердотельных диэлектриков [1, 2]. Явление филаментации возникает при превышении критической мощности самофокусировки и, как правило, сопровождается появлением плазменных каналов, изменение показателя преломления в которых препятствует неограниченному росту интенсивности излучения в нелинейном фокусе. В результате формируется протяженная область, в которой при распространении импульса сохраняется высокая плотность энергии излучения – образуется филамент [3]. Особый интерес вызывает филаментация импульсов длинноволновой части ближнего инфракрасного диапазона ($\lambda > 1500$ нм). В плавленом кварце и фторидах такое излучение попадает в область аномальной дисперсии групповой скорости, где самофокусировка пучка сопровождается самокомпрессией излучения во времени, что приводит к появлению так называемых “световых пуль” — квазиустойчивых волновых пакетов с высокой пространственно-временной локализацией излучения большой интенсивности [4–6].

В прикладных задачах формирования плазменных каналов заданной конфигурации и модифика-

ции прозрачных диэлектриков важным фактором является возможность управления филаментацией фемтосекундного излучения. Идея создания виртуального волновода множеством плазменных каналов, расположенных на окружности [7], теоретически исследована в [8, 9]. Для формирования цилиндрического множества филаментов в [10] применялось управляемое деформируемое зеркало, которое формировало кольцевой пучок с нулевой интенсивностью на оси. Использование для создания плазменных волноводов вихревых пучков [11, 12] привлекательно тем, что их винтовой фазовый фронт препятствует “затеканию” поля на оптическую ось. В условиях самовоздействия излучения эта особенность сохраняется и тем самым поддерживается кольцевое распределение множества плазменных каналов, которое формирует цилиндрический волновод [13].

При аномальной дисперсии групповой скорости в вихревом пучке формируются кольцевые световые пули с высокой локализацией излучения. Ранее кольцевые пули оптического вихря были исследованы теоретически в рамках аксиально симметричного приближения, справедливого для начального этапа формирования филаментов [14]. Азимутальная неустойчивость излучения в среде с кубичной нелинейностью приводит к нарушению осевой симметрии и формированию множества связанных филаментов при сохранении кольцевой структуры пучка [15, 16].

¹⁾ e-mail: shlenov@physics.msu.ru

Кроме этого, в реальных условиях эксперимента аксиальная симметрия может быть нарушена уже на этапе формирования оптического вихря в силу пространственной неоднородности выходного пучка и используемого фазового транспаранта [17]. В [18] филаментация аксиально-несимметричного оптического вихря с топологическим зарядом $m = 1$ на длине волны 1800 нм исследована методом лазерной колорации в кристалле LiF [19]. Высокая чувствительность этого метода позволила в режиме одиночного импульса записать треки долгоживущих центров окраски и измерить длину непрерывной части трека. Генерация центров окраски и плазмы в филаменте являются многофотонными процессами с близкими порядками многофотонности. Это позволяет по трекам центров окраски исследовать расположение и параметры плазменных каналов при филаментации фемтосекундных импульсов [20, 21].

В настоящей работе экспериментально и численно исследован процесс формирования множества связанных филаментов и плазменных каналов в оптическом вихре фемтосекундной длительности. Методом лазерной колорации зарегистрированы треки филаментов в кристалле LiF при различных энергиях фемтосекундного импульса. Получены оценки пиковой интенсивности, поверхностной плотности энергии (флюенса) и максимальной концентрации плазмы в каналах филамента.

2. Эксперимент. Для экспериментального исследования множества связанных филаментов была использована лабораторная установка, созданная на основе фемтосекундного лазерного комплекса ИСАН [18]. Аксиально-несимметричный оптический вихрь с топологическим зарядом $m = 1$ формировался из гауссова пучка с помощью спиральной фазовой пластинки [17] и последующей фокусировкой собирающей линзой с фокусным расстоянием 34.5 см. Длительность импульсов на входе в образец кристалла LiF составляла 67 фс по уровню e^{-1} . На рисунке 1 представлено типичное распределение поверхностной плотности энергии (флюенса) в оптическом вихре на входе в кристалл. В сечении пучка отчетливо видны две горячие точки различной плотности энергии (два ярких пятна), разделенные областью минимального флюенса, в центре которой находится фазовая дислокация. В этих горячих точках сдвиг фазы светового поля близок к 180 градусам.

Для записи треков центров окраски на вход образца подавались фокусированные вихревые пучки. При этом фокальная плоскость собирающей линзы смещалась внутрь кристалла на расстояние 0.7 см, что с учетом значения показателя преломления LiF

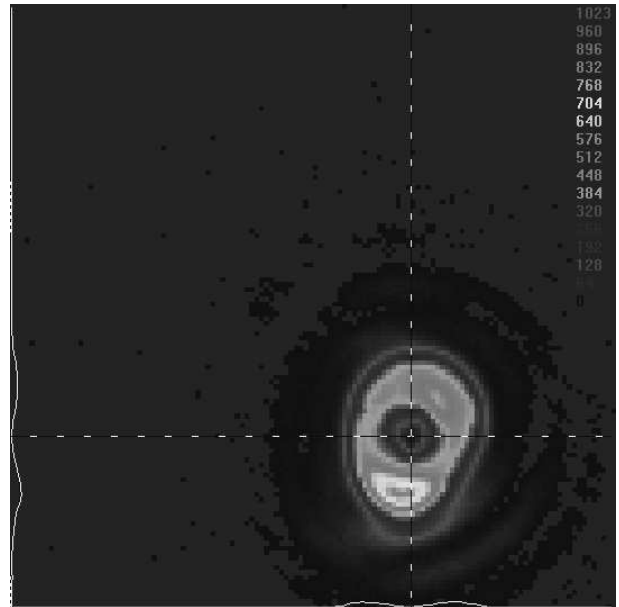


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зарегистрированное профилометром изображение оптического вихря на длине волны 1800 нм на расстоянии 0.7 см от фокальной плоскости собирающей линзы с фокусным расстоянием 34.5 см. Фазовая дислокация находится на пересечении штриховых линий. Размер области на рисунке составляет 1×1 мм

на длине волны $\lambda = 1800$ нм $n_0 = 1.38$ давало геометрическую фокусировку пучка на выходную грань кристалла. Регистрация записанных филаментами оптического вихря в кристалле LiF треков долгоживущих центров окраски производилась цифровой камерой Nikon D800 через боковую и выходную грани образца при его подсветке непрерывным излучением на длине волны 455 нм. Длина кристалла вдоль оси распространения вихревого пучка составляла $l = 1$ см (рис. 2), что позволяло проводить продольную

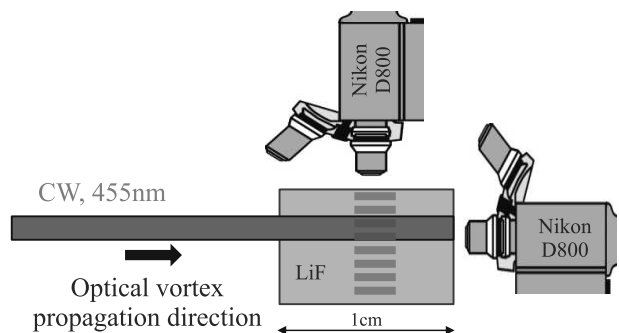


Рис. 2. (Цветной онлайн) Схема записи и регистрации люминесценции наведенных оптическим вихрем центров окраски в кристалле LiF

регистрацию треков филаментов через микроскоп с объективом $\times 10$ и числовой апертурой $NA = 0.3$.

Появление первых филаментов наблюдалось при начальной энергии импульса 7.5 мкДж. Это значение можно считать пороговым для образования филамента в получаемом на экспериментальной установке вихревом пучке фемтосекундного импульса. Заметим, что независимые оценки пороговой энергии, при которой в рассматриваемом импульсе достигается критическая мощность самофокусировки, по началу генерации видимого излучения суперконтинуума в кристалле LiF большей длины также дали значение 7.5 мкДж.

Энергии в окрестности максимумов двух ярких пятен на рис. 1 отличаются более, чем в два раза, поэтому начало филаментации в каждой из горячих точек происходило на разном расстоянии. Наличие фазовой дислокации препятствует эффективно-му энергообмену между горячими точками, при распространении импульса в нелинейной среде [18]. В результате начальная стадия филаментации происходит независимо в каждой из горячих точек, расположенных на диаметре кольцевого пучка при условии превышения в них критической мощности самофокусировки. Это подтверждает анализ зависимости расстояния до старта филаментации $z_{\text{н}}$ от энергии импульса на основе формулы Марбургера [22], справедливой для гауссовых пучков. Из эксперимента следует, что в импульсе с энергией 7.5 мкДж пиковая мощность в наиболее яркой горячей точке (в нижней части пучка на рис. 1) соответствует критической мощности самофокусировки. В качестве радиуса гауссова пучка примем характерный поперечный масштаб $r_0 = 58$ мкм этой горячей точки.

При определении расстояния до начала филаментации проводилось усреднение по двум одиночным импульсам. Хорошее совпадение зависимости расстояния самофокусировки от энергии импульса, полученной экспериментально, с численными оценками по формуле Марбургера с учетом геометрической фокусировки пучка [23] на расстояние $l = 1$ см в широком диапазоне энергий импульса (рис. 3) косвенно свидетельствует о том, что филаментация в аксиально-несимметричном оптическом вихре действительно развивается независимо в разделенных областью дислокации фазы горячих точках.

С ростом энергии импульса начало филаментации смещается ближе к входной плоскости кристалла, что хорошо видно на рис. 4, где в горизонтальных окнах, выделенных белыми линиями, представлены треки, записанные одиночными импульсами с различной энергией. В импульсах с небольшой энергией

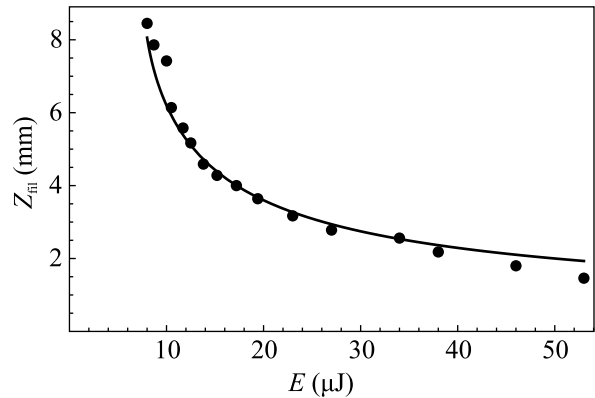


Рис. 3. Расстояние до начала филаментации $z_{\text{н}}$ аксиально-несимметричного оптического вихря в кристалле LiF в зависимости от энергии импульса (точки, эксперимент). Расстояние до нелинейного фокуса, вычисленное по формуле Марбургера для фокусированного на 1 см гауссова пучка радиусом $r_0 = 58$ мкм (сплошная кривая)

до 10.5 мкДж зарегистрирован непрерывный трек, видимая длина которого составляет около 400 мкм. При энергии 11.7 и 12.5 мкДж можно наблюдать слабоинтенсивный короткий трек, находящийся в направлении распространения импульса на расстоянии немного более 2.5 мм от первого. При дальнейшем увеличении энергии импульса растет число треков в направлении распространения импульсов и уменьшается расстояние между ними.

Вторая горячая точка с меньшей энергией является центром зарождения второго филамента, который образуется на большем расстоянии, чем первый. В экспериментах первый раз он наблюдался при энергии импульса 17.2 мкДж на расстоянии примерно 6.5 мм от входной грани кристалла.

При дальнейшем увеличении энергии филамент от этой горячей точки так же, как и от первой, начинается на более близком расстоянии. В импульсе с энергией 23 мкДж координаты центров всех зарегистрированных треков приведены на рис. 5 в двух взаимно ортогональных боковых и во фронтальной проекциях. Красным и синим цветом выделены первичные треки от разных горячих точек. Черные кривые – это треки вторичных филаментов, которые формируются после дефокусировки излучения от первичных филаментов. Первичный трек второй горячей точки и второй трек в окрестности первой горячей точки хорошо различимы на рис. 6b, так как наблюдаются в одном поперечном сечении кристалла одновременно. Поперечный размер трека второго только что образовавшегося филамента значительно меньше поперечного размера трека от первой

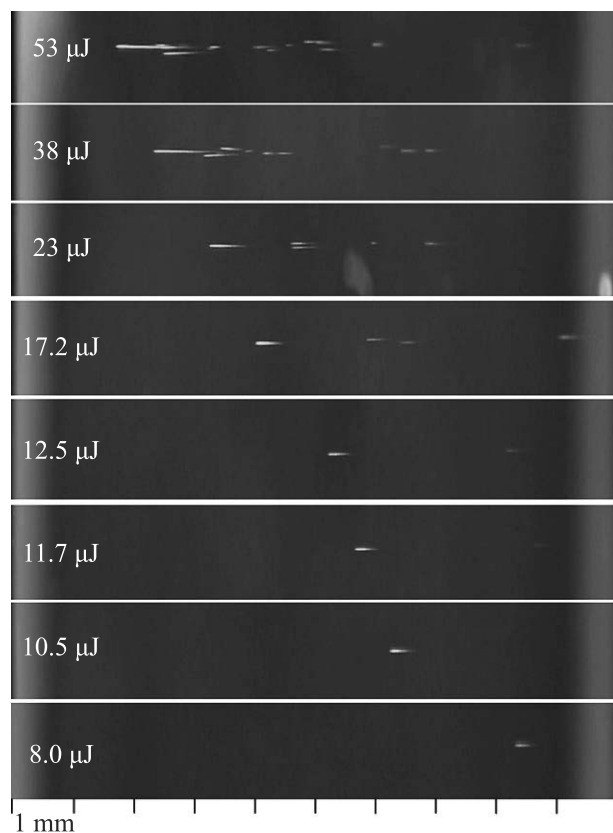


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зарегистрированные с микроскопа увеличенные в поперечном направлении фотографии излучения люминесценции центров окраски, записанных в кристалле LiF длиной 1 см филаментами оптического вихря при различных энергиях импульса (указаны слева). Импульс распространяется слева направо

горячей точки, в которой содержится большая энергия и при записи центров окраски уже проявилась плазменная дефокусировка излучения.

Два филамента, образованные двумя горячими точками на профиле пучка, не взаимодействуют друг с другом, так как разделены областью с фазовой дислокацией [18]. Тем не менее, в поперечном сечении наблюдается вторичный филамент (рис. 6с), местоположение которого определяется интерференцией излучения, расходящегося от плазменного канала первичного филамента, с частью излучения импульса, еще не испытавшего самофокусировку.

Поперечное смещение координат (рис. 5) и изображений (рис. 6) треков на различном расстоянии z обусловлено распределением фазы светового поля в вихревом пучке, а также фокусировкой пучка и небольшим наклоном оптической оси. Нам не удалось зарегистрировать вращение треков центров

окраски, которое должно происходить при филаментации вихревого пучка, и о чем свидетельствуют экспериментальные данные для более протяженных атмосферных трасс [24] и результаты численного моделирования [18]. По оценкам поворот пучка в поперечной плоскости на протяжении непрерывной части трека в условиях нашего эксперимента не превышает 1^0 – 2^0 . Бóльший поворот мог бы наблюдаться на протяжении всего длинного трека, но он формируется в результате последовательного возникновения вторичных филаментов, которые сами по себе имеют достаточно случайный характер, испытывая смещение в поперечнике пучка, не связанное со спиральной фазой. Постановка специального эксперимента с формированием на диаметре пучка двух горячих точек с одинаковой мощностью может улучшить наблюдение вращения филаментов путем регистрации в поперечном сечении пучка поворота оси, соединяющей центры треков окраски от этих двух точек.

При больших энергиях импульса уже первые треки от двух горячих точек могут наблюдаться одновременно в одном поперечном сечении (рис. 4, верхние 2 строчки). В импульсе с энергией 38 мкДж трек от второй горячей точки начинается незадолго до завершения первичного трека от первой горячей точки (рис. 6d). Сбоку от первичных филаментов уже в конце первых треков от обеих горячих точек возникают вторичные филаменты (рис. 6е), которые могут смещаться навстречу друг другу, огибая область фазовой дислокации. Это в итоге приводит к их взаимодействию на кольцевом профиле пучка, при котором возможно частичное сложение энергий при возникновении очередного вторичного филамента (рис. 6f).

Характерная длина первого трека в импульсе с энергией 53 мкДж может превышать 1 мм. Последовательность из 5000 импульсов вызывает накопительный эффект и запись непрерывной серии треков центров окраски, начинающихся вблизи входной грани кристалла и вплоть до выходной грани на расстоянии 1 см.

3. Численное моделирование. Наличие фазовой дислокации в оптическом вихре и, как следствие, независимое формирование филаментов в двух горячих точках его поперечного сечения позволяет выполнить оценку характерных параметров филаментов, используя модель одиночного гауссова пучка. Для оценки концентрации плазмы, пиковой интенсивности и поверхностной плотности энергии (флюенса) в филаментах аксиально-несимметричного оптического вихря в кристалле LiF проведена серия численных экспериментов на основе известной и апробированной ранее математической модели нели-

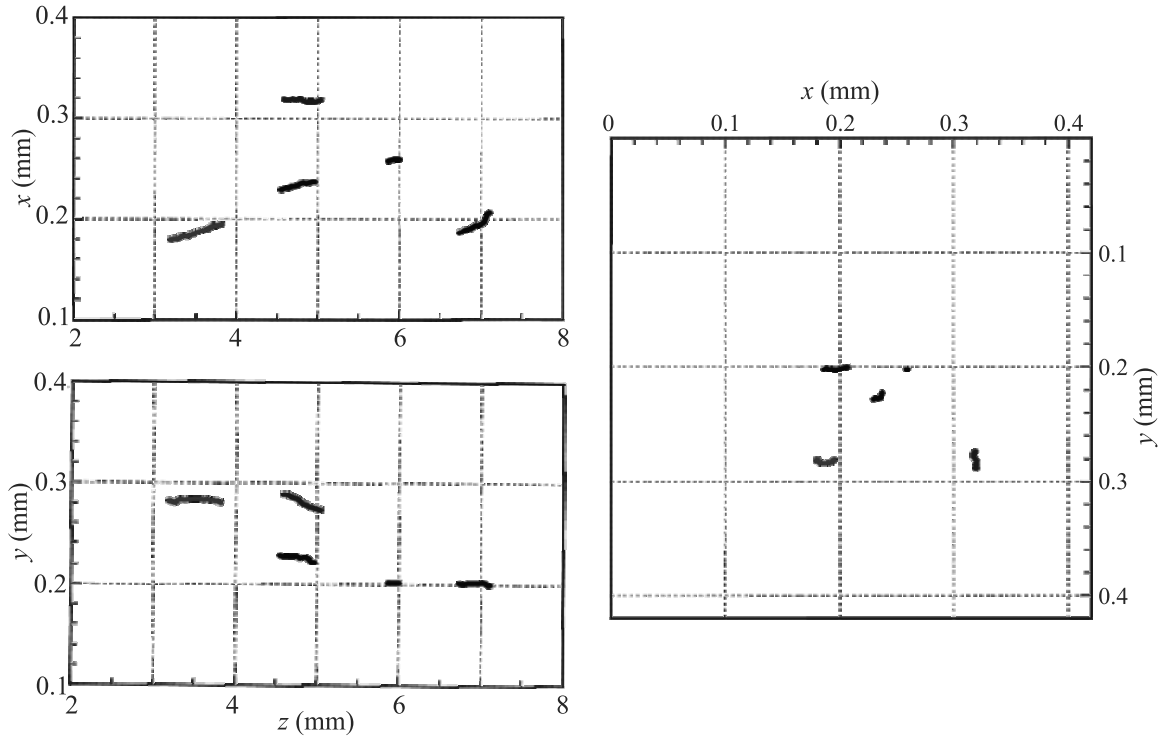


Рис. 5. (Цветной онлайн) Боковые (x, z) , (y, z) (слева) и фронтальная (x, y) (справа) проекции траекторий треков центров окраски, записанных импульсом с энергией 23 мкДж. Цветом выделены начальные треки от первой (красный) и второй (синий) горячих точек. Продольная координата z отсчитывается от входной плоскости кристалла

нейного распространения фемтосекундного импульса в квазиоптическом приближении с учетом оператора волновой нестационарности $\hat{T}$ [14, 15, 25]:

$$2ik_0 \frac{\partial A}{\partial z} = \hat{T}^{-1} \Delta_{\perp} A + \hat{T}^{-1} \frac{1}{2\pi} \times \int_{-\infty}^{+\infty} \left(k^2 (\omega_0 + \Omega) - (k_0 + k_1 \Omega)^2 \right) \tilde{A} \exp\{i\Omega t\} d\Omega + \frac{2k_0^2}{n_0} \hat{T} \Delta n_k \left(|A|^2 \right) A + \frac{2k_0^2}{n_0} \hat{T}^{-1} \Delta n_{pl} (N_e) A + i \hat{T}^{-2} \sigma A - ik_0 \left(\alpha \left(|A|^2 \right) + \delta \right) A, \quad (1)$$

где $A(\mathbf{r}, t, z)$ – комплексная амплитуда светового поля, $\tilde{A}(\mathbf{r}, \Omega, z)$ – ее частотный спектр. Слагаемые в правой части уравнения распространения (1) учитывают дифракцию пучка, дисперсию импульса (в спектральном пространстве с использованием формулы Селлмейера для показателя преломления), керровскую нелинейность (мгновенную и инерционную составляющие), плазменную нелинейность, обратное тормозное поглощение, нелинейное поглощение и экстинкцию. Для расчета плазменной добавки к показателю преломления среды $\Delta n_{pl}(N_e)$ использовалось самосогласованное с полем A кинетическое

уравнение для концентрации свободных электронов плазмы $N_e(\mathbf{r}, t, z)$:

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = R_E \left(|A|^2 \right) (N_0 - N_e) + \nu_i \left(|A|^2 \right) N_e - \beta N_e, \quad (2)$$

в котором учитывались полевая ионизация, скорость которой $R_E \left(|A|^2 \right)$ определялась в соответствии с моделью Келдыша, лавинная ионизация и рекомбинация.

Рассматривалось распространение в кристалле LiF фокусированного на 1 см гауссова пучка радиуса $r_0 = 58$ мкм с гауссовой огибающей импульса длительностью 67 фс на длине волны 1800 нм с различной пиковой мощностью. На рисунке 7 представлены пиковые значения концентрации электронов N_e и поверхностной плотности энергии (флюенса) F . При изменении пиковой мощности импульса от 1.07 до 7.0 критической мощности самофокусировки (соответствует изменению энергии импульса в эксперименте от 8 до 53 мкДж) наблюдается почти трехкратный рост концентрации N_e , при этом флюенс возрастает в 1.7 раза. Максимальная концентрация плазмы в канале филамента достигает значений 0.04 % от числа нейтралов N_0 , максимальное значение флюенса составляет 2.75 Дж/см². Заметим, что максимальное

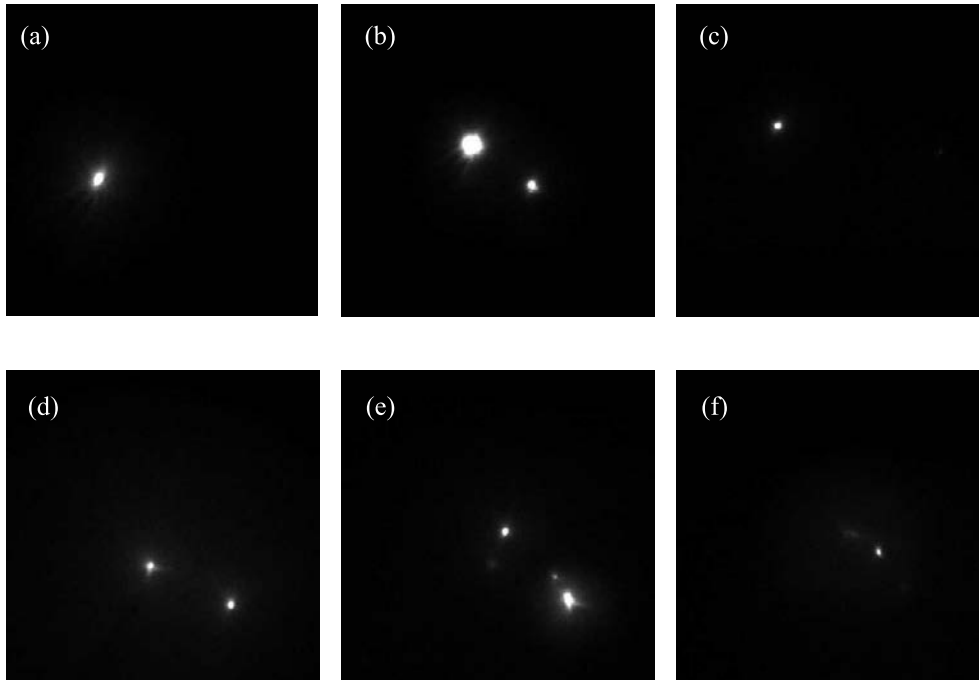


Рис. 6. Сечения треков центров окраски, записанных одиночным импульсом с энергией 23 мкДж (a)–(c) и 38 мкДж (d)–(f), на расстояниях $z = 3.50$ (a), 4.90 (b), 6.60 (c), 3.25 (d), 3.50 (e) и 3.95 мм (f) от входной грани кристалла LiF. Размер каждой области на рисунке 0.42×0.42 мм

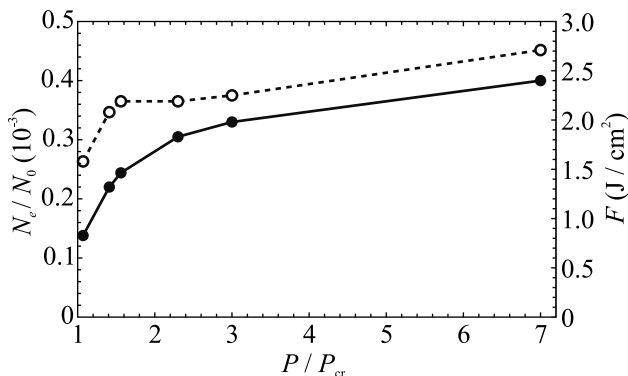


Рис. 7. Численные оценки максимальной концентрации электронов N_e (точки) и максимального значения флюенса F (полые кружки) в зависимости от превышения пиковой мощности над критической в горячей точке аксиально-несимметричного оптического вихря

значение пиковой интенсивности импульса слабо зависит от его начальной энергии и составляет около 10^{14} Вт/см².

4. Заключение. Таким образом, впервые экспериментально зарегистрировано продольное распределение треков центров окраски протяженностью 1 см в кристалле LiF, записанных аксиально-несимметричным оптическим вихрем на длине волны 1800 нм в одиночном фемтосекундном импульсе. Показано, что два максимума интенсив-

ности светового поля, сдвинутого по фазе на 180 градусов, при достаточном превышении пиковой мощности над критической формируют треки из центров окраски, каждый из которых в поперечном сечении пучка локализован в окрестности исходной горячей точки. С ростом энергии импульсов возникают вторичные филаменты и наведенные ими треки центров окраски. При многократном превышении (в 7–8 раз) пиковой мощности над критической длина непрерывной части трека может превышать 1 мм. Численно выполнена оценка параметров филаментов и показано, что при практически постоянном значении максимальной интенсивности около 10^{14} Вт/см² с ростом энергии импульса возрастает пиковое значение поверхностной плотности энергии и, в большей степени, концентрация плазмы в филаменте. Кривые зависимости этих величин от пиковой мощности импульса имеют тенденцию к насыщению. При превышении критической мощности в 7 раз концентрация плазмы достигает 0.04 % от нейтральных молекул.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 18-12-00422.

1. K. Yamada, W. Watanabe, T. Toma, K. Itoh, and J. Nishi, Opt. Lett. **26**, 19 (2001).

2. W. Watanabe, T. Asano, K. Yamada, K. Itoh, and J. Nishii, *Opt. Lett.* **28**, 2491 (2003).
3. В.П. Кандидов, С.А. Шленов, О.Г. Косарева, *Квантовая электроника* **39**, 205 (2009).
4. L. Berge and S. Skupin, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 113902 (2008).
5. В.П. Кандидов, Е.Д. Залозная, А.Е. Дормидонов, В.О. Компанец, С.В. Чекалин, *Квантовая электроника* **52**, 233 (2022).
6. Е.Д. Залозная, А.Е. Дормидонов, В.О. Компанец, С.В. Чекалин, В.П. Кандидов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 787 (2021).
7. A. Dormidonov, V. Valuev, V. Dmitriev, S. Shlenov, and V. Kandidov, *Proc. SPIE* **6733**, 67332S (2007).
8. В.В. Валуев, А.Е. Дормидонов, В.П. Кандидов, С.А. Шленов, В.Н. Корниенко, В.А. Черепенин, *Радиотехника и электроника* **55**, 222 (2010).
9. M. Alshershby, H. Zuoqiang, and L. Jingquan, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **45**, 265401 (2012).
10. M. Châteauneuf, S. Payeur, J. Dubois, and J.-C. Kieffer, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 091104 (2008).
11. L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, and J. P. Woerdman, *Phys. Rev. A.* **45**, 8185 (1992).
12. В.В. Котляр, А.А. Ковалев, *Ускоряющиеся и вихревые лазерные пучки*, Физматлит, М. (2018), 256 с.
13. S. Fu, B. Mahieu, A. Mysyrowicz, and A. Houard, *Opt. Lett.* **47**, 5228 (2022).
14. E. V. Vasil'ev, S. A. Shlenov, and V. P. Kandidov, *Laser Phys. Lett.* **15**, 115402 (2018).
15. J. M. Soto-Crespo, D. R. Heatley, and E. M. Wright, *Phys. Rev. A* **44**, 636 (1991).
16. A. Vincotte and L. Berge, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 193901 (2005).
17. С.А. Шленов, Е.В. Васильев, С.В. Чекалин, В.О. Компанец, Р.В. Скиданов, *ЖЭТФ* **159**, 400 (2021).
18. С.А. Шленов, В.О. Компанец, А.А. Дергачев, В.П. Кандидов, С.В. Чекалин, Ф.И. Сойфер, *Квантовая электроника* **52**, 322 (2022).
19. Е.Ф. Мартынович, А.В. Кузнецов, А.В. Кирпичников, Е.В. Пестряков, С.Н. Багаев, *Квантовая электроника* **43**, 463 (2013).
20. А.В. Кузнецов, А.Е. Дормидонов, В.О. Компанец, С.В. Чекалин, В.П. Кандидов, *Квантовая электроника* **51**, 670 (2021).
21. А.Е. Дормидонов, Е.Д. Залозная, В.О. Компанец, С.В. Чекалин, В.П. Кандидов, *Письма в ЖЭТФ* **116**, 434 (2022).
22. J. H. Marburger, *Progress in Quantum Electronics* **4**, 35 (1975).
23. A. A. Dergachev, A. A. Ionin, V. P. Kandidov, D. V. Mokrousova, L. V. Seleznev, D. V. Sinitsyn, E. S. Sunchugasheva, and S. A. Shlenov, *Laser Phys.* **25**, 065402 (2015).
24. P. Polynkin, C. Ament, and J. V. Moloney, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 023901 (2013).
25. T. Brabec and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3282 (1997).

Наблюдение пространственно-временной самокомпрессии импульсов в одномерных массивах волноводов, изготовленных методом лазерной записи

А. А. Архипова^{+,*}, С. А. Журавицкий^{+,×}, Н. Н. Скрябин^{+,×}, И. В. Дьяконов^{+,×}, А. А. Калинин^{+,×},
С. П. Кулик^{+,×}, С. В. Чекалин⁺, Я. В. Карташов⁺, В. Н. Задков⁺, В. О. Компанец^{+,1)}

⁺ Институт спектроскопии РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

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

[×] Центр квантовых технологий, Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 12 января 2023 г.

После переработки 27 января 2023 г.

Принята к публикации 28 января 2023 г.

Исследованы особенности нелинейного распространения высокоинтенсивных импульсов коротковолнового инфракрасного диапазона в протяженных одномерных массивах волноводов с различными пространственными периодами, сформированных в плавленом кварце методом лазерной записи. Экспериментально зарегистрирована более чем десятикратная самокомпрессия фемтосекундных импульсов до длительности в несколько периодов светового поля.

DOI: 10.31857/S123456782305004X, EDN: pxahst

1. Введение. Одним из наиболее интересных явлений в нелинейной оптике является самовоздействие высокоинтенсивного излучения при распространении в средах с керровской нелинейностью. Особый интерес представляет ситуация, когда волновой пакет локализуется как в пространстве, так и во времени, в результате точного баланса между фокусирующей нелинейностью среды, дифракцией и аномальной дисперсией и образуются так называемые световые пули – трехмерные солитонные состояния, распространяющиеся в нелинейной среде без искажения [1]. Однако эти состояния в однородной кубической нелинейной среде являются динамически неустойчивыми и могут коллапсировать или расплываться, в зависимости от типа возмущений, вызывающих развитие неустойчивости [1]. При этом сильное временное сжатие импульса на начальных стадиях коллапса может приводить к весьма существенному влиянию на последующую эволюционную динамику временных эффектов высшего порядка, таких как дисперсия высших порядков, рамановский эффект, самоукручение импульса и т.д. В результате, при распространении в изотропной конденсированной среде пространственно-временная локализация световых пульс, как правило, наблюдается лишь на протяжении долей миллиметра, после чего эти со-

стояния разрушаются [2]. Однако в пространственно-неоднородных фокусирующих средах определенных конфигураций, таких как фотонно-кристаллические волокна или массивы волноводов с небольшой глубиной модуляции показателя преломления, эта дистанция может быть кардинально увеличена, поскольку поперечная периодическая модуляция показателя преломления среды оказывает стабилизирующее воздействие и может привести к подавлению коллапса даже для трехмерных волновых пакетов, как показано в работах [3–5]. При нелинейном распространении длинных импульсов в таких средах может наблюдаться их значительная (по теоретическим предсказаниям – до десятков раз) самокомпрессия [6, 7]. Одним из самых важных свойств этих сред является возможность формирования в них устойчивых трехмерных световых пульс, распространяющихся без искажения на достаточно большие расстояния, см. обзоры [8–10]. Рост интереса к распространению излучения и его пространственно-временной локализации в неоднородных (в том числе периодических) оптических структурах с небольшой глубиной модуляции показателя преломления связан, прежде всего, со значительным прогрессом в технологиях их изготовления, которые включают методы лазерной записи [11], методы, при которых полые области в фотонных кристаллах волоконного типа заполняются нелинейными материалами с пока-

¹⁾ e-mail: kompanetsvo@isan.troitsk.ru

зателями преломления, близкими к показателю преломления материала волокна [12], различные технологии формирования многомодовых или структурированных оптических волокон [13] и многие другие, что позволяет реализовать практически произвольные массивы длиной до 15–20 см. Так, трехмерные фундаментальные [12] и вихревые световые пучки [14] были впервые зарегистрированы в сотовых массивах волноводов (изготовленных на основе фотонных кристаллов волоконного типа). Возможность изготовления оптических делителей на основе массивов волноводов с различной структурой, переключателей, пространственных мультиплексоров [15], а также бурное развитие топологической фотоники в волноводных системах открывает новые перспективы для контроля и управления пространственно-временной локализацией света в таких структурах [16]. При этом конструирование сложных волноводных систем, потенциально поддерживающих устойчивые пространственно-временные нелинейные состояния, требует оптимизации влияния нелинейности не только на пространственную, но и на временную трансформацию волнового пакета. В настоящей работе экспериментально исследованы особенности трансформации пространственно-временной структуры излучения в одномерных массивах волноводов, изготовленных в плавленом кварце методом лазерной записи. Ранее пространственно-временная локализация в подобных записанных одномерных структурах на длинах волн, соответствующих режиму аномальной дисперсии групповых скоростей, экспериментально не исследовалась, поэтому ее наблюдение открывает новые горизонты для изучения распространения волновых пакетов в широком спектре статических и динамических массивов (включая топологически нетривиальные структуры), которые могут быть изготовлены с использованием данной технологии. Нами обнаружена значительная самокомпрессия импульсов при их одновременной пространственной локализации, что говорит о потенциальной возможности формирования световых пучков в одномерных массивах волноводов.

2. Эксперимент. Для изготовления одномерных массивов волноводов мы использовали технологию фемтосекундной лазерной записи. Волноводы формировались в образце из плавленого кварца JGS1 длиной 100 мм, сфокусированным излучением второй гармоники волоконного лазера Antaus (Avesta) (длина волны 515 нм, длительность импульсов 280 фс, частота повторения 1 МГц). В процессе записи образец перемещался относительно фокуса с постоянной скоростью с помощью высокоточной си-

стемы позиционирования (Aerotech), в результате чего были записаны наборы идентичных параллельных волноводов с контролируемыми межволноводными расстояниями (периодами). Для исследования влияния параметров волноводов на пространственно-временную локализацию импульсов были изготовлены два одномерных массива из 9 волноводов с разными контрастами показателя преломления. Первый массив волноводов с высоким контрастом (анизотропное изменение $\Delta n = 1.3 \cdot 10^{-3}$, оцененное из размеров моды, потери 0.8 дБ/см) записывался при фокусировке асферической линзой с числовой апертурой $NA = 0.55$ (сильное воздействие), энергии импульсов 175 нДж и скорости записи 1 мм/с, а второй массив с низким контрастом (практически изотропное изменение, оцененное в $\Delta n = 4.2 \cdot 10^{-4}$, потери 0.3 дБ/см) записывался при фокусировке асферической линзой с числовой апертурой $NA = 0.4$ (слабое воздействие), энергии импульсов 400 нДж и скорости записи 0.25 мм/с. Периоды массивов были подобраны так, чтобы константы связи между соседними волноводами были одинаковыми и равными $C = 0.25 \text{ см}^{-1}$ (здесь константа связи определяет длину перекачки $L = \pi/2C$ мощности из возбужденного волновода в соседний, если волноводов всего два, в то время как в периодическом массиве она определяет скорость дискретной дифракции [16] при одноканальном возбуждении). Поскольку диаметр поля моды волновода уменьшается с ростом контраста, а константа связи определяется перекрытием мод соседних волноводов, для реализации одинаковых констант связи в двух массивах подобранные периоды составляли 44 и 100 мкм, для массива с высоким и низким контрастом соответственно. Микрофотографии двух массивов приведены на рис. 1 вместе с соответствующими экспериментально измеренными профилями мод волноводов, из которых состоят эти структуры.

При исследовании распространения излучения инфракрасного (ИК) диапазона в данных массивах использовалась линейно поляризованная сигнальная волна параметрического усилителя TOPAS (Light Conversion) с диапазоном перестройки 1240–1600 нм, длительностью импульсов 40–80 фс при энергии до 300 мкДж и частоте следования импульсов 1 кГц. Для получения максимальной пространственной локализации волнового пакета в исследуемых массивах в диапазоне начальных длительностей 100–1000 фс в фокальной плоскости однорешеточного $4f$ стретчер-компрессора в режиме компенсации линейного chirpa, при помощи амплитудной маски или регулируемой щели изменялась спектральная ширина излучения. Регистрация выходного распределения осу-

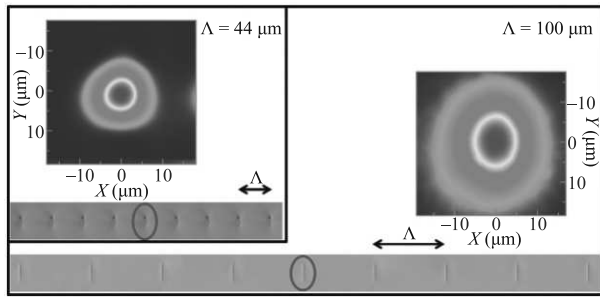


Рис. 1. (Цветной онлайн) Размеры выходной моды излучения из волновода и микрофотографии торцов образца для массива из волноводов с высоким контрастом ($\Delta n = 1.3 \cdot 10^{-3}$) с периодом 44 мкм (слева), и массива из волноводов с низким контрастом ($\Delta n = 4.2 \cdot 10^{-4}$) с периодом 100 мкм (справа и снизу). Кружком отмечен возбуждаемый в экспериментах волновод в массиве

ществовалась InGaAs камерой ИК диапазона, длительность входного и выходного излучения измерялась автокоррелятором одиночных импульсов ASF-20 (Avesta), в то время как спектры регистрировались InGaAs спектрометром ATP8000 (Optosky). Для регистрации пространственно-временного распределения на выходе из массивов волноводов использовалась кросскорреляционная система регистрации [17, 18], подробно описанная в работе [12]. В этой схеме выходное ИК излучение при помощи широкополосного отражающего делителя коллинеарно сводилось с опорным 45 фс излучением титан-сапфировой системы в кристалле β -бората бария толщиной 10 мкм. Изменение задержки между опорными 800 нм и исследуемыми ИК импульсами позволяло получать на CCD камере после кристалла распределение интенсивности генерации суммарной частоты при их временной кросс-корреляции. Применение для генерации суммарной частоты тонкого кристалла, обладающего широким синхронизмом, и использование мощного опорного импульса позволяют регистрировать пространственно-временную динамику ИК импульсов в широком спектральном диапазоне при выходных энергиях в каждом волноводе, не превышающих единиц нДж.

3. Результаты. Пространственно-временная локализация света в наших массивах возможна благодаря тому, что фокусирующая керровская нелинейность плавленого кварца одновременно подавляет дифракцию в пространстве и дисперсионное распыливание во времени в режиме аномальной дисперсии групповых скоростей, при наличии рефракции в неоднородном профиле показателя преломления (тем самым, пространственная и временная эволю-

ция оказываются связанными за счет нелинейности материала). Поперечная модуляция показателя преломления качественно изменяет характер дифракции волнового пакета при низких энергиях. В этом режиме перекрытие волновых полей мод в соседних волноводах приводит к перекачке энергии между ними, или дискретной дифракции, проявляющейся в формировании двух расходящихся пространственных максимумов интенсивности. При этом во времени низкоэнергетичный импульс расплывается, оставаясь колоколообразным в любой пространственной точке. Скорость дискретной дифракции определяется константой связи C , и поэтому она была практически одинакова в двух записанных массивах. Это видно из нижнего ряда рис. 2 (см. распределения для 30 нДж), на котором представлены экспериментально измеренные профили выходного ИК излучения из массивов с высоким и низким контрастом при фокусировке в центральный волновод фемтосекундного излучения на длине волны 1400 нм, лежащей в области слабой аномальной дисперсии кварца. С ростом энергии импульса самовоздействие, которое наиболее сильно выражено вблизи центра импульса, приводит к появлению нелинейного самоиндуцированного “дефекта” в периодическом массиве, что замедляет пространственную дифракцию в наиболее интенсивных частях импульса, при этом на низкоинтенсивных хвостах импульса темп дискретной дифракции остается прежним. В результате, в интегральных (усредненных по времени) пространственных распределениях, приведенных на рис. 2, можно наблюдать возрастающую с ростом энергии импульса концентрацию света в центральном волноводе, при изначально достаточно сильно выраженных хвостах, типичных для картины с дискретной дифракцией. При достижении определенных пороговых значений энергии (250 нДж в массиве с высоким контрастом и 1400 нДж в массиве с низким контрастом) достаточно резко начинает проявляться нелинейная пространственная локализация, подобная наблюдавшейся в массивах Гедопированных квадратных волноводов, технологически внедренных в подложку из плавленого кварца [19]. Стоит отметить, что временная компрессия импульсов в нашей системе максимальна при уровнях энергии, соответствующих началу пространственной локализации (см. рис. 3).

Дальнейшее увеличение энергии приводит к сильной локализации излучения практически в одном возбуждаемом волноводе (верхние распределения на рис. 2 для энергий 1300 и 1700 нДж). Несмотря на одинаковые темпы дискретной дифракции в массивах с разным контрастом при малых входных энергиях

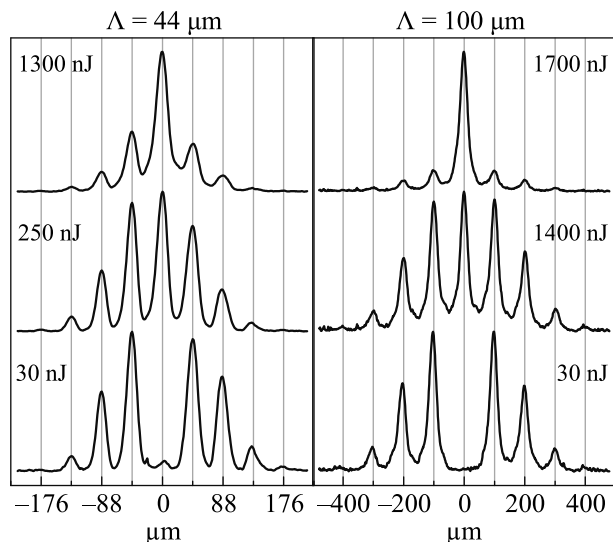


Рис. 2. Выходные распределения интенсивности из массивов с высоким $\Delta n = 1.3 \cdot 10^{-3}$ (слева) и с низким $\Delta n = 4.2 \cdot 10^{-4}$ (справа) контрастом при линейном распространении (30 нДж), на пороге локализации (250 и 1400 нДж) и при максимальной степени пространственной локализации (1300 и 1700 нДж)

ях импульса, нелинейное распространение в них существенно отличается. Оказалось, что для волноводов с высоким контрастом порог для локализации существенно ниже. По-видимому, последнее связано с существенно меньшим размером волноводной моды в этом случае (рис. 1), что приводит к большей эффективной нелинейной добавке к показателю преломления при одинаковой энергии импульсов. В то же время, максимальная степень пространственной локализации, которой удается достичь в массиве волноводов с высоким контрастом, оказывается несколько ниже из-за высоких потерь (последнее может быть также следствием некоторой деградации нелинейного коэффициента n_2 материала при сильном воздействии в процессе записи волноводов). Необходимо отметить, что оптимальная длительность импульсов для достижения максимальной степени локализации в массивах с высоким контрастом показателя преломления составляла 500–750 фс, а степень временной компрессии не превышала 4. При распространении излучения в массиве с низким контрастом оптимальная для локализации длительность входных импульсов на длине волны 1400 нм составляла 252 фс. Несмотря на достаточно высокий порог нелинейной локализации, заметно большая часть излучения концентрируется в центральном волноводе (см. рис. 2, энергия 1700 нДж).

Для исследования спектральной и временной эволюции (рис. 3) на выходе из образца устанавлива-

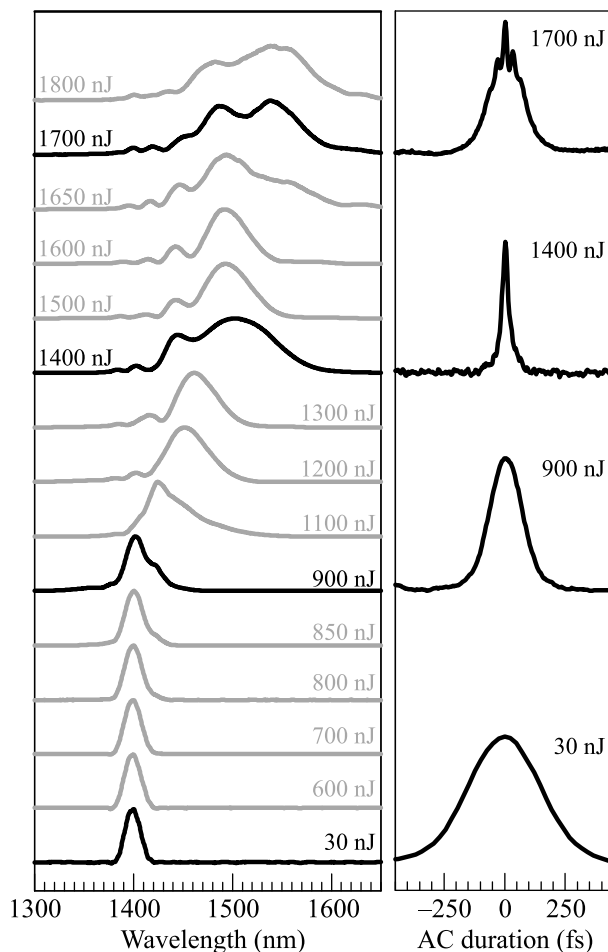


Рис. 3. Нормированные спектры (слева) и автокорреляционные функции (справа) импульсов на выходе из центрального канала массива волноводов с низким контрастом, измеренные при указанных входных энергиях

лась диафрагма диаметром 100 мкм, которая пропускала излучение только из центрального волновода. Результаты измерений демонстрируют динамику уширения спектра импульса одновременно с красным смещением, вызванным самоиндуцированным комбинационным рассеянием, с увеличением входной энергии импульса (рис. 3, слева). При этом в центральном волноводе происходит временная компрессия импульса (рис. 3, справа). При входной энергии 1400 нДж наблюдалась минимальная длительность импульса на выходе, составившая 20.2 фс (FWHM), что соответствует 4 периодам светового поля на длине волны 1500 нм и находится на нижней границе временного разрешения автокоррелятора ASF-20. Таким образом, при прохождении массива волноводов с низким контрастом происходит самосжатие импульса более чем на порядок. Зарегистрированная длительность импульса в боковых каналах совпадала с входной (252 фс) вплоть до энергий 500 нДж.

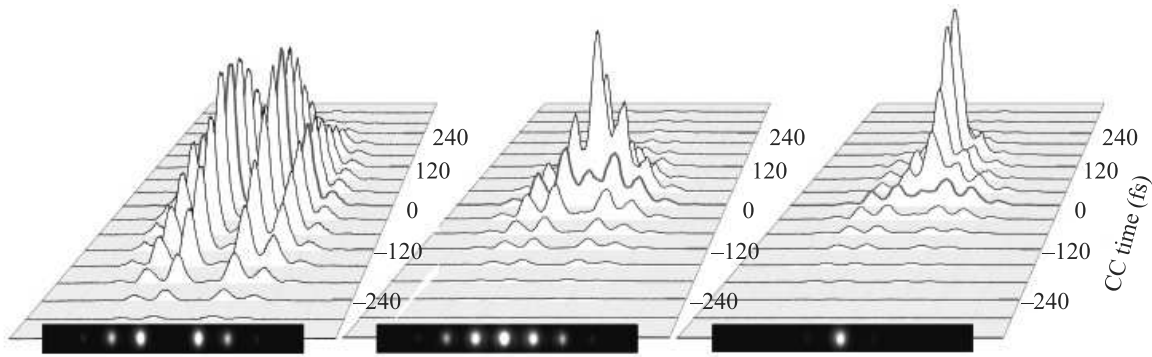


Рис. 4. (Цветной онлайн) Кросскорреляционные измерения выходного излучения из массива с $\Delta n = 4.2 \cdot 10^{-4}$ в зависимости от входной энергии ИК импульсов. Линейный режим (200 нДж, слева), порог локализации (1400 нДж, середина) и максимальная локализация (1700 нДж, справа). Красной линией выделена нулевая задержка между опорным и исследуемым импульсами. В нижнем ряду показаны соответствующие изображения выходных профилей на ИК камере

Дальнейшее увеличение энергии приводит к резкому росту пространственной локализации, когда энергия концентрируется практически в одном канале, при этом импульс может разбиваться на несколько импульсов в результате развития модуляций на исходной широкой временной огибающей. Первая точка временной локализации, которая может быть ассоциирована с формированием световой пули, в центральном волноводе образуется на выходе из образца (см. автокорреляционную функцию на рис. 3 при 1400 нДж). При дальнейшем росте энергии формируется вторая, третья и т.д. (рис. 3 при 1700 нДж) в согласии с численным моделированием [20].

Пространственно-временная динамика, измеренная кросскорреляционным методом в исследуемом массиве волноводов для уровней энергий, соответствующих квазилинейному расплыванию, порогу локализации и максимальной степени пространственной локализации, показана на рис. 4. Красным цветом выделена нулевая задержка между линейно дифрагировавшим ИК импульсом и опорным 45 фс импульсом титан-сапфировой лазерной системы. На левой части рис. 4 представлено линейное пространственно-временное распределение излучения на выходе из массива. Длительность ИК импульса, восстановленного из кросс-корреляции для каждого отдельного волновода, составляет ~ 250 фс и практически совпадает с входной длительностью. В средней части рис. 4 хорошо видна эволюция импульса на пороге пространственной локализации. Излучение в боковых волноводах начинает сжиматься по времени приблизительно до 100 фс, при этом в центральном канале сжатие намного сильнее выражено и происходит позже по времени. Кросскорреляционное измерение с меньшим шагом задержки показало, что длительность

на выходе из центрального волновода не превышает 27 фс при рамановском запаздывании в несколько десятков фемтосекунд. С дальнейшим увеличением энергии входных импульсов видна нелинейная временная локализация с укрупнением заднего фронта импульса и рамановское запаздывание, аналогичное наблюдавшемуся в работе [21].

4. Заключение. Мы продемонстрировали сильную пространственно-временную компрессию ИК излучения, лежащего в области слабой аномальной дисперсии групповых скоростей, в массивах волноводов, изготовленных методом фемтосекундной лазерной записи внутри плавленого кварца. При временном сжатии без дополнительной дисперсионной посткомпрессии более чем на порядок импульсы достигают длительности в несколько периодов светового поля на длинах волн телекоммуникационного диапазона. Данные результаты открывают широкие возможности по разработке массивов волноводов для спектральной трансформации и временной компрессии субпикосекундных импульсов с мкДж энергиями, дальнейших экспериментальных исследований динамики ультракоротких импульсов в топологических коммутационных устройствах и, в частности, возбуждения и распространения устойчивых топологических световых пуль в системах со сложными пространственными структурами, например, динамических волноводных массивах [22].

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (проект # 21-12-00096) в рамках Госзадания FFUU-2022-0004.

1. Y. Silberberg, Opt. Lett. **15**, 1282 (1990).
2. E. D. Zaloznaya, A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin, and V. P. Kandidov, JETP Lett. **113**, 787 (2021).

3. A. B. Aceves, C. De Angelis, A. M. Rubenchik, and S. K. Turitsyn, *Opt. Lett.* **19**, 329 (1994).
4. A. B. Aceves, G. G. Luther, C. De Angelis, A. M. Rubenchik, and S. K. Turitsyn, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 73 (1995).
5. D. Mihalache, D. Mazilu, F. Lederer, Y. V. Kartashov, L.-C. Crasovan, and L. Torner, *Phys. Rev. E* **70**, 055603(R) (2004).
6. A. A. Balakin, S. A. Skobelev, A. V. Andrianov, N. A. Kalinin, and A. G. Litvak, *Opt. Lett.* **44**, 5085 (2019).
7. M. Rehan, G. Kumar, V. Rastogi, D. A. Korobko, and A. A. Sysolyatin, *Laser Phys.* **29**, 025104 (2019).
8. B. A. Malomed, D. Mihalache, F. Wise, and L. Torner, *J. Optics B* **7**, R53 (2005).
9. B. A. Malomed, *Eur. Phys. J. Special Topics* **225**, 2507 (2016).
10. D. Mihalache, *Rom. Rep. Phys.* **69**, 403 (2017).
11. K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto, and K. Hirao, *Opt. Lett.* **21**, 1729 (1996).
12. S. Minardi, F. Eilenberger, Y. V. Kartashov, A. Szameit, U. Röpke, J. Kobelke, K. Schuster, H. Bartelt, S. Nolte, L. Torner, F. Lederer, A. Tünnermann, and T. Pertsch, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 263901 (2013).
13. W. H. Renninger and F. W. Wise, *Nat. Commun.* **4**, 1719 (2013).
14. F. Eilenberger, K. Prater, S. Minardi, R. Geiss, U. Röpke, J. Kobelke, K. Schuster, H. Bartelt, S. Nolte, A. Tünnermann, and T. Pertsch, *Phys. Rev. X* **3**, 041031 (2013).
15. D. N. Christodoulides and E. D. Eugenieva, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 233901 (2001).
16. Y. V. Kartashov, G. E. Astrakharchik, B. A. Malomed, and L. Torner, *Nat. Rev. Phys.* **1**, 185 (2019).
17. M. A. C. Potenza, S. Minardi, J. Trull, G. Blasi, D. Salerno, P. D. Trapani, A. Varanavicius, and A. Piskarskas, *Opt. Commun.* **229**, 381 (2004).
18. S. Minardi, J. Trull, and M. A. C. Potenza, *J. Holography Speckle* **5**, 85 (2009).
19. D. Cheskis, S. Bar-Ad, R. Morandotti, J. S. Aitchison, H. S. Eisenberg, Y. Silberberg, and D. Ross, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 223901 (2003).
20. A. A. Balakin, A. G. Litvak, V. A. Mironov, and S. A. Skobelev, *Laser Phys.* **28**, 045401 (2018).
21. F. Eilenberger, S. Minardi, A. Szameit, U. Röpke, J. Kobelke, K. Schuster, H. Bartelt, S. Nolte, L. Torner, F. Lederer, and A. Tünnermann, *Phys. Rev. A* **84**, 013836 (2011).
22. C. Milian, Y. V. Kartashov, and L. Torner, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 133902 (2019).

Тонкая структура перехода ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ иона Fe^{2+} в селениде цинка¹⁾

В. С. Кривобок^{+,*2)}, Д. Ф. Аминев⁺, Е. Е. Онищенко⁺, В. В. Ушаков⁺, С. И. Ченцов⁺, Д. А. Зазымкина⁺

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

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

Поступила в редакцию 11 ноября 2022 г.

После переработки 31 января 2023 г.

Принята к публикации 31 января 2023 г.

В спектрах низкотемпературной фотолюминесценции кристаллического ZnSe, легированного железом, впервые зарегистрированы бесфононные компоненты перехода ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ между внутренними оболочками иона Fe^{2+} . Показано, что при температурах 5–10 К уверенно регистрируется шесть спектральных компонент, соответствующих дипольно разрешенным переходам между компонентами тонкой структуры ${}^3T_1({}^3H)$ и ${}^5E({}^5D)$, существование которой определяется спин-орбитальным взаимодействием. На основе полученных данных уточнен электронный спектр иона Fe^{2+} в матрице ZnSe.

DOI: 10.31857/S1234567823050051, EDN: pxdtpu

Введение. Селенид цинка, легированный железом (ZnSe:Fe), активно применяется для создания высокоэффективных перестраиваемых [1, 2], мощных [3, 4], импульсных [5] лазеров среднего инфракрасного (ИК) диапазона. Лазерная генерация реализуется на широкой полосе фононных повторений электронного перехода между основным ${}^5E({}^5D)$ и первым возбужденным ${}^5T_2({}^5D)$ уровнями иона Fe^{2+} . Это обеспечивает возможность перестройки лазерного излучения в спектральном диапазоне 3.5–5 мкм. Заметная роль поглощения с участием фононов позволяет использовать для оптической накачки тот же самый переход и, таким образом, добиться высокого КПД [6].

В настоящее время продолжают активные исследования ZnSe:Fe, в основном, направленные на отработку методов легирования [7] и/или постростовой обработки [8]. Отдельное внимание уделяется некоторым фундаментальным вопросам теории лигандов, в частности, обсуждению роли нефелоксестичности (изменение одноэлектронного спектра иона за счет многоэлектронных эффектов, обменного взаимодействия, спин-орбитального взаимодействия 2-го порядка и др.). Так как ключевую роль играет переход ${}^5T_2({}^5D) \rightarrow {}^5E({}^5D)$, основной упор делается на оптические исследования в среднем ИК диапазоне, что, как правило, исключает возможность

картирования оптических свойств с высоким пространственным разрешением и работу с одиночными люминесцентными центрами. В то же время, для ZnSe:Fe известна широкая полоса излучения с максимумом в районе 980 нм [9]. Эксперименты с оптическим детектированием магнитного резонанса однозначно указывают на связь данной полосы с переходом ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ иона Fe^{2+} . Тем не менее, о наблюдении узких линий излучения, которые могли бы быть приписаны бесфононным переходам ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$, ранее не сообщалось. По этой причине оставался не ясным и конкретный механизм возникновения широкой полосы в районе 980 нм – значительная ширина может быть как следствием неоднородного уширения бесфононных линий (*zero phonon lines*, ZPL) и/или фононных повторений, так и результатом неадиабатичности перехода. Как известно, именно анализ линий бесфононных переходов обеспечивает получение детальной информации как о локальной структуре излучающего центра, так и о процессах, происходящих в матрице [10]. Соответствующие подходы применяются для изучения простых [11], комплексных [12, 13] и протяженных [14] дефектов, а также для исследования напряжений в структуре [15].

В данной работе использование низких температур в сочетании с кристаллами ZnSe:Fe высокого качества позволило впервые зарегистрировать шесть бесфононных компонент тонкой структуры для ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ перехода, ширина каждой из которых не превышает 0.3 мэВ. Существование дан-

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

²⁾e-mail: kolob7040@gmail.com

ных компонент исключает заметную роль неадиабатических эффектов, а их энергетическое положение обеспечивает корректное восстановление спектра для Fe^{2+} в матрице ZnSe . Обнаруженные бесфононные линии открывают новые возможности и для прикладных исследований, так как позволяют анализировать тонкую структуру основного состояния ${}^5\text{E}({}^5\text{D})$, используя ближний ИК диапазон, и, как следствие, существенно более чувствительные и удобные кремневые матрицы.

Эксперимент. Для исследований были отобраны образцы поликристаллического ZnSe , легированные Fe методом термодиффузии, которые демонстрировали параметры лазерной генерации, близкие к рекордным [16]. Данные образцы в форме параллелепипедов были вырезаны из поликристаллической дразы с однородной микроструктурой. Затем на поверхность образцов наносилась пленка железа и образцы подвергались отжигу в атмосфере Ar при температуре $1000\text{--}1100^\circ\text{C}$ в течение 240 ч. Измерения люминесценции проводились на гранях параллелепипедов, расположенных перпендикулярно к поверхности, на которую наносилась пленка железа. Вдоль данных граней наблюдался заметный градиент концентрации легирующего железа [17]. Структурная и оптическая характеристика выбранных образцов ZnSe:Fe описаны в работе [18]. Для измерения спектров фотолюминесценции (ФЛ) образцы помещали в проточный гелиевый криостат, работающий в диапазоне температур $5\text{--}300\text{ K}$. Источником возбуждения являлся стационарный одночастотный лазер с длиной волны 472 nm . Для измерений ФЛ в видимом и ближнем ИК диапазоне (до 1050 nm) использовалась установка на основе монохроматора Acton с охлаждаемой кремниевой матрицей. При работе в диапазоне $1000\text{--}1600\text{ nm}$ использовалась установка на основе монохроматора ИКС-31. Для регистрации сигнала использовался фотоэлектронный умножитель Hamamatsu H10330B-75, работающий в режиме счета фотонов. При измерении спектров возбуждения люминесценции в качестве источника возбуждения использовался решеточный монохроматор МДР с галогеновой лампой.

Рисунок 1 иллюстрирует типичный спектр низкотемпературной (5 K) люминесценции исследуемых образцов, записанный в диапазоне $\sim 0.8\text{--}1.4\text{ эВ}$. В отличие от спектра из работы [9], в нем отчетливо видна узкая линия 1.383 эВ . Полуширина этой линии около 0.2 мэВ , что в 2 раза меньше тепловой энергии при температуре 5 K . Наблюдаемая картина излучения характерна для примесей переходных металлов. Это позволяет предположить, что ли-

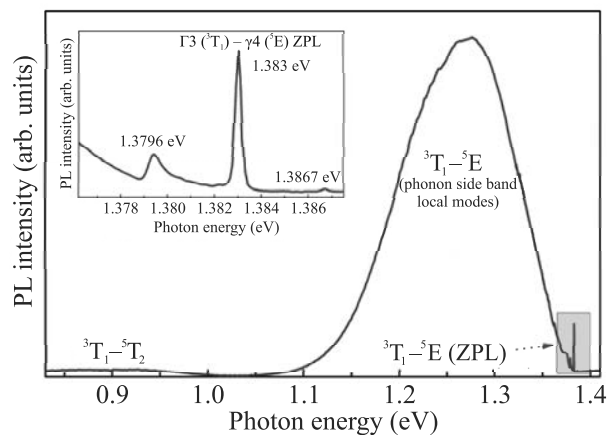


Рис. 1. (Цветной онлайн) Обзорный спектр низкотемпературной ФЛ ZnSe:Fe при 5 K . На вставке приведена область с узким бесфононным переходом вблизи 1.383 эВ

ния 1.383 эВ является бесфононной линией перехода ${}^3\text{T}_1({}^3\text{H}) \rightarrow {}^5\text{E}({}^5\text{D})$.

На вставке рис. 1 отчетливо видны 3 линии излучения – 1.3794 , 1.383 и, более слабая, 1.3867 эВ . В спектре, помимо линий излучения Fe^{2+} , могут присутствовать как узкие линии излучения других переходных металлов (Cr , Co , Mn), так и линии излучения комплексных дефектов на их основе, см. например [19]. Для подтверждения общей природы узких линий и широкой полосы в районе 1.26 эВ были произведены измерения спектров возбуждения люминесценции. Как видно из рис. 2, спектры возбуж-

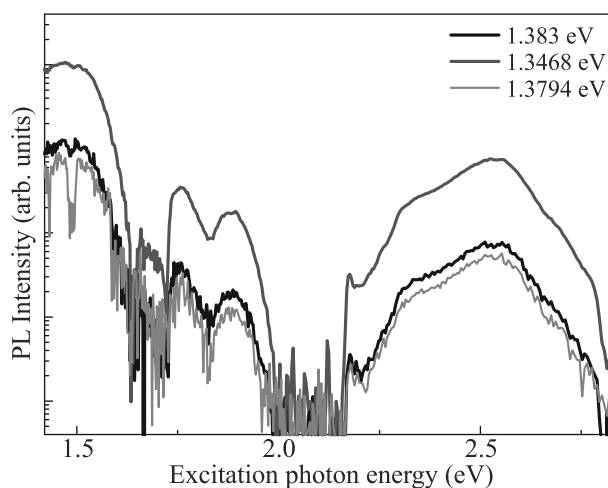


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектр возбуждения ФЛ ZnSe:Fe в спектральных диапазонах: $1.3828\text{--}1.3842\text{ эВ}$ (черная кривая) – основная бесфононная линия; $1.3462\text{--}1.3475\text{ эВ}$ (красная кривая) – интервал на линии фононного повторения; $1.3788\text{--}1.38\text{ эВ}$ (зеленая кривая) – другая бесфононная линия. Температура 5 K

дения люминесценции для фрагментов широкой полосы и узких линий имеют одинаковые особенности, что доказывает их принадлежность к одному излучающему центру.

Следующим шагом является оценка взаимодействия излучающего состояния, ответственного за яркую линию 1.383 эВ, с решеткой ZnSe матрицы. Для этого спектр был скорректирован (была вычтена плавная огибающая, соответствующая широкой полосе), после чего полученную кривую сравнили с графиком плотности фоновых состояний (PDOS) из работы [20]. Нулевая энергия PDOS соответствует линии 1.383 эВ на рис. 3. Из рисунка 3 видно, что

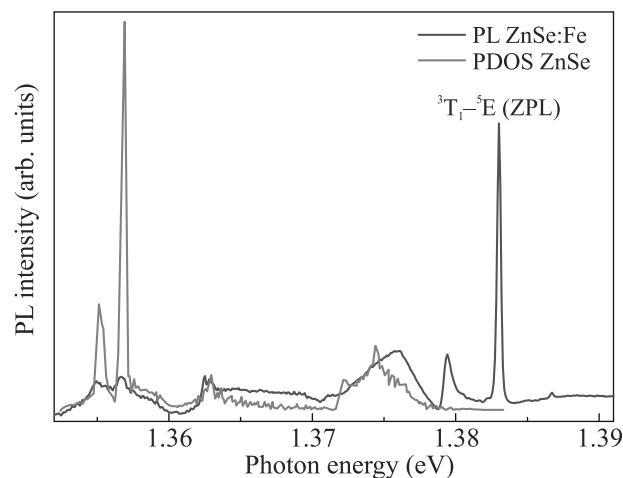


Рис. 3. (Цветной онлайн) Плотность фоновых состояний для ZnSe (зеленая кривая) и скорректированный спектр низкотемпературной ФЛ ZnSe:Fe при 5 K (красная кривая)

подавляющее большинство пиков, наблюдаемых в спектре, коррелирует с экстремумами PDOS ZnSe. Линии 1.374 и 1.372 эВ соответствуют поперечным акустическим фононам на границе зоны Бриллюэна. Продольные акустические фононы с квазимульсом вблизи L точки зоны Бриллюэна формируют пик в районе 1.363 эВ. Дублет 1.355 и 1.357 эВ возникает за счет взаимодействия излучающего состояния с продольным и поперечным оптическим фононом соответственно. Таким образом, данные на рис. 3 доказывают, что линия 1.383 эВ является бесфононным переходом. Отметим, что характер взаимодействия состояния с фононами матрицы типичен для внутрицентровых переходов. При этом линия 1.3794 эВ не является фононным повторением линии 1.383 эВ.

Таким образом, мы обнаружили две узкие бесфононные линии излучения, относящихся к переходу с 3T_1 (3H) на 5E (5D). Для того, чтобы их идентифицировать, рассмотрим структуру нижних

уровней Fe^{2+} . Железо имеет конфигурацию (d^6), основным уровнем которого является 5D , первым возбужденным – 3H . Для создания лазеров используются ионы Fe^{2+} , которые являются примесью замещения на подрешетке Zn. В этом случае примесь находится в тетраэдрическом поле, которое вызывает расщепление исходных уровней. При учете только электрического поля основное состояние 5D расщепляется на два термина 5E и 5T_2 , а возбужденный терм расщепляется на три уровня ${}^3H \rightarrow {}^3T_1, {}^3E, {}^3T_2$. С учетом спин-орбитального взаимодействия получается картина уровней, представленная на рис. 4 (детали описаны в разделе 1 дополнительных материалов).

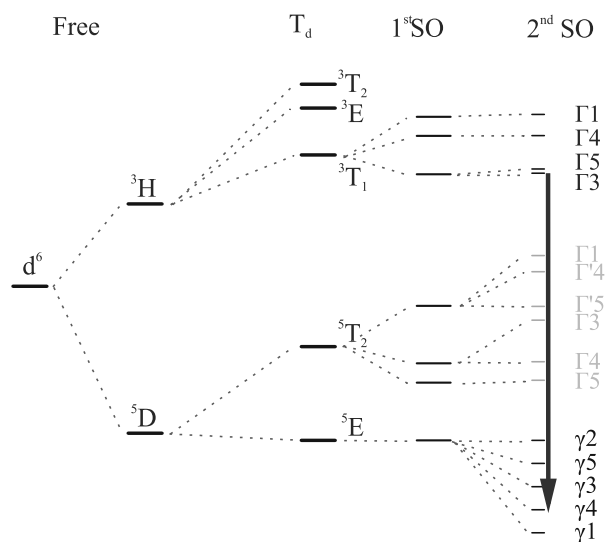


Рис. 4. (Цветной онлайн) Схема расщепления нижних уровней иона Fe^{2+} в кристаллическом поле тетраэдрической (T_d) симметрии с учетом первого (1^{st} SO) и второго (2^{nd} SO) порядков спин-орбитального взаимодействия. Стрелкой указан самый интенсивный в люминесценции переход

Для дальнейшего анализа воспользуемся соображениями симметрии. Как известно, дипольные переходы в кристаллах определяются матричным элементом оператора импульса электрона, который в кристаллах цинковой обманки принадлежит неприводимому представлению Γ_4 . Поэтому разрешенными для Γ_3 будут: $\Gamma_4 \times \Gamma_3 = \Gamma_4 + \Gamma_5$, переходы на уровни $\gamma_4({}^5E)$ и $\gamma_5({}^5E)$. Это позволяет предположить, что линия 1.383 эВ соответствует переходу Γ_3 (3T_1) $\rightarrow$ γ_4 (5E). А линия 1.3794 эВ – переходу Γ_3 (3T_1) $\rightarrow$ γ_5 (5E).

Что же касается линии 1.3867 эВ, то можно предположить, что она является переходом из одного из возбужденных состояний термина 3T_1 (3H). Был про-

веден анализ тонкой структуры для 3T_1 (3H) уровня, учитывающий спин-орбитальное взаимодействие 1-го и 2-го порядков, см. дополнительные материалы. Из данного анализа следует, что расщепление между основным (Γ_5) и первым возбужденным (Γ_3) состоянием должно быть порядка нескольких мэВ, в то время как 2-е возбужденное состояние (Γ_4) смещено относительно первого на величину более 10 мэВ. Это означает, что для описания тонкой структуры спектра в области 1.37–1.39 эВ достаточно учитывать только два нижних подуровня Γ_3 и Γ_5 . Разрешенными для Γ_5 будут $\Gamma_4 \times \Gamma_5 = \Gamma_1 + \Gamma_3 + \Gamma_4 + \Gamma_5$, переходы на уровни γ_1 (5E), γ_3 (5E), γ_4 (5E) и γ_5 (5E). При повышении температуры можно ожидать увеличения интенсивности линии 1.3867 эВ за счет температурного заселения. Для подтверждения этой гипотезы были проведены измерения спектров ФЛ при повышенной температуре.

На рисунке 5 приведены фрагменты спектров излучения, записанных при температурах 5, 10 и 25 К. Как видно из этих данных, в области бесфононных переходов наблюдается достаточно сложная тонкая структура, которая, тем не менее, полностью согласуется с предположениями, высказанными выше. Основные бесфононные линии Γ_3 (3T_1) $\rightarrow$ γ_4 (5E) приведены в масштабе $\times 0.16$ (10 К) и $\times 0.12$ (5 К). При повышении температуры наблюдается увеличение сигнала люминесценции с участием Γ_5 (3T_1), связанное с увеличением его заселенности. Увеличение сигнала люминесценции, в частности, проявляется в увеличении интенсивности наиболее коротковолновой компоненты Γ_5 (3T_1) $\rightarrow$ γ_1 (5E) и двух пиков меньшей интенсивности. Расстояние между этими пиками прекрасно согласуется с тонкой структурой состояния (5E), восстановленной экспериментально на основе анализа спектров поглощения в среднем ИК диапазоне [21]. При этом еще один пик, соответствующий переходу Γ_5 (3T_1) $\rightarrow$ γ_3 (5E), попадает на “плечо” линии Γ_3 (3T_1) $\rightarrow$ γ_4 (5E). В спектре можно увидеть некоторые изменения коротковолнового плеча этой линии при увеличении температуры. Эти изменения мы аппроксимировали зеленой пунктирной кривой рис. 5. Как видно из рис. 5, максимум интенсивности основной линии при температуре 25 К примерно в 20 раз меньше, чем при температуре 5 К. При температуре 30 К, линия спадает до уровня шума.

Для переходов из нижнего (Γ_3) подуровня наблюдается только две компоненты, сдвиг между которыми составляет 3.6 мэВ. Данное наблюдение также находится в прекрасном согласии с результатами [21]. В то же время полученные экспериментальные данные позволяют определить расщепление между подуров-

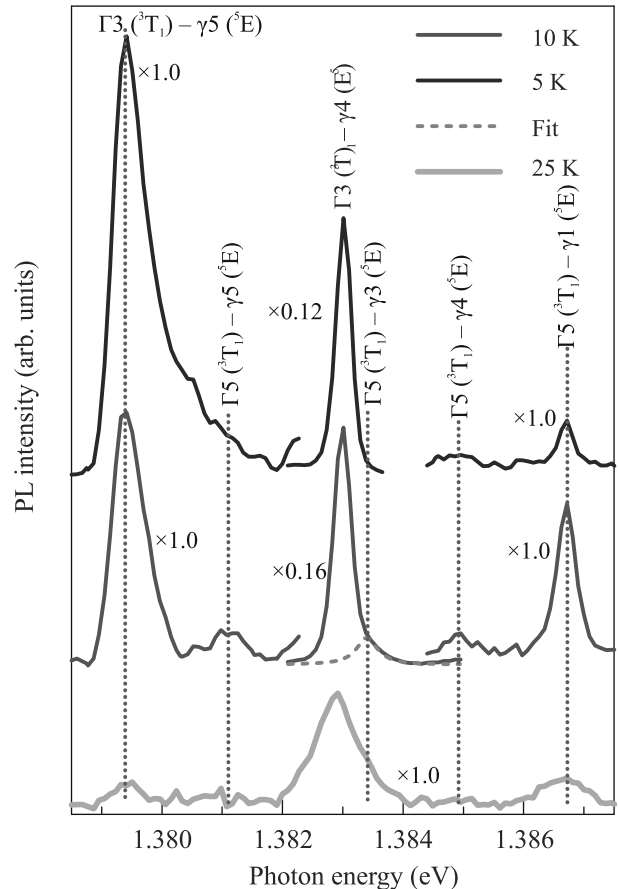


Рис. 5. (Цветной онлайн) Участок спектра низкотемпературной ФЛ ZnSe:Fe 5 К (синяя кривая), 10 К (красная кривая) и 25 К (серая кривая). По центру приведены бесфононные пики в масштабе $\times 0.16$ (10 К) и $\times 0.12$ (5 К). При вычитании зеленым цветом выделена кривая, соответствующая дополнительному пику, возникающему на крыле более интенсивной линии при повышении температуры

нями Γ_5 (3T_1) и Γ_3 (3T_1) возбужденного состояния, которое составляет 1.8 мэВ. Из анализа представленных на рис. 5 спектров следует, что исследование бесфононных переходов в районе 1.37–1.39 эВ позволяет охарактеризовать тонкую структуру 5E (5D) состояния, не прибегая к измерениям в среднем ИК диапазоне.

Полученные экспериментальные данные в сочетании с расчетами в рамках теории кристаллического поля [22] указывают на необходимость пересмотра значений параметров, описывающих межэлектронное взаимодействие для иона Fe^{2+} в решетке ZnSe: $B = 600 \pm 15 \text{ см}^{-1}$ и $C = 2733 \pm 18 \text{ см}^{-1}$, см. дополнительные материалы. Ожидается, что эти значения меньше, чем у свободного иона ($B = 917 \text{ см}^{-1}$ и $C = 4040 \text{ см}^{-1}$) [23], за счет воздействия кристал-

лического поля решетки. Отметим, что в ранних работах роль параметра C считалась несущественной. В свою очередь, значения параметров позволяют оценить величину нефелоксетического эффекта ($\beta_1 = \sqrt{(\frac{B}{B_0})^2 + (\frac{C}{C_0})^2} = 0.941(\pm 0.04)$), характеризующего ослабление жесткости связей в ионе [24, 25]. Величина, полученная исходя из спектрального положения бесфононного перехода ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$, измеренного в данной работе, оказалась, таким образом, существенно выше, чем значение $\beta \sim 0.6$, известное в литературе. Это означает, что роль нефелоксетического эффекта для иона Fe^{2+} в ZnSe сравнительно невелика.

Из рисунка 3 видно, что вклад фононных повторений с участием фононов матрицы ZnSe в излучение не сильно превышает вклад бесфононных линий. А из рисунка 1 видно, что суммарный вклад бесфононных компонент составляет менее 0.1 % общей интенсивности излучения перехода ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$. Обычно появление широкой полосы в спектре излучения при низких температурах возникает из-за существенной роли взаимодействия излучающего состояния с фононами. При этом разделяют два сценария. Первый – сильная связь между электронной и фононной подсистемами, при которой теряется адиабатичность перехода. Как следствие, узкие линии бесфононных переходов в этом случае должны исчезать. Данный сценарий следует исключить из рассмотрения, так как в спектрах излучения на рис. 5 регистрируется 6 спектрально узких компонент. Как сказано выше, именно такого количества компонент следует ожидать исходя из правил отбора. Это означает, что роль неадиабатических эффектов не может быть существенной в данном случае.

При несущественной роли эффектов неадиабатичности возможен и второй сценарий, при котором узкие пики бесфононных переходов сохраняются, но сопровождаются сравнительно интенсивными фононными повторениями, включая многофононные. Наличие фононных повторений с участием ZnSe матрицы следует из рис. 3. Тем не менее, интенсивность данных фононных повторений сравнительно невелика. Это означает, что наиболее вероятной причиной появления широкой полосы в районе 1.26 эВ является взаимодействие излучающего состояния с локальными фононными модами.

При такой интерпретации естественное объяснение находит и аномально высокая интенсивность полосы 1.26 эВ. При учете только штарковского расщепления в тетраэдрическом поле переход ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ запрещен правилами отбора.

Возмущения, такие как спин-орбитальное взаимодействие 1-го и 2-го порядков, являются сравнительно слабыми, поэтому интенсивность разрешенных (бесфононных) переходов между компонентами ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ оказывается небольшой. В то же время, смещение иона железа из тетраэдрической координации должно приводить к понижению симметрии центра и снятию запрета для перехода между штарковскими компонентами. Это означает, что излучательные переходы с участием локальных фононных мод иона Fe^{2+} должны иметь сравнительно высокую интенсивность.

Закключение. Таким образом, обнаружен бесфононный переход ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ иона Fe^{2+} в матрице ZnSe. При температуре 5 К полуширина наиболее яркой бесфононной линии составляет ~ 0.2 мэВ, а ее максимум расположен в районе 1.383 эВ. В спектрах ФЛ, записанных при 10 К, регистрируется 6 бесфононных компонент, соответствующих дипольно-разрешенным переходам между компонентами тонкой структуры ${}^3T_1({}^3H)$ и ${}^5E({}^5D)$ уровней, определяемой спин-орбитальным взаимодействием. Взаимодействие соответствующих состояний с решеткой ZnSe ожидаемо является слабым, что позволяет приписать широкую полосу в районе 1.26 эВ взаимодействию с локальными фононными модами.

Полученные экспериментальные данные в сочетании с расчетами в рамках теории кристаллического поля позволили уточнить полуэмпирические параметры $B = 600 \text{ см}^{-1}$ и $C = 2733 \text{ см}^{-1}$ для Fe^{2+} и оценить величину нефелоксетического эффекта β_1 для данного иона в матрице ZnSe. Обнаружение серии узких бесфононных линий для перехода ${}^3T_1({}^3H) \rightarrow {}^5E({}^5D)$ позволяет использовать ближний ИК диапазон для оценки локального окружения ионов Fe^{2+} и структурной неоднородности ZnSe матрицы. Это, в частности, открывает новые возможности для анализа активных сред ZnSe:Fe с высоким пространственным разрешением, используя распространенные и наиболее чувствительные кремневые матрицы.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда в рамках проекта # 19-79-30086.

1. A. E. Dormidonov, K. N. Firsov, E. M. Gavrishchuk, V. B. Ikonnikov, S. Y. Kazantsev, I. G. Kononov, T. V. Kotereva, D. V. Savin, and N. A. Timofeeva, Appl. Phys. B **122**, 211 (2016).
2. В. И. Козловский, Ю. В. Коростелин, Я. К. Скасырский, М. П. Фролов, Квантовая электроника **48**, 686 (2018).

3. Б. В. Румянцев, К. Е. Михеев, А. В. Пушкин, Е. А. Мигаль, С. Ю. Стремоухов, Ф. В. Потемкин, Письма в ЖЭТФ **115**, 431 (2022).
4. Б. Г. Бравый, В. М. Гордиенко, В. И. Козловский, Ю. В. Коростелин, Ф. В. Потемкин, Ю. П. Подмарьков, А. А. Подшивалов, В. Т. Платоненко, В. В. Фирсов, М. П. Фролов, Известия Российской академии наук. Серия физическая **80**, 489 (2016).
5. Y. Wang, T. T. Fernandez, N. Coluccelli, A. Gambetta, P. Laporta, and G. Galzerano, Opt. Express **25**, 25193 (2017).
6. В. А. Акимов, А. А. Воронов, В. И. Козловский, Ю. В. Коростелин, А. И. Ландман, Ю. П. Подмарьков, М. П. Фролов, Квантовая электроника **34**, 912 (2004).
7. J. Cook, M. Chazot, A. Kostogiannes, R. Sharma, C. Feit, J. Sosa, P. Banerjee, M. Richardson, K. A. Richardson, and K. L. Schepler, Opt. Mat. Express **12**, 1555 (2022).
8. Y. Luo, M. Yin, L. Chen, S. Yu, and B. Kang, Opt. Mat. Express **11**, 2744 (2021).
9. K. P. O'Donnell, K. M. Lee, and G. D. Watkins, J. Phys. C: Solid State Phys. **16**, 723 (1983).
10. А. В. Наумов, Успехи физических наук **183**, 633 (2013).
11. Е. П. Чукалина, И. О. Тюренков, Е. В. Жариков, К. А. Субботин, М. Н. Попова, Письма в ЖЭТФ **109**, 360 (2019).
12. Ф. А. Степанов, А. С. Емельянова, А. Л. Ракевич, Е. Ф. Мартынович, В. П. Миронов, Известия Российской академии наук. Серия физическая **83**, 371 (2019).
13. А. М. Ромшин, О. С. Кудрявцев, Е. А. Екимов, А. Б. Шкарин, Д. Раттенбахер, М. В. Рахлин, А. А. Торопов, И. И. Власов, Письма в ЖЭТФ **112**, 17 (2020).
14. М. М. Махмудиан, А. В. Чаплик, Письма в ЖЭТФ **112**, 246 (2020).
15. И. Д. Бреев, К. В. Лихачев, В. В. Яковлева, И. П. Вейшторт, А. М. Скоморохов, С. С. Нагальок, Е. Н. Мохов, Г. В. Астахов, П. Г. Баранов, А. Н. Анисимов, Письма в ЖЭТФ **114**, 323 (2021).
16. S. B. Mirov, V. V. Fedorov, D. Martyshkin, I. S. Moskalev, M. Mirov, and S. Vasilyev, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **21**, 1601719 (2015).
17. R. I. Avetisov, S. S. Balabanov, K. N. Firsov et al. (Collaboration), J. Cryst. Growth **491**, 36 (2018).
18. A. Gladilin, S. Chentsov, O. Uvarov, S. Nikolaev, V. Krivobok, and V. Kalinushkin, J. Appl. Phys. **126**, 015702 (2019).
19. D. F. Aminev, A. A. Pruchkina, V. S. Krivobok, A. A. Gladilin, V. P. Kalinushkin, V. V. Ushakov, S. I. Chentsov, E. E. Onishchenko, and M. V. Kondrin, Opt. Mater. Express **11**, 210 (2021).
20. S. Ferahtia, S. Saib, and N. Bouarissa, Results in Physics **15**, 102626 (2019).
21. J. W. Evans, T. R. Harris, B. R. Reddy, K. L. Schepler, and P. A. Berry, J. Lumin. **188**, 541 (2017).
22. S. Sugano, Y. Tanabe, and H. Kamimura, *Multiplets of Transition-Metal Ions in Crystals*, Academic Press, N.Y. (1970).
23. Y. Tanabe and S. Sugano, J. Phys. Soc. Jpn. **9**, 766 (1954).
24. Chr. K. Jørgensen, Progress in Inorganic Chemistry **4**, 73 (1962).
25. K. Li, H. Lian, R. van Deun, and M. G. Brik, Dyes and Pigments **162**, 214 (2019).

Характер смешивания уровней Ландау и функция распределения электронов в режиме квантового эффекта Холла

А. Б. Ваньков¹⁾

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

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

Поступила в редакцию 27 января 2023 г.

После переработки 27 января 2023 г.

Принята к публикации 30 января 2023 г.

Произведен расчет распределения электронов по уровням Ландау в режиме квантового эффекта Холла при сильном кулоновском взаимодействии. Для этого разработана модифицированная схема точной диагонализации со значительно сокращенным базисом многочастичных конфигураций, позволяющая адекватный учет смешивания состояний на нескольких уровнях Ландау. Изучено поведение функции распределения электронов по уровням Ландау в зависимости от фактора заполнения и параметра Вигнера–Зейтса r_s . Показано, что при фиксированной электронной концентрации квантование Ландау существенно подавляет размытие функции распределения электронов относительно случая с нулевым магнитным полем. Так при $r_s < 1$ и малых факторах заполнения квазичастичный вклад в величину скачка Мигдала $(1 - Z)$ зависит околочинейно от ν и квадратично от r_s , одновременно при уменьшении ν хвосты функции распределения удлиняются. Механизм перестройки функции распределения в режиме квантового эффекта Холла описан в терминах рождения магнитоплазменных флуктуаций в структуре основного состояния системы.

DOI: 10.31857/S1234567823050063, EDN: pxgkmu

Несмотря на общеприменимость основных выводов теории Ферми-жидкости (ФЖ) Ландау, характер квазичастичных перенормировок может сильно отличаться в зависимости от потенциала взаимодействия, размерности задачи и наличия внешних полей. Так, в классических работах [1–4] рассматривался случай трехмерных систем и короткодействующего потенциала, однако выражения для перенормированной массы, g -фактора и весового фактора Z квазичастиц требуют существенной модификации уже для кулоновского взаимодействия, а для двумерных систем неизвестны до сих пор. Между тем, именно двумерные электронные системы (ДЭС) с сильным кулоновским взаимодействием таят в себе множество загадок в характере межчастичных корреляций, будь то несжимаемые жидкости в режиме квантового эффекта Холла (КЭХ) или Вигнеровский кристалл [5, 6].

Квантующее магнитное поле приводит к полной дискретизации энергетического спектра двумерных ФЖ, и по этой причине – к подавлению процессов релаксации и затухания квазичастиц. В результате, квазичастицы на уровнях Ландау (УЛ) являются долгоживущими не только в окрестности уровня Ферми, как в любой ФЖ, но и глубоко под

ним [7, 8]. Кроме того, двумерные ФЖ в режиме КЭХ с сильным кулоновским взаимодействием имеют спектр высокочастотных плазменных и спиновых коллективных возбуждений [9], структурно схожих с магнитоэкситами в слабозаимодействующих системах [10]. Из сопоставления теории и эксперимента на ДЭС в GaAs [11] и ZnO [9] известно, что одномодовое приближение для описания коллективных возбуждений в режиме КЭХ работает не только при слабом кулоновском возмущении, но и даже за гранью формального критерия ее применимости – когда параметр Вигнера–Зейтса $r_s > 1$, при этом многочастичные энергетические вклады в таких возбуждениях претерпевают существенное подавление. Возникает вопрос – каким образом квантование Ландау участвует в стабилизации свойств частиц и квазичастиц двумерных электронных систем.

Из теории Ферми-жидкости известно, что частицы и перенормированные квазичастицы имеют одинаковый фермиевский импульс, но их функции распределения различны. Взаимодействие частиц приводит к появлению хвостов в функции распределения по импульсу $f(p)$, а также к уменьшенному значению ее скачка $0 < Z < 1$ на уровне Ферми [3]. Высота скачка Мигдала служит одним из индикаторов степени перенормировки квазичастиц и указывает относительный вес чистого электрона в квазича-

¹⁾e-mail: vankov@issp.ac.ru

стичном состоянии на уровне Ферми. Соответственно, величина $(1 - Z)$ служит мерой участия каждого электрона в виртуальных переходах и флуктуациях функции распределения.

Аналитическое решение двумерной задачи без магнитного поля и для кулоновского взаимодействия сопряжено с появлением логарифмических расходимостей частичных сумм [12], даже после устранения которых результат ненадежен. Оценки величины весового фактора Z для двумерного случая, проведенные [13] в рамках Приближения Хаотических Фаз в качестве поправки первого порядка по r_s , приводят к ответу $(1 - Z) = r_s(1/2 + 1/\pi)/\sqrt{2}$, который четырехкратно переоценивает степень квазичастичной перенормировки относительно расчетов методом Монте-Карло [14] и недавних экспериментов на GaAs ДЭС [8], для которых при $r_s < 2$ неплохо применима линейная аппроксимация $(1 - Z) = 0.13r_s$.

Анализ функции распределения двумерных электронов по УЛ при конечном r_s был проделан в работе [15] методом функций Грина. Сделан качественный вывод о важности подмешивания к состояниям электронов дополнительных комплексов (резонансных состояний), состоящих из электрона и нейтральных многоэкситонных комбинаций, однако оказалось невозможным дойти до количественного ответа ввиду огромного количества таких слагаемых. Для преодоления этой сложности уместны методы точной диагонализации для конечного числа электронов на УЛ, однако для решения задач о функции распределения электронов в режиме КЭХ требуется увеличение количества незаполненных УЛ, и тогда общеизвестные численные схемы даже при небольшом числе электронов захлебываются от комбинаторного множества конфигураций.

В данной работе реализован численный алгоритм расчета энергий состояний КЭХ, основанный на методе точной диагонализации, но с урезанным на несколько порядков базисом многочастичных конфигураций. При конечности смешивающего параметра $r_c = (e^2/\epsilon\ell_B)/\hbar\omega_c$ многоэлектронные конфигурации с размещением на разных УЛ существенно неэквивалентны, и вероятность флуктуаций с “выпрыгиванием” некоторого числа электронов на верхние уровни экспоненциально падает в зависимости от числа добавленных квантов циклотронной энергии. Учет этого обстоятельства позволяет добиться сходимости результата расчета квантовомеханических состояний ДЭС по этому параметру “лишних” квантов $\hbar\omega_c$. В такой схеме при $r_c \gtrsim 1$ были проведены расчеты структуры основного состояния ДЭС в режиме КЭХ с малыми факторами заполнения ν . Пока-

зано, что при уменьшении ν хвосты функции распределения электронов удлинняются, и одновременно квазичастичный вклад в скачок Мигдала $(1 - Z)$ уменьшается. Таким образом, при малых ν для ФЖ квазичастиц уменьшается количество каналов распада, и по структуре они становятся ближе к чистым электронам. Механизм размытия функции распределения описан в терминах рождения магнитоплазменных (МР) флуктуаций в структуре основного состояния системы. Оказалось, что характер зависимости функции распределения от r_s в режиме КЭХ существенно отличается от случая ФЖ без магнитного поля, а управляющим параметром выступает $r_c = r_s\sqrt{\nu/2}$.

Многочастичные состояния двумерных электронных систем рассматривались в представлении вторичного квантования с возможностью заполнения нескольких N_{LL} УЛ и мезоскопической емкостью каждого уровня – N_S квантов магнитного потока. Электронные состояния рассматривались на поверхности тора с периодическими граничными условиями и с нормальным к ней вектором магнитного поля [16]. Для увеличения точности расчетов и детализации на УЛ спиновая степень свободы не учитывалась, что эквивалентно решению задачи об основном состоянии КЭХ с ферромагнитной конфигурацией.

На рисунке 1а приведены некоторые из многоэлектронных конфигураций, соответствующих простейшему случаю – с фактором заполнения $\nu = 1$. Полное количество многоэлектронных конфигураций на N_{LL} уровнях Ландау равно $N_{tot} = C_{N_{LL}N_S}^{N_S}$, и растет сверхэкспоненциально от параметров N_S, N_{LL} . А поскольку точность расчетов энергетического спектра, орбитальной структуры и прочих характеристик состояний КЭХ сильно зависит от шага дискретизации численной задачи в k -пространстве, где $\Delta k = \sqrt{\frac{2\pi}{N_S}}$, то желательно иметь как можно большую емкость уровней $N_S \gtrsim 10$. В сочетании с $N_{LL} \geq 4$ такое множество состояний в методе точной диагонализации становится практически нереализуемым при современных вычислительных мощностях. Однако ниже показано, что в данном случае многоэлектронные конфигурации неравновероятны, имеют определенную иерархию в расположении на лестнице уровней Ландау. Из них также может быть выделено немногочисленное подмножество актуальных конфигураций, которые достаточно учитывать в расчетах методом точной диагонализации.

Как известно, одночастичная задача о единичном заполнении и при слабом кулоновском взаи-

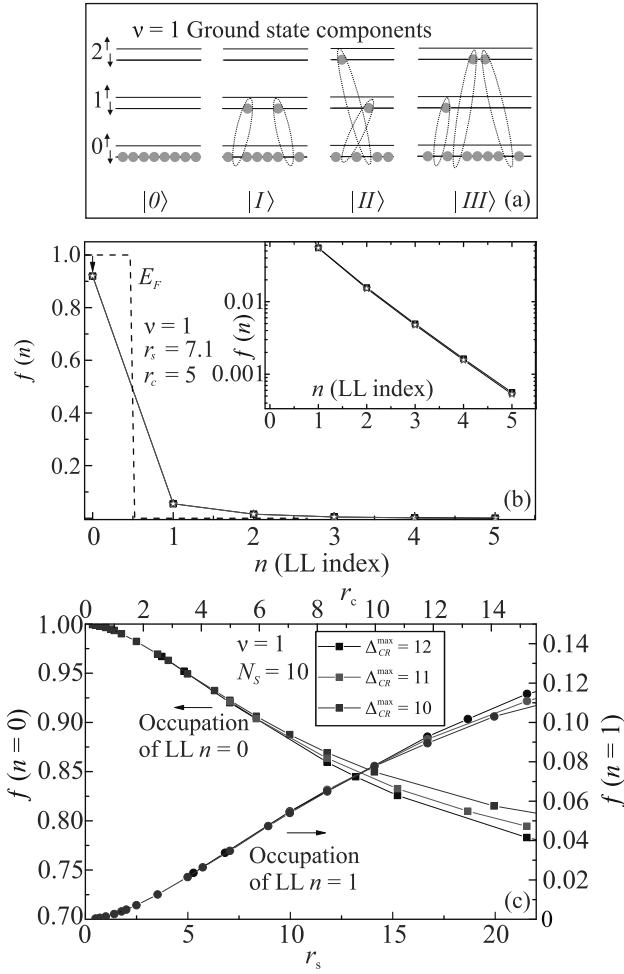


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематическое изображение некоторых многоэлектронных конфигураций, входящих в основное состояние КЭХ $\nu = 1$ в результате смешивания УЛ: $|0\rangle$ – экситонный вакуум, $|I\rangle$ – $MP_1(\mathbf{k}) \otimes MP_1(-\mathbf{k})$, $|II\rangle$ – $MP_1(\mathbf{k}) \otimes MP_2(-\mathbf{k})$ и $|III\rangle$ – $MP_1(\mathbf{k}) \otimes MP_2(\mathbf{q}) \otimes MP_2(-\mathbf{k}-\mathbf{q})$. (б) – Расчет функции распределения электронов по УЛ, выполненный методом точной диагонализации с указанными дискретными параметрами. На вставке – числа заполнения выше E_F , построенное в логарифмическом масштабе. Черные символы – расчет для $N_s = 9$, $N_{LL} = 6$, $\Delta_{CR}^{\max} = 14$, красные символы – расчет для $N_s = 10$, $N_{LL} = 6$, $\Delta_{CR}^{\max} = 12$ и штриховая линия – функция распределения Ферми–Дирака. (с) – Числа заполнения нулевого и первого УЛ как функция параметра r_s , рассчитанные при разных значениях параметра $\Delta_{CR}^{\max}$ и фиксированных N_s и N_{LL}

модействии $r_c \ll 1$ предполагает невырожденное основное состояние, соответствующее только крайней левой диаграмме $|0\rangle$ рис. 1а (ниже она называется экситонным вакуумом). Все остальные ферромагнитные многоэлектронные состояния с переходом электронов на незаполненные УЛ отделены мини-

мум циклотронной щелью, и потому не реализуются. По мере увеличения параметра r_c растет вовлеченность возбужденных многоэлектронных конфигураций в структуру основного состояния. Естественно, возбуждения эти носят электронейтральный, бесспиновый характер, а ввиду трансляционной инвариантности системы, они соответствуют не одноэлектронным переходам, а коллективным магнитоплазменным процессам с суммарным нулевым импульсом. В таком представлении каждой многочастичной конфигурации электронов на УЛ можно сопоставить суперпозицию некоторого числа виртуальных магнитоплазмонов, например, как указано на рис. 1а. Удельное число таких виртуальных магнитоплазмонов, приходящихся на каждый электрон, возрастает с параметром r_c . Определенное подмножество поляризационных процессов учитывается и в Приближении Хаотических Фаз для ДЭС в квантующем магнитном поле [17], что позволяет аналитически оценить их вклад (также пропорциональный параметру r_c) в поляризуемость системы, но не учитывает корреляций. В реальности имеет место некоторая сфазированная поляризация “экситонного вакуума”, она и формирует основное состояние ДЭС. Ниже описаны особенности формирования “урезанного базиса” с учетом конечности смешивающего параметра r_c , а также результаты расчета.

Для сортировки многоэлектронных конфигураций по вероятности реализации вводится дискретный параметр “лишних” квантов циклотронной энергии Δ_{CR} , необходимых для рождения соответствующей магнитоплазменной флуктуации. На рисунке 1а для примитивной конфигурации $|0\rangle$ вакуума $\Delta_{CR} = 0$, а все остальные имеют $\Delta_{CR} \geq 1$ и определяются следующим соотношением:

$$\Delta_{CR}(i) = \sum_{n=1}^{N_{LL}-1} n (S_{|i\rangle}(n) - S_{|0\rangle}(n)), \quad (1)$$

где $S(n)$ – суммарное количество электронов на уровне с индексом n для конфигураций $|i\rangle$ и вакуума $|0\rangle$.

Формирование “урезанного” базиса Гильбертова пространства многочастичных конфигураций и само вычисление Гамильтоновой матрицы производятся при ограничении $\Delta_{CR}(i) \leq \Delta_{CR}^{\max}$, а по целочисленному параметру $\Delta_{CR}^{\max}$ оценивается сходимость расчетной схемы. Главным выигрышем от указанного вычислительного подхода является возможность расчета характеристик многоэлектронных состояний при учете сильного смешивания ($r_c \sim 5$) уровней Ландау, большого их количества и при беспрецедентно боль-

шой суммарной емкости $N_S \cdot N_{LL} \sim 60-70$. Так, например, для задачи об основном состоянии при $\nu = 1$ и дискретных параметрах, указанных на рис. 1b, численность урезанного базиса, достаточного для сходимости расчета, составляет около 2 млн векторов вместо размерности полного базиса ~ 750 млн.

Расчет основного состояния системы заключается в получении нижайшего собственного значения энергии и собственного вектора, разложенного по базису. Комплексные амплитуды всех слагаемых (типа представленных на рис. 1a) в структуре основного состояния могут быть использованы для подсчета чисел заполнения уровней Ландау $f(n)$, $n = 0, 1, 2, \dots$. Для дискретной последовательности энергетических уровней это вполне уместное представление функции распределения, но также может быть совершен пересчет распределения по шкале энергий из соотношения $E/E_F = (n + 1/2)/\nu$.

На рисунке 1b показан расчет функции распределения электронов по УЛ при $\nu = 1$, $r_s = 7.1$, и параметрах дискретного счета $N_S = 10$, $N_{LL} = 6$, $\Delta_{CR}^{\max} = 12$, а на вставке к рис. 1b – хвост функции распределения по УЛ в логарифмическом масштабе. В этих координатах хорошо видно, что характер угасания $f(n)$ при $n \geq 1$ близок к экспоненциальному. На рисунке 1c приведена расчетная зависимость заселенности УЛ с индексами $n = 0$ и $n = 1$ при росте параметра Вигнера–Зейтса r_s . Разность между значениями $f(n = 0)$ и $f(n = 1)$ в сущности является аналогом скачка Мигдала для функции распределения электронов в квантующем магнитном поле. Расчеты, проделанные для разных значений $\Delta_{CR}^{\max} = 10, 11, 12$ (параметры ограничены мощностью компьютера), начинают различаться лишь при значениях $r_s \gtrsim 7$, что указывает на большое предельное значение сходимости расчетной схемы для данных дискретных параметров. Отдельно проверялось, что используемое значение параметра $N_S \sim 10$ уже достаточно адекватно для описания функции распределения, поскольку расчет для $N_S = 9$ и 11 дает тот же результат с погрешностью всего в несколько процентов (разные символы на вставке к рис. 1b). Дальнейшее увеличение емкости уровней потребует уменьшения их количества и допустимого предела $\Delta_{CR}^{\max}$, что сдвинет границы применимости вычислительной процедуры в сторону меньших r_s . Для случая $\nu = 1$ это нерационально, но может быть оправдано для других частных задач.

Описанный для $\nu = 1$ подход легко обобщается для других состояний целочисленного и дробного КЭХ в плане формирования базиса с ограничением по параметру $\Delta_{CR}^{\max}$. На рисунке 2а показаны расчет-

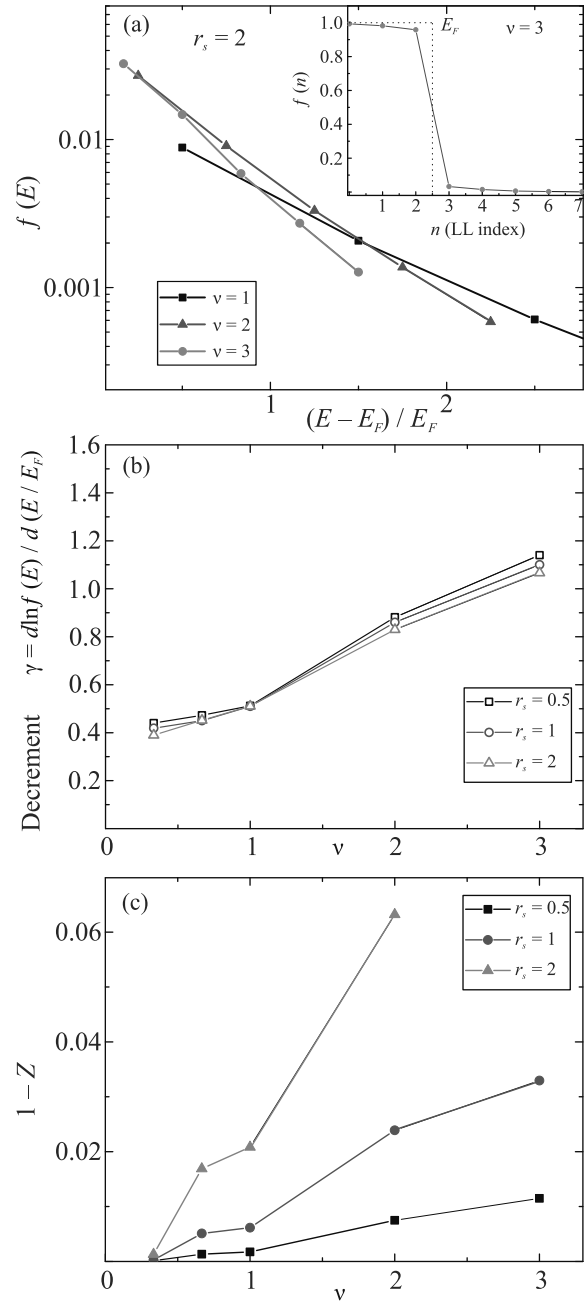


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Сравнение хвостов функции распределения $f(E)$ в энергетических координатах для случаев $\nu = 1, 2$ и 3 для фиксированного $r_s = 2$. Дискретные параметры счета для $\nu = 1$ – $N_S = 10$, $N_{LL} = 6$, $\Delta_{CR}^{\max} = 12$, для $\nu = 2$ – $N_S = 9$, $N_{LL} = 7$, $\Delta_{CR}^{\max} = 10$ и для $\nu = 3$ – $N_S = 8$, $N_{LL} = 8$, $\Delta_{CR}^{\max} = 10$. На вставке – пример расчета полной функции распределения при $\nu = 3$. (б) – Зависимость декремента затухания хвоста $f(E)$ от фактора заполнения для трех различных r_s . (с) – Зависимость фермижидкостного вклада в величину скачка Мигдала $(1 - Z)$ от ν

ные функции распределения для ферромагнитных состояний КЭХ с $\nu = 1, 2, 3$, параметром $r_s = 2$ и оптимальными дискретными параметрами $N_S, N_{LL}, \Delta_{CR}^{\max}$. Качественно похожая картина функции распределения электронов для разных факторов заполнения имеет существенные отличия – при фиксированном r_s декремент затухания функции распределения $-d \ln f(E)/d(E/E_F)$ при $E > E_F$ существенно возрастает от ν (рис. 2b). Кроме того, величина скачка Мигдала для малых факторов заполнения значительно меньше отличается от единицы, чем для нулевого магнитного поля при том же r_s . Это видно на рис. 2с по окололинейной зависимости $(1 - Z)$ от фактора заполнения при малых ν . Расчеты при $\nu = 3$ дают значения $(1 - Z)$ примерно четырехкратно ниже, чем для тех же r_s в случае нулевого магнитного поля по вышеприведенной линейной аппроксимации из [8]. Для больших факторов заполнения и $r_s \sim 1$ применяемая численная схема не обеспечивает сходимости, и потому в наших результатах невозможно проследить асимптотику скачка Мигдала.

Обнаруженное поведение функции распределения в различных состояниях КЭХ может быть объяснено механизмом влияния смешивающего параметра $r_c = r_s \sqrt{\nu/2}$ на поляризационные процессы. Детально зарождение магнитоплазменных флуктуаций в основном состоянии может быть проанализировано из расчета собственного вектора основного состояния системы в простейшем случае $\nu = 1$. Вектор представлен в виде разложения по компонентам типа приведенных на рис. 1а:

$$|GS\rangle = \alpha_0|0\rangle + \alpha_I|I\rangle + \alpha_{II}|II\rangle + \alpha_{III}|III\rangle + \dots, \quad (2)$$

структура которых для случая $\nu \leq 1$ может быть интерпретирована как свертка магнитоплазменных переходов через одну или несколько циклотронных щелей и с нулевым полным импульсом. Для произвольно выбранного распределения чисел заполнения электронов по УЛ существует несколько однотипных конфигураций (отличающихся перестановками электронов в пределах частично заполненных УЛ), и поскольку все такие базисные векторы ортогональны друг другу, то сумма их весов $W = \sum_i |\alpha_i|^2$ даст полный вес магнитоплазменной флуктуации этого типа. На рисунке 3b показана гистограмма распределения весов МР-флуктуаций для системы при $\nu = 1$ и $r_c = 2.6$, где по оси абсцисс отложено суммарное Δ_{CR} , а по оси ординат – суммарный вес таких комбинаций в векторе основного состояния. Видно, что на каждой вертикали расположено несколько точек, соответствующих разной структуре магнитоплазменных вкладов (количества квантов $\hbar\omega_c$ для участни-

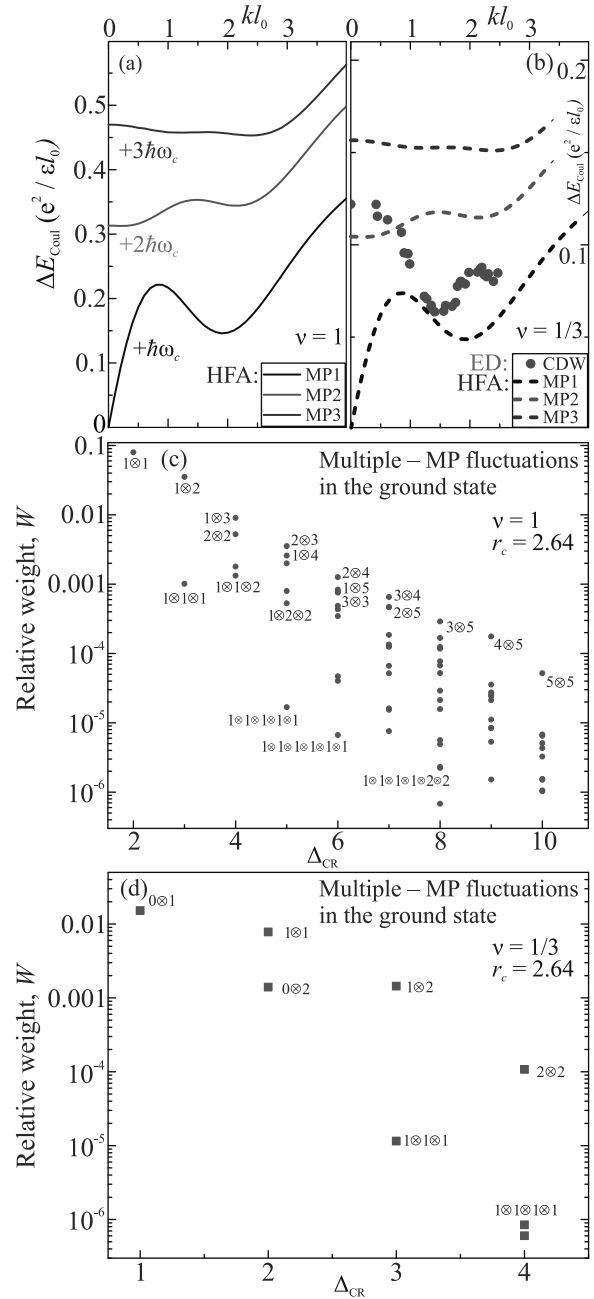


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a), (b) – Дисперсионные зависимости кулоновского вклада для нескольких магнитоплазменных возбуждений в состояниях КЭХ $\nu = 1$ и $\nu = 1/3$ соответственно. Для магнитоплазмонов расчеты выполнены в приближении Хартри–Фока, а для волн зарядовой плотности CDW при $\nu = 1/3$ показан расчет методом точной диагонализации для $N_S = 11$ электронов на нижайшем УЛ. (c) и (d) – Расчетные гистограммы для удельного веса многоплазменных комбинаций, дающих вклад в структуру основного состояния при $\nu = 1$ и $\nu = 1/3$ соответственно

ков свертки подписаны рядом с точками). Первое, что очевидно из гистограммы – это снова экспоненциальный характер спада суммарного веса магнитоплазменных комбинаций в зависимости от полного Δ_{CR} ; второе – в основном состоянии полностью отсутствуют одноплазменные флуктуации с $k = 0$; третье – на каждой вертикали лидируют структуры, состоящие из двухплазменных флуктуаций, с некоторыми переигрываниями веса по типу разбиения Δ_{CR} на два слагаемых; четвертое – вклад многоплазменных флуктуаций подавлен на порядки относительно двухплазменных.

Несложно предположить физическое обоснование такого ответа для структуры зарождающихся флуктуаций основного состояния. На рисунке 3а показаны дисперсии магнитоплазмонов и бернштейновских мод с кратными гармониками CR, рассчитанные в одномодовом приближении Хартри–Фока для модельного случая $r_c \ll 1$ (по аналогии с [10, 18]). Каждая из ветвей имеет один или несколько магнитотонных минимумов при $k \sim 1/\ell_B$ и высокой плотностью состояний в них $\sim 1/\sqrt{E - E_{\min}}$, благоприятствующей рождению комплексов с их участием. Кроме того, вероятность рождения МР-флуктуаций пропорциональна недиагональному матричному элементу оператора кулоновского взаимодействия между соответствующей конфигурацией и экситонным вакуумом. Удобнее всего это описывать в терминах экситонного представления [19]:

$$M = \langle 0 | \hat{H}^{\text{Coul}} \hat{Q}_{0m_1, \mathbf{k}_1}^+ \dots \hat{Q}_{0m_N, \mathbf{k}_N}^+ | 0 \rangle, \quad (3)$$

где операторы $\hat{Q}_{0m_i, \mathbf{k}_i}^+$ соответствуют рождению магнитоплазмона с нулевого на m_i -й УЛ с импульсом $\mathbf{k}_i$, $\sum_i \mathbf{k}_i = 0$, а кулоновская часть гамильтониана $\hat{H}^{\text{Coul}}$ также выражается через линейную комбинацию одно- и двух-экситонных операторов. Из известных коммутационных соотношений для экситонных операторов в режиме целочисленного КЭХ следует, что матричные элементы (3) для одноплазменных флуктуаций с $\mathbf{k} = 0$ равны нулю для любых индексов УЛ, а для двух- и более МР-компонент они являются функцией импульсов и индексов вовлеченных УЛ. Таким образом, в механизме образования МР-флуктуаций основного состояния целочисленного КЭХ первый и главный вклад обеспечивают двухплазменные комплексы, а вероятность рождения трех- и более компонентных флуктуаций, естественно, уменьшается. Следует отметить, что в состояниях дробного КЭХ имеется дополнительная степень свободы для внутриуровневых волн зарядовой плотности (CDW), и поэтому флуктуации с переходом электронов на вышележащие УЛ могут допол-

нительно иметь слагаемые со структурой $MP(\mathbf{k}) \times CDW(-\mathbf{k})$. На рисунке 3b показаны дисперсии МР и CDW для состояния $\nu = 1/3$, а на расчетной гистограмме рис. 3d виден лидирующий вклад в основное состояние $\nu = 1/3$ от флуктуаций с $\Delta_{CR} = 1$, очевидно, состоящих из спаренных $CDW \otimes MP$.

Получив представление о структуре зарядовых флуктуаций основного состояния системы, можно на качественном уровне объяснить полученную зависимость функции распределения электронов от параметров r_s и ν . Для этого можно воспользоваться соображениями теории возмущений, когда кулоновское взаимодействие порождает флуктуации типа (2). Комплексные амплитуды α_i поправок первого порядка малости по кулоновскому взаимодействию для рождения МР-флуктуаций с суммарным количеством квантов $\Delta_{CR}(i)$ и определенной внутренней конфигурацией имеют вид:

$$\alpha_i = \frac{B_i e^2 / \epsilon \ell_B}{\Delta_{CR} \hbar \omega_c + A_i e^2 / \epsilon \ell_B} = \frac{B_i r_c}{\Delta_{CR} + A_i r_c} = \quad (4)$$

$$= \frac{B_i r_s \sqrt{\nu/2}}{\Delta_{CR} + A_i r_s \sqrt{\nu/2}}, \quad (5)$$

где A_i – константа порядка единицы, отвечающая за величину кулоновского вклада в энергию i -й многоплазменной комбинации при $k = 0$, а константа B_i связана с матричным элементом (3) кулоновской части Гамильтониана. Эти числа зависят от типа основного состояния, фактора заполнения и от индексов вовлеченных УЛ, но при этом сама форма (5) универсальна для любых состояний КЭХ.

Из (5) видно, что веса подмешанных мультиплазменных состояний $|\alpha_i|^2$, а значит и степень размытия функции распределения электронов, при малом смешивании растет вначале линейно по ν (подтверждается рис. 2с) и квадратично по r_s (подтверждается рис. 1с), а затем обе зависимости выходят на насыщение. Независимость декремента затухания от r_s при фиксированном ν (рис. 2b) доказывает взаимосвязь механизма образования зарядовых флуктуаций со структурой магнитоплазменных возбуждений в определенном состоянии КЭХ. А от r_s зависит лишь амплитуда флуктуаций. На качественном уровне усложнение картины МР-флуктуаций при больших факторах заполнения (за пределами результатов рис. 2) связано с увеличением количества каналов распада и дробления “высоких” магнитоплазмонов на мелкие куски, с учетом растущего многообразия возможных переходов между близкими УЛ. Это приводит к укорачиванию хвостов функции распределения, одновременно сгущению количества зарядовых флуктуаций на уровнях вблизи E_F ,

и поэтому более выраженному ферми-жидкостному искажению величины $(1 - Z)$. Это отличие и наблюдается при сравнении функций распределения между случаями нулевого и сильного квантующего магнитных полей. В вышеописанном механизме искажения функции распределения электронов в режиме КЭХ магнитоплазменные комплексы играют роль аналогичную нулевому звуку в классической Ферми-жидкости. На основе численного ответа о доминирующем вкладе конкретно двухплазмонных комплексов, можно в перспективе развить результат аналитически в рамках метода экситонного представления для мезоскопической ДЭС. Это поможет определить, какова топология искажения орбитальной волновой функции в основном состоянии КЭХ при малых ν .

В заключение, произведен расчет распределения электронов по уровням Ландау в режиме квантового эффекта Холла при сильном кулоновском взаимодействии. Для этого разработана модифицированная схема точной диагонализации, с сокращенной на порядки численностью базиса многочастичных конфигураций и позволяющая адекватный учет смешивания нескольких уровней Ландау. Изучено поведение функции распределения электронов по уровням Ландау в зависимости от фактора заполнения и параметра Вигнера–Зейтса. Выявлено, что при малых ν квантование Ландау существенно подавляет ферми-жидкостной вклад в величину скачка Мигдала $(1 - Z)$, который уменьшается околoliniейно по ν и квадратично по r_s , одновременно хвосты функции распределения электронов удлиняются. Механизм перестройки функции распределения описан в терминах рождения магнитоплазменных флуктуаций в структуре основного состояния системы. Показано, что главный вклад приносят двухмагнитолазмонные флуктуации с суммарным нулевым импульсом. При малых ν и r_s появление магнитолазменной “поляризации” в основном состоянии подавлено, а при $\nu \rightarrow \infty$ (в малых магнитных полях) поляризационное облако магнитолазмонов приходит к насыщению, задающему финальную перенормировку квазичастиц и максимально возможное значение для $(1 - Z)$. Дан-

ные результаты созвучны с ранее наблюдавшимися нераспадом ферми-жидкостных квазичастиц и одномодовым характером коллективных возбуждений в режиме квантового эффекта Холла.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант # 22-12-00257).

Автор выражает благодарность И. В. Кукушкину за многочисленные обсуждения материалов рукописи.

1. Л. Д. Ландау, ЖЭТФ **30**, 1058 (1956).
2. Л. Д. Ландау, ЖЭТФ **32**, 59 (1957).
3. А. Б. Мигдал, ЖЭТФ **32**, 399 (1957).
4. В. П. Силин, ЖЭТФ **34**, 781 (1958).
5. M. S. Hossain, M. K. Ma, K. A. Villegas Rosales, Y. J. Chung, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. W. Baldwin, and M. Shayegan, PNAS **117**(51), 32244 (2020).
6. J. Falson, I. Sodemann, B. Skinner, D. Tabrea, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, K. von Klitzing, and J. H. Smet, DOI:10.1038/s41563-021-01166-1.
7. V. V. Solov'yev and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **96**, 115131 (2017).
8. И. В. Кукушкин, ЖЭТФ **162**(10), 480 (2022).
9. А. Б. Ваньков, И. В. Кукушкин, Письма в ЖЭТФ, **113**(2), 112 (2021).
10. C. Kallin and B. I. Halperin, Phys. Rev. B **30**, 5655 (1984).
11. В. Е. Бисти, А. Б. Ваньков, А. С. Журавлев, Л. В. Кулик, УФН **185**(4), 337 (2015).
12. V. M. Galitski and S. Das Sarma, Phys. Rev. B **70**, 035111 (2004).
13. G. Burkard, D. Loss, and E. V. Sukhorukov, Phys. Rev. B **61**, R16303 (2000).
14. N. D. Drummond and R. J. Needs, Phys. Rev. B **79**, 085414 (2009).
15. Yu. A. Bychkov and A. V. Kolesnikov, ZhETF **107**, 1933 (1995).
16. F. D. M. Haldane, Phys. Rev. Lett. **55**, 2095 (1985).
17. A. P. Smith, A. H. MacDonald, and G. Gumbs, Phys. Rev. B **45**, 8829 (1992).
18. A. H. MacDonald, J. Phys. C: Solid State Phys. **18**, 1003 (1985).
19. С. М. Дикман, В. М. Жилин, Д. В. Кулаковский, ЖЭТФ **128**(11), 1025 (2005).

Зонная структура двухслойного графена, интеркалированного атомами калия. Расчеты из первых принципов¹⁾

З. А. Ахматов⁺²⁾, З. А. Ахматов⁺⁺

⁺ ФГБОУ ВО «Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х. М. Бербекова», 360004 Нальчик, Россия

⁺⁺ Южный математический институт – филиал ФГБУН
Федерального научного центра «Владикавказский научный центр РАН», 362027 Владикавказ, Россия

Поступила в редакцию 30 декабря 2022 г.

После переработки 28 января 2023 г.

Принята к публикации 1 февраля 2023 г.

Используя теорию функционала электронной плотности, исследована электронная зонная структура чистого и интеркалированного атомами калия двухслойного графена. Показано, что после процесса интеркаляции в зонной структуре двухслойного графена появляется запрещенная зона. Кроме того, величина энергетической щели изменяется нелинейно в зависимости от концентрации интеркалята в межслоевом пространстве двухслойного графена. В работе также рассчитаны энергетические спектры двухслойного графена, содержащего точечные дефекты вакансионного типа, наличие которых приводит к появлению межзонных состояний.

DOI: 10.31857/S1234567823050075, EDN: pxkglv

Введение. Успешное получение графена и измерение некоторых его физических свойств впервые было проведено в 2004 г. [1]. На сегодняшний день имеется множество продуктов, в которых графен играет значительную (иногда доминирующую) роль в улучшении их свойств и функциональных возможностей [2]. Например, графен и другие двумерные материалы можно использовать для создания экранов и поглотителей микроволнового излучения с заданными свойствами [3], широкополосных сверхбыстрых оптоэлектронных устройств [4] и оптических модуляторов [5]. Представляется интересным использование графенового листа в качестве терагерцового излучателя, так как основные частоты в его колебательном спектре попадают в терагерцовую область [6]. Уникальные свойства графена, такие как полупе-лочисленный эффект Холла, высокая подвижность носителей заряда (более $200000 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ для подвешенных образцов), баллистический перенос на большие расстояния и конечная проводимость при нулевой концентрации носителей заряда, делают его альтернативным кремнию материалом для нового поколения электронных устройств [7–9]. Однако, по причине того, что однослойный графен является полупроводником с нулевой запрещенной зоной, его использование в устройствах, например, в полевых

транзисторах, на сегодняшний день вызывает затруднения. Одним из возможных путей получения запрещенной зоны в графене является его вытравливание в графеновые наноленты (ГНЛ) [10–13]. Экспериментально было показано, что в ГНЛ шириной порядка 10 нм появляется запрещенная зона величиной 0.2 эВ. Крупномасштабное производство узких ГНЛ все еще довольно сложный процесс, кроме того, подвижность носителей в таких нанолентах на порядки ниже, чем у графенового листа [12–14]. Другим способом получения запрещенной зоны в графене является нарушение инверсионной симметрии подрешеток путем его размещения на специальной подложке [15–17]. При этом, подвижность носителей в графене лучше сохраняется, если взаимодействие графена с подложкой слабое. Очевидно, что такой подход имеет технологические преимущества перед травлением графена. Тем не менее, простое руководство по поиску идеальной подложки, которая могла бы индуцировать достаточно большую ширину запрещенной зоны в графене, все еще не найдено, особенно для подложки, которую можно интегрировать непосредственно в текущую технологию полевых транзисторов [15]. Перспективной представляется методика изменения электронных свойств графена легированием и химической адсорбцией атомов металла. Теоретически, кроме полупроводниковых свойств, покрытый атомами металлов графен может демонстрировать сверхпроводящие [18], а также магнитные свойства

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

²⁾ e-mail: ahmatov.z@bk.ru

[19], что открывает перед ним новые области применения, например, в спинтронике. В работах [20, 21] представлены результаты *ab initio* расчетов изменения зонной структуры графена при его допировании атомами бора (B), азота (N), кислорода (O) и фтора (F). Было показано, что все легированные в решетку атомы элементов способствуют появлению в энергетическом спектре графена запрещенной зоны. Кроме того, наблюдался интересный эффект, а именно, энергетическая щель очень сильно зависит от расположения атомов примеси. Ширина зоны максимальна, когда примеси размещаются в одних и тех же позициях подрешетки (*A* или *B*) в смежных подрешетках графена (по-видимому из-за комбинированного эффекта нарушения симметрии подрешеток). Напротив, если легированные атомы находятся в соседних позициях, то энергетическая щель исчезает [21]. Приведенные результаты налагают серьезные ограничения на использование данной методики для получения запрещенной зоны в графене, так как на данный момент представляется сложной процедура легирования, в которой можно было бы выборочно расставлять атомы в соответствующую подрешетку. К сожалению, методика получения энергетической щели путем химической адсорбции тоже наткнулась на похожее ограничение. Здесь величина зоны зависит от концентрации адсорбата на поверхности графена. Причем прослеживается нелинейная зависимость, т.е. запрещенная зона может как появляться, так и исчезать при увеличении концентрации атомов адсорбата [22]. Успешным оказался подход, предполагающий использование графена в биполярном полевом транзисторе [23]. Прототипы устройств представляли собой графеновые гетероструктуры с атомарно тонким нитридом бора или дисульфидом молибдена, выступающими в качестве вертикального транспортного барьера [24, 25].

Результаты, полученные авторами работы [26] вследствие многочисленных расчетов и экспериментов, показали, что запрещенную зону можно получить в двухслойном графене (ДГ). Однако из-за угловых поворотов плоскостей графена относительно друг друга, а также наличия структурных дефектов решетки при получении ДГ его электронные свойства сильно изменяются, и контролировать ток в устройствах на основе ДГ не всегда удастся. Возможность получения запрещенной зоны в двухслойном скрученном графене была продемонстрирована в работах [27, 28]. Проведенные расчеты показали, что ширина запрещенной зоны зависит от угла закручивания, который может регулироваться внешним электрическим полем.

В настоящей работе рассматривается возможность получения устойчивой запрещенной зоны в ДГ посредством внедрения в его межслоевое пространство атомов калия. Также проведены расчеты зонной структуры ДГ, имеющего дефекты вакансионного типа.

Методика расчетов. Расчет зонной структуры ДГ производился с использованием программы Quantum Espresso [29], основанной на теории функционала плотности, плоских волнах и псевдопотенциалах [30]. Был применен обменно-корреляционный функционал Пердью–Берка–Эрнзергофа (PBE) обобщенного градиентного приближения (GGA) [31]. Использовалась суперячейка $4 \times 4 \times 1$, состоящая из 64 атомов углерода с вакуумным слоем 30 Å в направлении *Z* для исключения взаимодействия между соседними слоями. Для построения зоны Бриллюэна использовалась схема Монкхорста–Пака [32]. В расчетах структуры полностью релаксированы с гамма-центрированной *k*-сеткой $10 \times 10 \times 1$. Перед расчетом электронных свойств производилась процедура геометрической оптимизации постоянной решетки и координат атомов, осуществляемая путем минимизации полной энергии.

Обсуждение результатов. На рисунке 1а показан фрагмент решетки ДГ, состоящий из 64 атомов углерода. Справа, на рис. 1b, представлена рассчитанная для данной конфигурации электронная зонная структура.

Как можно видеть из рис. 1b, в двухслойном бездефектном графене запрещенная зона отсутствует. Рассмотрим случай, когда в решетке графена присутствует одна вакансия (рис. 2а). Зонная структура для такой конфигурации представлена на рис. 2b.

При наличии структурного дефекта в решетке ДГ в его энергетическом спектре появляются две межзонные полосы, обусловленные нарушением симметрии подрешеток. Увеличение числа вакансий в решетке до двух (рис. 3а) приводит к появлению в спектре уже четырех межзонных состояний (рис. 3b).

Заметим, что при увеличении числа вакансий ветви межзонных состояний стремятся перекрыть валентную зону и зону проводимости. Это обстоятельство налагает большие требования к качеству получаемых образцов, так как из-за наличия структурных дефектов невозможно полностью избавиться от токов утечки в готовых устройствах на основе ДГ [26].

Рассмотрим теперь, как изменится энергетический спектр ДГ после его интеркаляции атомами калия. Расчеты были проведены для трех различных интеркалированных соединений. Были изуче-

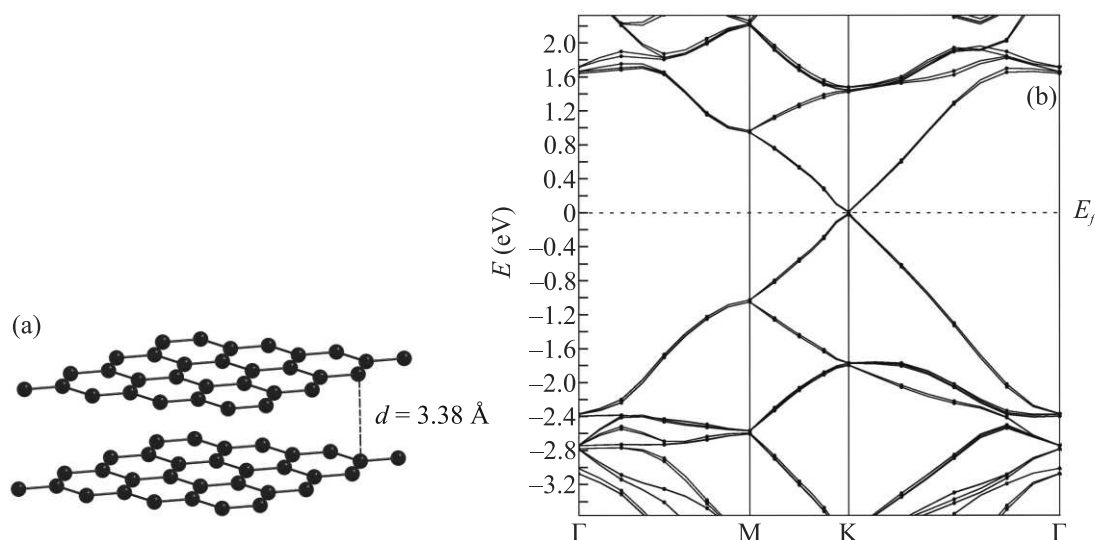


Рис. 1. (а) – Фрагмент ДГ, содержащий 64 атома углерода после процедуры геометрической оптимизации; (б) – соответствующая данной конфигурации зонная структура

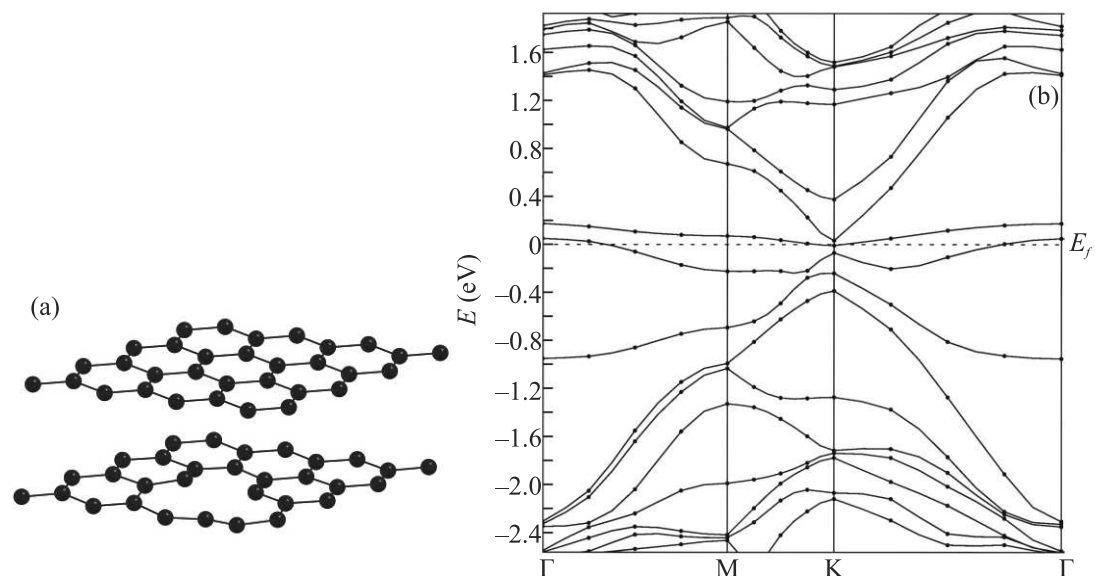


Рис. 2. (а) – Фрагмент ДГ, содержащий один дефект вакансионного типа. (б) – Энергетический спектр, соответствующий данной конфигурации

ны структуры KC_{64} , KC_{32} и $\text{KC}_{21.3}$, т.е. на 64 атома углерода приходился один, два и три атома калия соответственно. Структура KC_{64} показана на рис. 4а, справа на рис. 4б представлен энергетический спектр, полученного интеркалированного соединения.

При размещении (симуляции процесса интеркаляции) атома калия в межслойном пространстве ДГ в его энергетическом спектре появляется запрещенная зона величиной $\Delta E = 0.22$ эВ. Также из рис. 4б можно заметить, что энергия Ферми оказывается выше Дираковской энергии. Объясняется это, по-

видимому, переходом электронной плотности от калия к углеродным слоям. Далее нами был рассмотрен случай, когда в межслойном пространстве ДГ находятся два атома калия (рис. 5а). Расчеты, проведенные для такой конфигурации, показали уменьшение величины запрещенной зоны до $\Delta E = 0.1$ эВ (рис. 5б).

Как можно видеть из спектра, ожидания возрастания энергетической щели при увеличении концентрации интеркалянта не оправдались. Аналогичное поведение ширины зоны было замечено нами в случае получения энергетической щели в однослой-

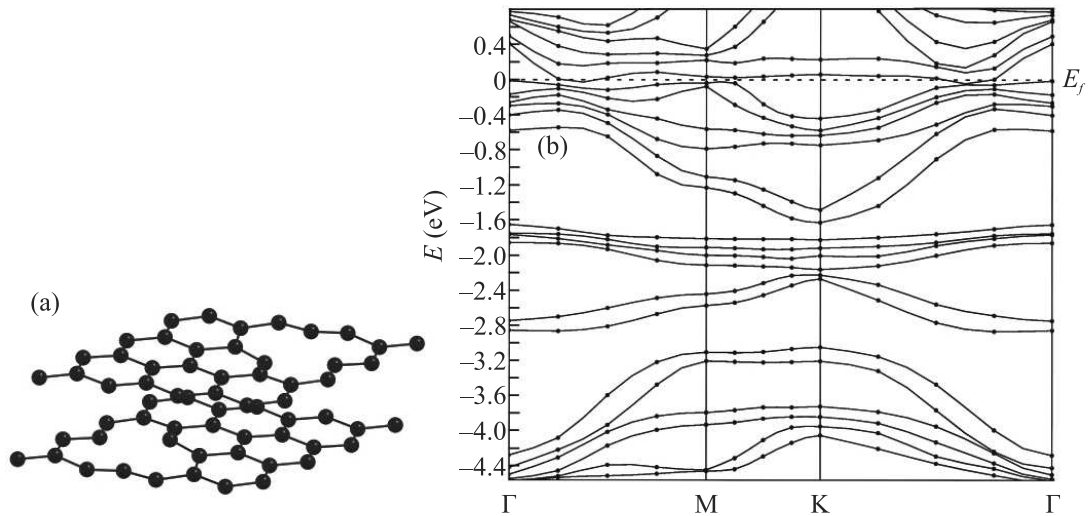


Рис. 3. (а) – Фрагмент ДГ, содержащий два дефекта вакансионного типа в верхнем и нижнем слоях. (б) – Энергетический спектр дефектного ДГ

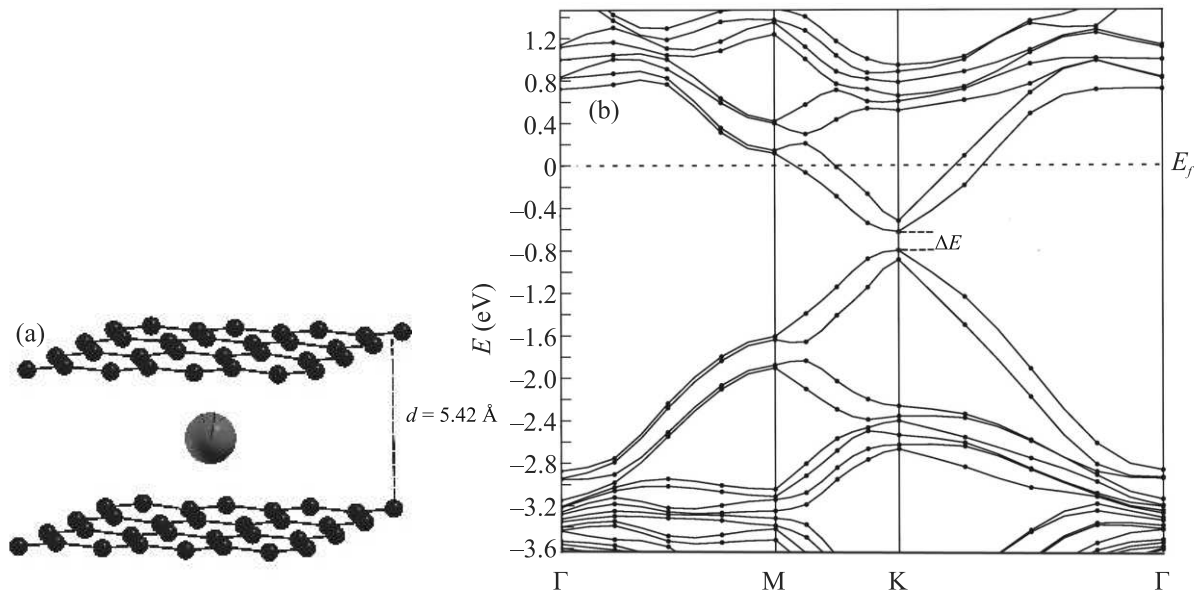


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Структура KC_{64} . Голубой шарик обозначает атом калия. (б) – Энергетический спектр, соответствующий данной конфигурации. Величина запрещенной зоны составляет $\Delta E = 0.22$ эВ

ном графене при адсорбции на его поверхность атомов щелочных металлов [22]. Однако в однослойном графене запрещенная зона при определенной концентрации адатомов исчезала полностью. Здесь мы наблюдаем только некоторое уменьшение величины энергетической щели. При увеличении числа интеркалированных атомов калия до трех (рис. 6а), ширина зоны снова возрастает (рис. 6б) и принимает значение $\Delta E = 0.2$ эВ.

Известно, что запрещенную зону в ДГ можно получить путем воздействия на него внешнего электрического поля [26, 33]. Обычно электрическое по-

ле получают при помощи затворов, прикрепленных к графеновым слоям, с помощью которых меняется разность потенциалов. При этом ширина зоны увеличивается в зависимости от величины подаваемого на затворы напряжения. В нашем случае, появление щели в интеркалированном ДГ объясняется наличием электрического поля, индуцированного переносом заряда (*charge transfer*) от интеркалирата к углеродным слоям. Для выяснения причины немонотонного поведения ширины зоны в зависимости от степени интеркаляции, нами были получены графики распределения электронной плотности в су-

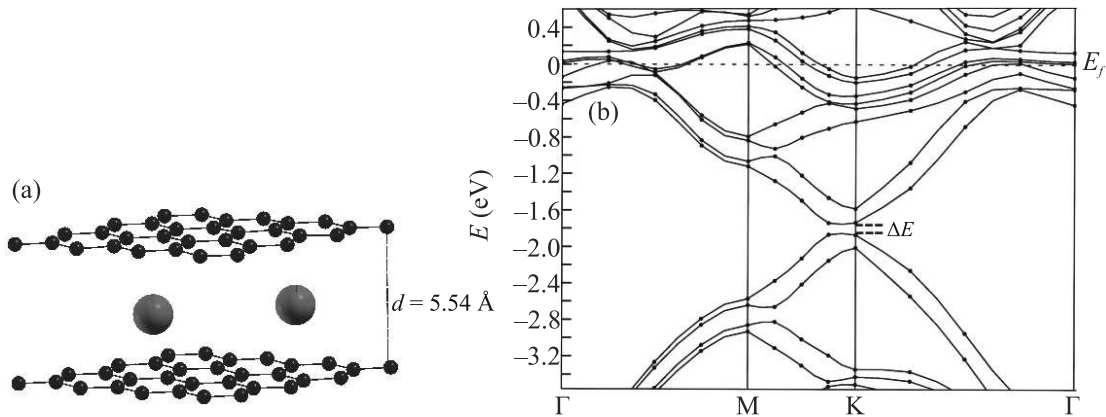


Рис. 5. (Цветной онлайн) (a) – Структура KC_{32} . (b) – Энергетический спектр, соответствующий данной конфигурации. Величина запрещенной зоны составляет $\Delta E = 0.1$ эВ

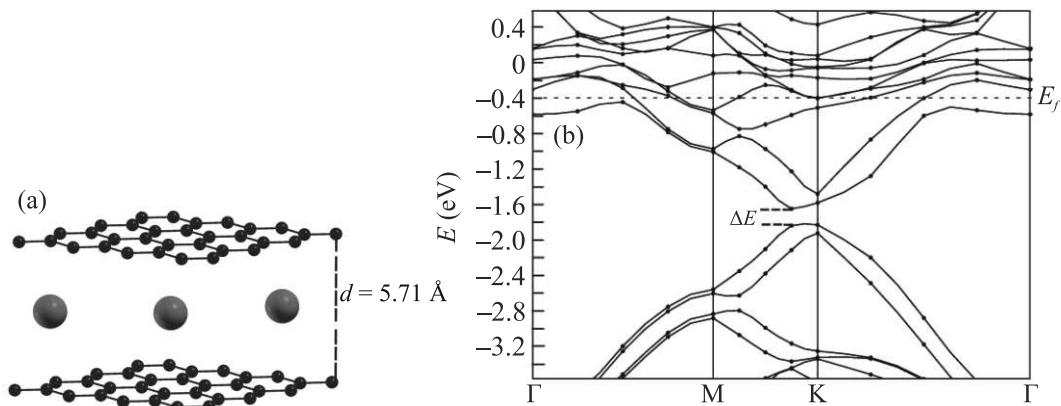


Рис. 6. (Цветной онлайн) (a) – Структура $KC_{21.3}$. (b) – Энергетический спектр, соответствующий данной конфигурации. Величина запрещенной зоны составляет $\Delta E = 0.2$ эВ

перячейке (рис. S1–S3 из дополнительного материала). Средняя плотность заряда в обоих графеновых слоях оказалась одинаковой, поэтому эффект вертикального электрического поля здесь не наблюдается. Однако из рис. 7–9 видно, что имеет место неравномерное распределение плотности заряда в x - и y -направлении. Мы находим подобное распределение аналогичным эффекту приложенной к торцам графеновых слоев разности потенциалов, приводящему к неравномерному распределению заряда вдоль углеродных плоскостей и способствующему появлению щели в ДГ [34]. По-видимому, более равномерное распределение электронной плотности, как в случае структуры KC_{32} , приводит к появлению меньшей по величине энергетической щели. Тогда как для структур KC_{64} и $KC_{21.3}$ наблюдается менее равномерное распределение, что в свою очередь, является причиной возникновения большей по величине запрещенной зоны.

Следует также отметить, что с увеличением степени интеркаляции ДГ межслоевое расстояние d увеличивается, и для соединений KC_{64} , KC_{32} , $KC_{21.3}$ принимает значения 5.42, 5.54 и 5.71 Å, соответственно.

Выводы. Показана возможность управления запрещенной зоной в ДГ путем модификации его электронных свойств за счет интеркаляции атомами калия. Ширина зоны не всегда увеличивается пропорционально количеству интеркалированных атомов и может как возрастать, так и уменьшаться, в зависимости от получаемой структуры. Проведенные расчеты показали, что для соединений KC_{64} , KC_{32} , $KC_{21.3}$ величина запрещенной зоны ΔE составила 0.22, 0.1 и 0.2 эВ, соответственно. При наличии в решетке ДГ дефектов вакансионного типа в его энергетическом спектре появляются межзонные состояния, которые являются основным источником токов утечки в устройствах на основе ДГ.

Работа выполнена при поддержке гранта Президента РФ для государственной поддержки молодых российских ученых – кандидатов наук и докторов наук (# МК-927.2022.1.2).

1. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, *Science* **306**, 666 (2004).
2. K. S. Novoselov, D. V. Andreeva, W. Ren, and G. Shan, *Front. Phys.* **14**, 13301 (2019).
3. M. Hu, N. Zhang, G. Shan, J. Gao, J. Liu, and R. K. Y. Li, *Front. Phys.* **13**, 138113 (2018).
4. R. Wang, X. Ren, Z. Yan, L. J. Jiang, W. E. I. Sha, and G. C. Shan, *Front. Phys.* **14**, 13603 (2019).
5. X. Gan, D. Englund, D. V. Thourhout, and J. Zhao, *Appl. Phys. Rev.* **9**, 021302 (2022).
6. A. Kh. Khokonov and Z. A. Akhmatov, *J. Phys.: Conf. Ser.* **1556**, 012053 (2020).
7. A. K. Geim and K. S. Novoselov, *Nat. Mater.* **6**, 183 (2007).
8. A. K. Geim, *Science* **324**, 1530 (2009).
9. A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 109 (2009).
10. Q. Yan, B. Huang, J. Yu, F. Zheng, J. Zang, J. Wu, B.-L. Gu, F. Liu, and W. Duan, *Nano Lett.* **7**, 1469 (2007).
11. M. Y. Han, B. Ozyilmaz, Y. Zhang, and P. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 206805 (2007).
12. X. Li, X. Wang, L. Zhang, S. Lee, and H. Dai, *Science* **319**, 1229 (2008).
13. X. Wang, Y. Ouyang, X. Li, H. Wang, J. Guo, and H. Dai, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 206803 (2008).
14. A. Betti, G. Fiori, and G. Iannaccone, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 212111 (2011).
15. B. Huang, Q. Xu, and S. Wei, *Phys. Rev. B* **84**, 155406 (2011).
16. D. L. Tiwari and K. Sivasankaran, *Superlattices and Microstructures* **113**, 244 (2018).
17. G. Giovannetti, P. A. Khomyakov, G. Brocks, P. J. Kelly, and J. Brink, *Phys. Rev. B* **76**, 073103 (2007).
18. B. Uchoa and A. H. Castro Neto, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 146801 (2007).
19. B. Uchoa, C.-Y. Lin, and A. H. Castro Neto, *Phys. Rev. B* **77**, 035420 (2008).
20. M. Wu, C. Cao, and J. Z. Jiang, *Nanotechnology* **21**, 505202 (2010).
21. P. Rani and V. K. Jindal, *RSC Adv.* **3**, 802 (2013).
22. Z. A. Akhmatov and Z. A. Akhmatov, *Physical and chemical aspects of the study of clusters, nanostructures and nanomaterials* **14**, 277 (2022).
23. L. Britnell, R. V. Gorbachev, R. Jalil, B. D. Belle, F. Schedin, M. I. Katsnelson, L. Eaves, S. V. Morozov, A. S. Mayorov, N. M. R. Peres, A. H. Castro Neto, J. Leist, A. K. Geim, L. A. Ponomarenko, and K. S. Novoselov, *Nano Lett.* **12**, 1707 (2012).
24. L. Britnell, R. V. Gorbachev, R. Jalil, B. D. Belle, F. Schedin, A. Mishchenko, T. Georgiou, M. I. Katsnelson, L. Eaves, S. V. Morozov, N. M. R. Peres, J. Leist, A. K. Geim, K. S. Novoselov, and L. A. Ponomarenko, *Science* **335**, 947 (2012).
25. E. E. Vdovin, A. Mishchenko, M. T. Greenaway et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **116**, 186603 (2016).
26. K. S. Kim, A. L. Walter, L. Moreschini et al. (Collaboration), *Nat. Mater.* **12**, 887 (2013).
27. F. J. Culchac, R. R. Del Grande, R. B. Capaz, L. Chio, and E. S. Morell, *Nanoscale* **12**, 5014 (2020).
28. N. R. Chebrolu, B. L. Chittari, and J. Jung, *Phys. Rev. B* **99**, 235417 (2019).
29. P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini et al. (Collaboration), *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 395502 (2009).
30. P. E. Blochl, *Phys. Rev. B* **50**, 17953 (1994).
31. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
32. H. J. Monkhorst and J. D. Park, *Phys. Rev. B* **13**, 5188 (1976).
33. A. V. Rozhkov, A. O. Sboyshakov, A. L. Rakhmanov, and F. Nori, *Phys. Rep.* **648**, 1 (2016).
34. T. Vu, T. K. Q. Nguyen, A. Huynh, T. Phan, and V. Tran, *Superlattices and Microstructures* **102**, 451 (2017).

Совместная интеркаляция ультратонких пленок Fe и Co под буферный слой графена на монокристалле SiC(0001)

С. О. Фильнов⁺¹⁾, Д. А. Естюнин⁺, И. И. Климовских^{+×}, Т. П. Макарова⁺, А. В. Королева⁺, А. А. Рыбкина⁺, Р. Г. Чумаков^{*}, А. М. Лебедев^{*}, О. Ю. Вилков⁺, А. М. Шикин⁺, А. Г. Рыбкин⁺

⁺ Санкт-Петербургский государственный университет, 198504 С.-Петербург, Россия

^{*} Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

[×] Центр перспективных методов мезофизики и нанотехнологий,
Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 14 ноября 2022 г.

После переработки 29 января 2023 г.

Принята к публикации 29 января 2023 г.

В данной работе был изучен процесс совместной интеркаляции атомов кобальта и железа под буферный слой графена, синтезированный на монокристалле карбида кремния SiC(0001). Интеркаляция проводилась посредством поочередного напыления ультратонких пленок металлов Fe и Co на нагретую до 450 °С подложку с последующим прогревом до 600 °С в течение 15 мин. Показано, что при данных условиях атомы кобальта и железа интеркалируются под графен, формируя соединения с кремнием и друг с другом. С помощью сверхпроводящего квантового интерферометра было показано наличие магнитного порядка в системе вплоть до комнатной температуры. Основываясь на форме и величине петель гистерезиса, был проведен анализ возможных стехиометрий формируемых сплавов. Кроме того, было выявлено, что при экспозиции системы на атмосфере, Fe и Co оказываются не окисленными. Таким образом, графен также выполняет защитную функцию для сформированной системы. Результаты данной работы вносят вклад в исследования графена при контакте с магнитными металлами и способствуют его использованию в устройствах спинтроники и нанoeлектроники.

DOI: 10.31857/S1234567823050087, EDN: pxojjl

1. Введение. Изучение и модификация свойств графена привлекает исследователей из различных областей науки благодаря множеству уникальных электронных и структурных характеристик систем на его основе [1–5]. Теоретически предсказано, что в графене можно наблюдать такие фундаментальные эффекты, как, например: спин-зависимый эффект Зеебека [7], квантовый спиновый и аномальный эффекты Холла [8, 9], а также сверхпроводимость [5, 6]. Благодаря баллистическому транспорту электронов в графене [11, 12] и большой длине спиновой релаксации [13, 14], существует множество концепций устройств спинтроники и нанoeлектроники с использованием графена [15, 16].

Множество эффектов основано на взаимодействии графена с магнитными материалами. Так, комбинация спин-орбитального и обменного взаимодействия индуцированных в графене, например, с помощью эффекта близости может привести к реализации квантового аномального эффекта Холла, что представляет интерес как с фундаментальной, так и

с прикладной точек зрения [9, 17, 18]. Ввиду прочной σ связи, помещенный между двумя магнитными проводниками, графен может быть использован как барьер в устройствах, использующих магнитный туннельный переход [16]. Благодаря большой длине спиновой релаксации графен может быть использован в качестве канала для спин-поляризованных электронов в спиновых транзисторах [16, 19].

Таким образом, изучение графена на подложках с магнитными свойствами заслуживает отдельного внимания. Однако для дальнейшего применения в устройствах спинтроники и нанoeлектроники, система должна быть синтезирована на изолирующей или полупроводниковой подложке. Этого можно достичь путем получения графена методом химического осаждения из газовой фазы на металлической подложке [20–28] с последующим переносом на изолирующую подложку или с помощью метода термической графитизации карбида кремния (SiC) с низкой концентрацией носителей заряда [29–32]. Второй метод является более предпочтительным, так как не требует дополнительного переноса, ухудшающего транспортные характеристики графена [12, 33]. Для со-

¹⁾e-mail: sfilnov@gmail.com

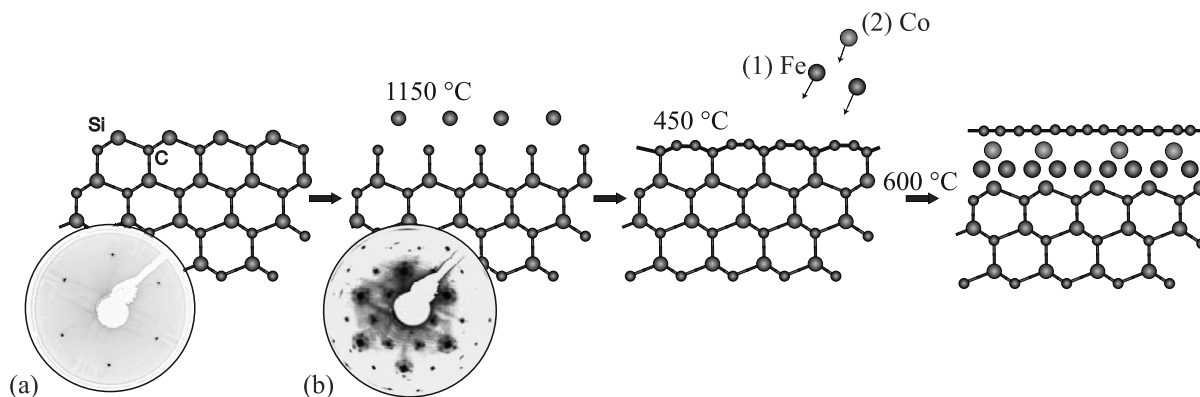


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематичное представление синтеза системы Gr/Fe-Co/SiC. Картины ДМЭ: (а) – Исходная поверхность 6H-SiC (0001); (б) – реконструкция $(6\sqrt{3} \times 6\sqrt{3})R30^\circ$ поверхности SiC после отжига при температуре 1150°C

здания магнетизма в системе Gr/SiC между графеном (Gr) и SiC формируется слой магнитных атомов при помощи интеркаляции. В ряде работ были исследованы системы Gr/MM/SiC (MM – магнитный металл), где в качестве интеркалируемых элементов использовались атомы переходных (Fe, Co) [34–39] и редкоземельных (Eu, Dy, Gd, Er) [40–42] металлов. Однако, несмотря на достаточно высокую температуру магнитного упорядочения в чистых соединениях данных элементов, полученные системы характеризуются парамагнитным или ферромагнитным порядком с низкой температурой магнитного упорядочения (в сравнении с температурой упорядочения в объемных образцах данных элементов). Возможной причиной такого поведения в системах Gr/MM/SiC может являться то, что интеркалированные металлы образуют соединения с кремнием. Образующиеся при этом силициды, как правило, проявляют парамагнитный или низкотемпературный ферромагнитный порядок [43–45].

В работе [39] было показано, что при интеркаляции пленки кобальта толщиной более одного нанометра под графен на SiC в спектрах фотоэмиссии для уровня $\text{Co}3p$ наблюдается изменение интенсивности при изменении намагниченности образца, что может говорить о ферромагнитном упорядочении интеркалированного слоя. В работе [25] было показано, что в результате интеркаляции ультратонкой пленки Co под буферный слой графена (БСГ) на SiC происходит трансформация БСГ в монослой графена и формирование ультратонкого магнитного слоя силицида кобальта, в котором магнетизм обусловлен нижележащим слоем CoSi. Однако отсутствие магнитного упорядочения при комнатной температуре ограничивает использование данной системы в устрой-

ствах спинтроники. В работе [35] были изучены свойства системы Gr/SiC при интеркаляции атомов железа. С помощью расчетов методом теории функционала плотности и измерений методом фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением было показано, что атомы железа могут влиять на спиновую поляризацию π -зоны в двухслойном графене. Было также изучено, что при экспозиции системы Gr/Fe/SiC графен препятствует окислению железа [27], что важно для стабильности магнитных свойств в конечной системе. Однако магнитные свойства такой системы все еще нуждаются в экспериментальном изучении.

Целью данной работы являлось исследование магнитных свойств и электронной структуры системы, полученной при совместной интеркаляции ультратонких пленок Fe и Co под БСГ, синтезированный на Si-терминации монокристалла карбида кремния SiC(0001). В работе использовались полуизолирующие монокристаллические пластины 6H-SiC(0001) с удельным сопротивлением $\rho = 10^5 \text{ Ом/см}$. Синтез БСГ контролировался методом дифракции медленных электронов (ДМЭ). Электронная структура изучалась методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС), а также на основании полученных экспериментальных данных РФЭС проводились оценки распределения элементов по глубине залегания в полученной системе. Магнитные свойства системы изучались с помощью сверхпроводящего квантового интерферометра (СКВИД).

2. Экспериментальные результаты и обсуждение. Схематическое изображение синтеза системы, а также ДМЭ измерения системы до и после синтеза БСГ показано на рис. 1. На первом этапе, для получения БСГ использовался метод термической

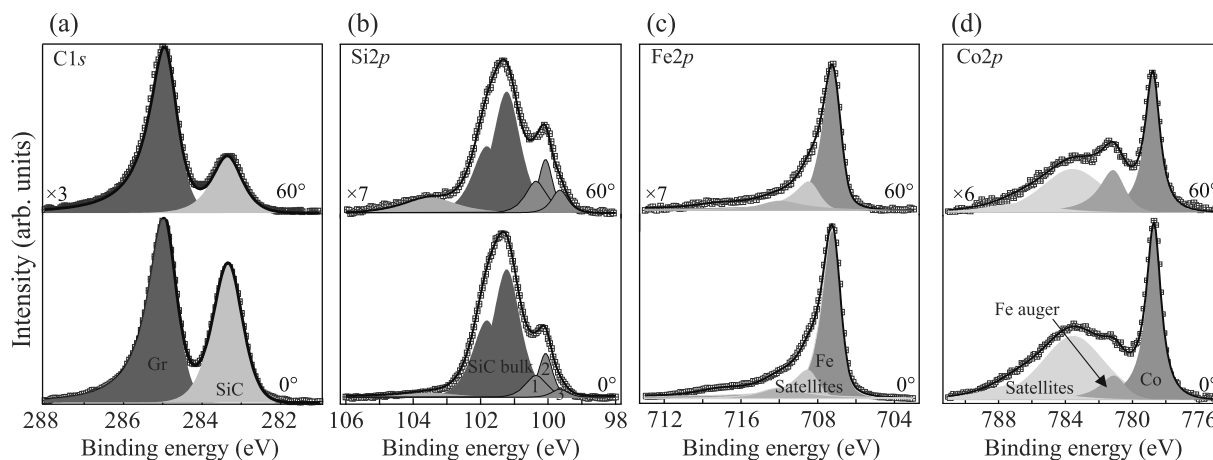


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры РФЭС, измеренные при углах детектирования электронов 0° (снизу) и 60° (сверху) и энергии фотонов 1486.6 эВ

графитизации Si-терминированной поверхности карбида кремния $6H$ -SiC(0001). Изначально монокристалл характеризуется типичной для SiC(0001) гексагональной структурой поверхности 1×1 – рис. 1a. Прогрев до 1150°C приводит к появлению структуры муара вокруг главных рефлексов, или, так называемой структуре $(6\sqrt{3} \times 6\sqrt{3})R30^\circ$, свидетельствующей о появлении на поверхности БСГ [18, 19, 46] – рис. 1b. На следующем этапе формирования системы производилось последовательное напыление пленок железа и кобальта толщинами 14 и 7 Å соответственно. Напыление производилось посредством физического парофазного осаждения на нагретую до 450°C подложку с последующим прогревом до 600°C в течение 15 мин, после каждого напыления. В работах [25, 36, 27] было показано, что данный способ подходит для интеркаляции как атомов железа, так и кобальта.

Для анализа сформированной системы были проведены РФЭС измерения при различных углах детектирования фотоэлектронов. На рисунке 2 показаны измерения основных уровней системы. Анализ спектров проводился путем разложения на спектральные компоненты. Спектр $\text{C}1s$ имеет двухкомпонентную форму: компонента с большей энергией связи (285 эВ) соответствует атомам углерода в графене, полученном при разрыве связей между БСГ и подложкой в результате интеркаляции атомов металлов [18, 19, 25]. Компонента с меньшей энергией связи (283.3 эВ) соответствует атомам углерода в подложке SiC. Уровень $\text{Si}2p$ представлен в виде разложения на 6 пиков. Два пика, отмеченные темно-зеленым цветом, соответствуют кремнию в подложке SiC, 3 пика, отмеченные светло-зеленым цветом, предположительно, соответствуют соединениям си-

лицидов металлов [25, 36, 27, 39, 47], и левый пик при 103.6 эВ соответствует оксиду кремния SiO_2 [48, 49]. Уровень $\text{Fe}2p_{3/2}$ представлен в виде трех компонент, основной компоненты – голубой цвет, и спутников, характерных для основных уровней металлов. В то же время $\text{Co}2p$ имеет более сложную структуру. Помимо основной компоненты с самой низкой энергией связи, можно выделить 3 другие компоненты. Серым цветом отмечены компоненты, предположительно, отвечающие за вклад спутников. Бирюзовым цветом отмечен Ожэ-пик железа, который находится в этом диапазоне при использовании данной энергии фотонов.

Для определения относительного залегания элементов по глубине был проведен анализ интенсивности спектральных компонент (пиков) РФЭС спектров – табл. 1. Сравнительный анализ отношений

Таблица 1. Таблица сравнения отношений интенсивностей спектральных компонент РФЭС спектров, измеренных при различных углах эмиссии фотоэлектронов

Название пика	Энергия связи (эВ)	I_{60}/I_0
SiO_2	103.6	1.5
Gr	285	1
Si_3	99.7	0.8
Si_2	100.1	0.65
Si_1	100.4	0.64
Co	778.8	0.45
Fe	707.25	0.4
Si bulk	101.6	0.4

интенсивностей, измеренных при касательном угле 60° и по нормали к поверхности (I_{60}/I_0) позволяет определять относительный порядок залегания элементов, в приближении планарности и однородно-

сти их распределения. Для удобства данные нормированы на интенсивность компоненты графена $C1s$ (285 эВ). Можно заметить, что наиболее поверхностным соединением является SiO_2 . Такой результат можно объяснить особенностью формирования графена в ходе термической графитизации карбида кремния. В работе [25] на изображениях поверхности SiC после формирования БСГ, полученных методом атомно-силовой микроскопии, были обнаружены кластеры, предположительно, кремния, которые формируются в результате прогрева монокристалла SiC при температуре выше 1000 °С. Учитывая, что спектры РФЭС регистрировались после выноса системы на атмосферные условия, мы предполагаем, что на поверхности графена присутствуют кластеры оксида кремния SiO_2 . Проведенный анализ показывает, что верхним слоем в сформированной системе является графен (компонента Gr). Под графеном оказываются локализованы силициды железа и кобальта (компоненты Si_1 , Si_2 и Si_3). Стоит отметить, что из полученных данных мы не можем однозначно утверждать о стехиометрии полученных силицидов металлов, поскольку пики уровня $Si2p$, отвечающие соединениям Co-Si и Fe-Si, находятся близко по энергии связи [50, 51]. Но сравнение с литературными данными показывает, что наиболее вероятно формирование соединений $CoSi_2$ и $FeSi$ [25, 47, 50, 51]. Согласно данным в табл. 1 ниже располагаются металлы Co и Fe. При этом железо является более глубокого лежащим элементом, что согласуется с тем, что железо напылялось перед кобальтом. Самым глуболежащим элементом в системе является кремний в подложке SiC . Полученные данные подтверждают интеркаляцию атомов Fe и Co под БСГ с формированием монослоя графена и силицида кобальта, силицида железа и, возможно, соединения Fe-Co между графеном и подложкой.

Также стоит отметить, что на спектре железа и кобальта отсутствует особенности, связанные с оксидами [52]. Данный факт свидетельствует об отсутствии окисления интеркалированных металлов при выносе системы на атмосферные условия, что важно для применения такого типа систем в устройствах спинтроники. В работе [27] также было обнаружено, что графен препятствует окислению железа, интеркалированного под графен на SiC .

Для изучения магнитных свойств системы были проведены измерения намагниченности в зависимости от температуры и приложенного внешнего поля с использованием СКВИД магнитометра. На рисунке 3а, б показаны зависимости магнитного

момента образца от приложенного магнитного поля $M(H)$ и магнитного момента от температуры $M(T)$, измеренные в плоскости (in-plane) образца. Зависимость $M(H)$ демонстрирует наличие петли гистерезиса вплоть до комнатной температуры, что свидетельствует о ферромагнитном или ферримагнитном характере упорядочения в данной системе. При этом форма петли с характерными скачками намагниченности в области ± 200 Э схожа с формой петли гистерезиса, наблюдаемой для поликристаллических ферромагнитных пленок $FeSi$ на кремнии [53]. На рисунке 3б можно заметить, что кривые FC и ZFC расходятся при температуре около $T = 240$ К. Такое поведение свойственно для супермагнетиков [54–57] и указывает на наличие суперферромагнитных частиц, имеющих собственный суперспин, который представляет собой сумму индивидуальных магнитных моментов атомов внутри частицы [57]. Известно, что некоторые силициды железа и кобальта, немагнитные в объеме, могут проявлять ферромагнитные свойства в ультратонких пленках и нанопроволоках [53, 58, 59]. Однако в нашем случае форма петли гистерезиса отличается от случая с магнитным нанотонким силицидом кобальта $CoSi$ [59], кроме того, в спектре $Si2p$ (рис. 2б) отсутствуют типичные особенности $CoSi$ [25]. Что в совокупности с характерными скачками намагниченности на зависимости $M(H)$ позволяет нам предположить, что ферромагнитное упорядочение определяется силицидом железа $FeSi$.

Анализируя зависимости намагниченности $M(H)$ и $M(T)$ в направлении, перпендикулярном (out-of-plane) плоскости поверхности образца, можно также обнаружить несколько уникальных особенностей. Во-первых, наличие петли гистерезиса на кривых $M(H)$ при всех измеряемых температурах, что указывает на ферромагнитное или ферримагнитное упорядочение в данном направлении. Во-вторых, помимо основной петли гистерезиса, на рис. 3с можно заметить побочные петли. В работе [60] было обнаружено подобное поведение $M(H)$ со второстепенными петлями для ультратонких слоев магнитных соединений и связывалось с различным обменным взаимодействием в соседствующих слоях. Также можно заметить, что на зависимости $M(T)$ кривые ZFC и FC не совпадают на всем диапазоне измеряемых температур. Однако их поведение похоже на поведение кривых ZFC и FC, показанных на рис. 3б ниже точки расхождения. Можно предположить, что температура расхождения для данного направления лежит выше комнатной. Различная температура магнитного перехода для in-plane и out-of-plane направлений мо-

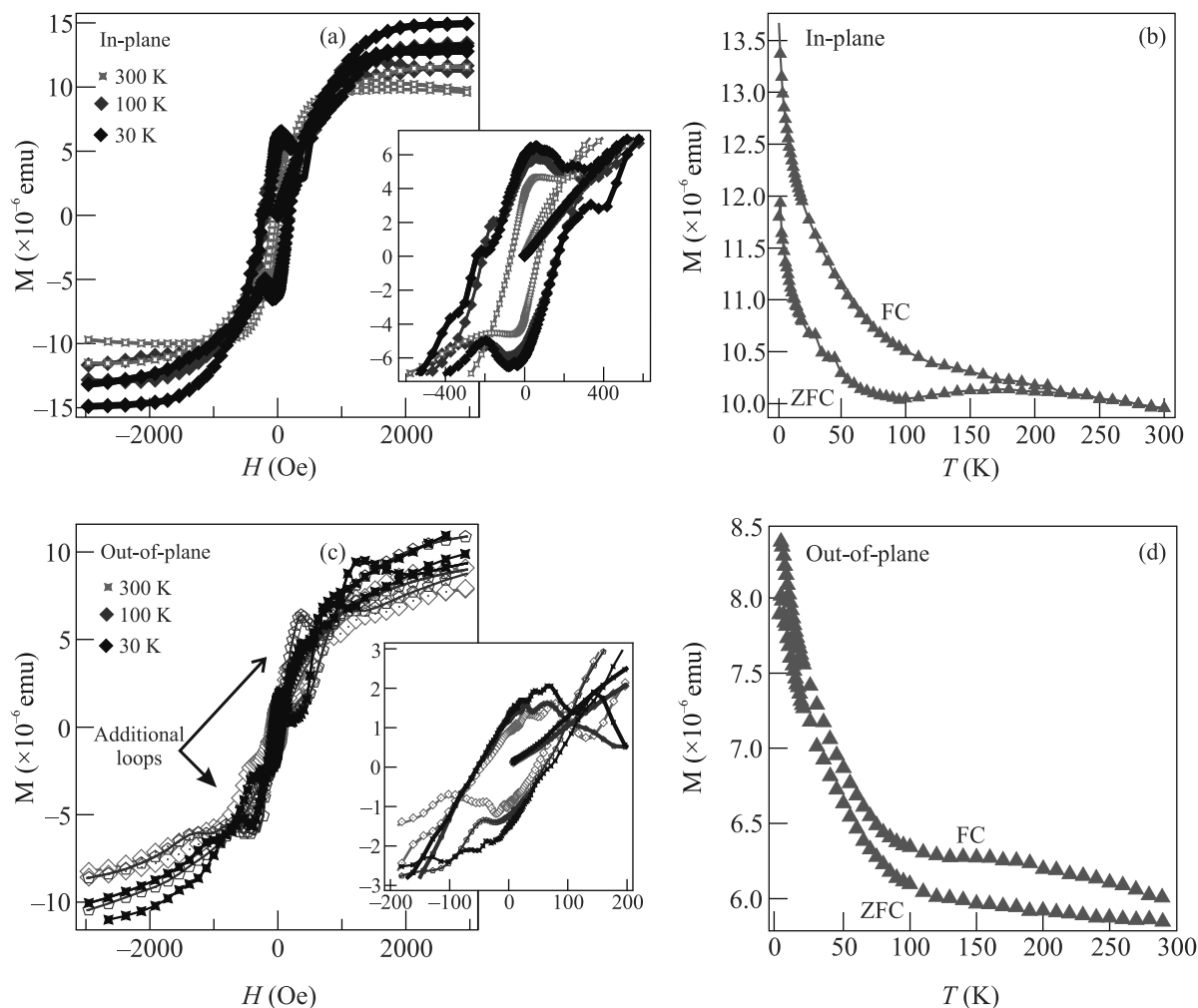


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a), (b) – Кривые изотермического намагничивания $M(H)$ полученной системы при различных температурах. (c), (d) – Температурная зависимость магнитной восприимчивости $M(T)$. ZFC (zero field cooling) – охлаждение в нулевом поле. FC (field cooling) – охлаждение с приложением магнитного поля $H = 1$ кЭ

жет быть связана с анизотропией обменного взаимодействия в этих направлениях.

Основываясь на величинах коэрцитивных сил, можно также провести анализ возможной стехиометрии формируемых соединений. Коэрцитивная сила H_C для направления in-plane в сформированной системе составляет около 200 Э при комнатной температуре, что является относительно высоким показателем по сравнению с эпитаксиальными тройными [61, 62] и бинарными [31] силицидами, имеющими значение H_C на порядок ниже. Проведено сравнение магнитных свойств полученной системы с пленками чистых металлов Co и Fe, основываясь на величинах коэрцитивной силы. Магнитные свойства тонких пленок Co или Fe сильно отличаются от объемных свойств ферромагнетика. Величина коэрцитивной силы зависит от толщины пленки, ее эпи-

таксии или поликристалличности, а также от подложки. В работе [64] было показано, что коэрцитивная сила для ультратонких пленок кобальта толщиной 8–15 монослоев на кремниевой подложке составляет порядка 40–100 Э. Для ультратонких пленок железа, наносимых при низких температурах на поверхность кремния, коэрцитивная сила также не превышает 100 Э [65]. Данные величины коэрцитивной силы существенно меньше тех, что наблюдаются для системы, полученной в настоящей работе.

Таким образом, формирование FeSi и CoSi₂ соединений, которое было обнаружено в результатах РФЭС, подтверждается наличием характерных для FeSi скачков намагниченности на петлях гистерезиса. CoSi₂ при этом является немагнитным соединением даже в наноформах, поэтому не дает вклад в магнитные свойства. Однако наблюдаемая в экспери-

менте величина коэрцитивной силы в 200 Э при комнатной температуре не достижима ни в одном из перечисленных выше соединений. В связи с этим можно предположить образование соединений железа и кобальта. Так как известно, что для сплавов Fe-Co коэрцитивная сила составляет около 200 Э при комнатной температуре [66], что хорошо согласуется с величиной коэрцитивной силы, измеренной для данной системы. Стоит отметить, что коэрцитивная сила и форма петли во многом определяются доменной структурой ферромагнетика. Последнее сильно зависит от морфологии и формы кристаллитов в поликристалле, а также от их типа и количества [67, 68]. Все эти факторы могут сильно влиять на величину H_C в формируемой системе. Принимая во внимание то, что частицы Fe-Co могут являться суперферромагнитными [55], не исключается формирование Fe-Co сплава на границе между графеном и подложкой.

Заключение. В данной работе был проведен анализ системы, полученной в результате совместной интеркаляции ультратонких пленок кобальта и железа под буферный слой графена, выращенный на монокристалле карбида кремния. Интеркаляция проводилась посредством поочередного напыления ультратонких пленок металлов Fe и Co на нагретую до 450 °С подложку с последующим прогревом до 600 °С в течение 15 мин. С помощью анализа рентгеновских фотоэлектронных спектров было подтверждено формирование системы графен/Fe-Co/SiC. Также было установлено, что интеркалированные металлы образуют соединения с кремнием (FeSi, CoSi₂) и друг с другом (Fe-Co). При помощи СКВИД магнитометра было показано наличие магнитного порядка вплоть до комнатной температуры. Стоит отметить, что при интеркаляции только одного из элементов (Fe или Co) под графен на SiC температура магнитного упорядочения не превышает 100 К. Существенное увеличение температуры магнитного упорядочения в полученной системе мы связываем с формированием под графеном магнитных ультратонких сплавов железа и кобальта (Fe-Co). Свидетельством формирования данных сплавов является широкая (около 200 Э) петля гистерезиса в зависимости $M(H)$ при комнатной температуре. Также было показано, что графен выполняет защитные функции в системе. Так, после экспозиции сформированной системы при атмосферных условиях в ней не наблюдалось формирование оксидов железа и кобальта. Было обнаружено небольшое количество SiO₂, появление которого скорее связано с формированием кластеров Si на поверхности графена и дальнейшим окислением.

Предложенный способ формирования графенсодержащей системы со сравнительно высокой температурой магнитного упорядочения может быть использован в ряде научных и практических задач. Например, в исследовании квантового аномального эффекта Холла в графене при повышенных температурах, и, как следствие, в применении его в устройствах спинтроники и наноэлектроники. Также на основе полученной системы может быть изготовлен спиновый транзистор. В нем магнитный сплав может выступать в роли “стока” для генерации спинового тока, а обладающий большой длиной спиновой релаксации графен в качестве среды для последующего трансфера данного тока к “истоку” транзистора.

4. Методы исследования. Перед синтезом образец подготавливался с помощью обезгаживания путем нагрева в условиях сверхвысокого вакуума при температурах до 800 °С. БСГ был синтезирован методом термической графитизации кремниевой поверхности монокристаллического образца SiC(0001). Толщина нанесенных слоев железа и кобальта контролировалась предварительной калибровкой источников с помощью РФЭС. Синтез системы и измерения ДМЭ проводились на станции НАНОФЭС Курчатовского комплекса синхротронных и нейтронных исследований (НИЦ “Курчатовский институт”) [69]. Предварительные работы по оптимизации технологии синтеза проводились в ресурсном центре “Физические методы исследования поверхности” Научного парка СПбГУ. Измерения РФЭС с угловым разрешением для конечной системы проводились на установке ESCALAB 250Xi в ресурсном центре “Физические методы исследования поверхности” Научного парка СПбГУ. Передача полученной системы между камерой синтеза и камерой измерений проводилась при атмосферных условиях. Измерения магнитных свойств были проведены в ресурсном центре “Центр диагностики функциональных материалов для медицины, фармакологии и наноэлектроники” Научного парка СПбГУ с использованием магнитометра Quantum Design “MPMS SQUID VSM”.

Работа была выполнена в рамках финансовой поддержки Санкт-Петербургского государственного университета (грант #94031444) и Российского научного фонда (грант #18-12-00062). Климовских И.И. благодарит поддержку программы стратегического академического лидерства “Приоритет 2030” (#075-02-2021-1316 30.09.2021).

1. A. K. Geim and K. S. Novoselov, Nat. Mater. **6**, 183 (2007).

2. M. J. Allen, V. C. Tung, and R. B. Kaner, *Chem. Rev.* **110**, 132 (2010).
3. A. M. Shikin, V. K. Adamchuk, S. Siebentritt, K.-H. Rieder, S. L. Molodtsov, and C. Laubschat, *Phys. Rev. B* **61**, 7752 (2000).
4. A. M. Shikin, D. Farias, V. K. Adamchuk, and K. H. Rieder, *Surf. Sci.* **424**, 155 (1999).
5. S. K. Tiwari, S. Sahoo, N. Wang, and A. Huczko, *Journal of Science: Advanced Materials and Devices* **5**, 1 (2020).
6. D.-D. Wu and H.-H. Fu, *Nanotechnology* **32**, 245703 (2021).
7. C. L. Kane and E. J. Mele, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 226801 (2005).
8. P. Högl, T. Frank, K. Zollner, D. Kochan, M. Gmitra, and J. Fabian, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 136403 (2020).
9. A. V. Fedorov, N. I. Verbitskiy, D. Haberer, C. Struzzi, L. Petaccia, D. Usachov, O. Y. Vilkov, D. V. Vyalikh, J. Fink, M. Knupfer, B. Büchner, and A. Grüneis, *Nat. Commun.* **5**, 3257 (2014).
10. B. M. Ludbrook, G. Levy, P. Nigge et al. Collaboration), *Proceedings of the National Academy of Sciences* **112**, 11795 (2015).
11. X. Du, I. Skachko, A. Barker, and E. Y. Andrei, *Nature Nanotech.* **3**, 491 (2008).
12. L. Banszerus, M. Schmitz, S. Engels, M. Goldsche, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. Beschoten, and Ch. Stampfer, *Nano Lett.* **16**, 2 (2016).
13. M. Drögel, Ch. Franzen, F. Volmer, T. Pohlmann, L. Banszerus, M. Wolter, K. Watanabe, T. Taniguchi, Ch. Stampfer, and B. Beschoten, *Nano Lett.* **16**, 3533 (2016).
14. M. Venkata Kamalakar, Ch. Groenveld, A. Dankert, and S. P. Dash, *Nat. Commun.* **6**, 6766 (2015).
15. S. Sato, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 4 (2015).
16. E. C. Ahn, *npj 2D Mater. Appl.* **4**, 17 (2020).
17. A. G. Rybkin, A. A. Rybkina, M. M. Otrokov, O. Yu. Vilkov, I. I. Klimovskikh, A. E. Petukhov, M. V. Filianina, V. Yu. Voroshnin, I. P. Rusinov, A. Ernst, A. Arnau, E. V. Chulkov, and A. M. Shikin, *Nano Lett.* **18**(3), 1564 (2018).
18. A. G. Rybkin, A. V. Tarasov, A. A. Rybkina, D. Yu. Usachov, A. E. Petukhov, A. V. Eryzhenkov, D. A. Pudikov, A. A. Gogina, I. I. Klimovskikh, G. Di Santo, L. Petaccia, A. Varykhalov, and A. M. Shikin, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 226401 (2022).
19. Y. G. Semenov, K. W. Kim, J. M. Zavada, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 15 (2007).
20. S. Bae, H. Kim, Y. Lee, et al. (Collaboration), *Nature Nanotechnology* **5**, 574 (2010).
21. H. Ago, Y. Ito, N. Mizuta, K. Yoshida, B. Hu, C. M. Orofeo, M. Tsuji, K.-i. Ikeda, and S. Mizuno, *ACS Nano* **4**, 7407 (2010).
22. A. V. Fedorov, A. Yu. Varykhalov, A. M. Dobrotvorskii, A. G. Chikina, V. K. Adamchuk, and D. Yu. Usachov, *Phys. Solid State* **53**, 1952 (2011).
23. Y. Zhang, L. Zhang, and C. Zhou, *Acc. Chem. Res.* **46**, 2329 (2013).
24. D. Yu. Usachov, K. A. Bokai, D. E. Marchenko, A. V. Fedorov, V. O. Shevelev, O. Yu. Vilkov, E. Yu. Kataev, L. V. Yashina, E. Rühl, C. Laubschat, and D. V. Vyalikh, *Nanoscale* **10**, 12123 (2018).
25. I. I. Klimovskikh, M. M. Otrokov, V. Yu. Voroshnin, D. Sostina, L. Petaccia, G. Di Santo, S. Thakur, E. V. Chulkov, and A. M. Shikin, *ACS Nano* **11**, 368 (2017).
26. Y. Wang, F. Qing, Y. Jia, Y. Duan, Ch. Shen, Y. Hou, Y. Niu, H. Shi, and X. Li, *Chemical Engineering Journal* **405**, 127014 (2021).
27. D. A. Estyunin, I. I. Klimovskikh, V. Yu. Voroshnin, D. M. Sostina, L. Petaccia, G. Di Santo, and A. M. Shikin, *JETP* **125**, 762 (2017).
28. M. M. Otrokov, I. I. Klimovskikh, F. Calleja, A. M. Shikin, O. Vilkov, A. G. Rybkin, D. Estyunin, S. Muff, J. H. Dil, A. L. Vázquez de Parga, R. Miranda, H. Ochoa, F. Guinea, J. I. Cerdá, E. V. Chulkov, and A. Arnau, *2D Materials* **5**, 035029 (2018).
29. C. Berger, Zh. Song, T. Li, X. Li, A. Y. Ogbazghi, R. Feng, Zh. Dai, A. N. Marchenkov, E. H. Conrad, Ph. N. First, and W. A. de Heer, *J. Phys. Chem. B* **108**, 19912 (2004).
30. M. G. Mynbaeva, A. A. Lavrent'ev, and K. D. Mynbaev, *Semiconductors* **50**, 138 (2016).
31. C. Riedl, C. Coletti, and U. Starke, *J. Phys. D* **43**, 374009 (2010).
32. K. V. Emtsev, F. Speck, T. Seyller, L. Ley, and J. D. Riley, *Phys. Rev. B* **77**, 155303 (2008).
33. D. De Fazio, D. G. Purdie, A. K. Ott, Ph. Braeuninger-Weimer, T. Khodkov, S. Goossens, T. Taniguchi, K. Watanabe, P. Livreri, F. H. L. Koppens, S. Hofmann, I. Goykhman, A. C. Ferrari, and A. Lombardo, *ACS Nano* **13**, 8926 (2019).
34. A. A. Rybkina, S. O. Filnov, A. V. Tarasov, D. V. Danilov, M. V. Likholetova, V. Yu. Voroshnin, D. A. Pudikov, D. A. Glazkova, A. V. Eryzhenkov, I. A. Eliseyev, V. Yu. Davydov, A. M. Shikin, and A. G. Rybkin, *Phys. Rev. B* **104**, 155423 (2021).
35. S. J. Sung, J. W. Yang, P. R. Lee, J. G. Kim, M. T. Ryu, H. M. Park, G. Lee, C. C. Hwang, K. S. Kim, J. S. Kima, and J. W. Chung, *Nanoscale* **6**, 3824 (2014).
36. S. O. Filnov, A. A. Rybkina, A. V. Tarasov, A. V. Eryzhenkov, I. A. Eliseev, V. Yu. Davydov, A. M. Shikin, and A. G. Rybkin, *JETP* **134**, 188 (2022).
37. K. Shen, H. Sun, J. Hu, et al., *The Journal of Physical Chemistry C* **122**, 37 (2018).
38. M. V. Gomoyunova, G. S. Grebenyuk, V. Yu. Davydov, I. A. Ermakov, I. A. Eliseyev, A. A. Lebedev, S. P. Lebedev, E. Yu. Lobanova, A. N. Smirnov,

- D. A. Smirnov, and I. I. Pronin, *Phys. Solid State* **60**, 1439 (2018).
39. G. S. Grebenyuk, E. Yu. Lobanova, D. A. Smirnov, I. A. Eliseyev, A. V. Zubov, A. N. Smirnov, S. P. Lebedev, V. Yu. Davydov, A. A. Lebedev, and I. I. Pronin, *Phys. Solid State* **61**(7), 1374 (2019).
 40. N. A. Anderson, M. Hupalo, D. Keavney, M. C. Tringides, and D. Vaknin, *Phys. Rev. Materials* **1**, 054005 (2017).
 41. P. D. Bentley, T. W. Bird, A. P. J. Graham, O. Fossberg, S. P. Tear, and A. Pratt, *AIP Adv.* **11**, 025314 (2021).
 42. N. A. Anderson, M. Hupalo, D. Keavney, M. Tringides, and D. Vaknin, *J. Magn. Magn. Mater.* **474**, 666 (2019).
 43. V. N. Narozhnyi and V. N. Krasnorussky, *JETP* **116**, 780 (2013).
 44. E. V. Ganapathy, K. Kugimiya, H. Steinfink, and D. I. Tchernev, *Journal of the Less Common Metals* **44**, 245 (1976).
 45. I. Goldfarb, F. Cesura, and M. Dascalu, *Adv. Mater* **30**, 1800004 (2018).
 46. A. J. van Bommel, J. E. Crombeen, and A. van Tooren, *Surf. Sci.* **48**, 463 (1975).
 47. J. N. Hausmann, R. Beltrán-Suito, S. Mebs, V. Hlukhyy, Th. F. Fässler, H. Dau, M. Driess, and P. W. Menezes, *Adv. Mater.* **33**, 27, 2008823 (2021).
 48. D. S. Jensen, S. S. Kanyal, and N. Madaan, *Surface Science Spectra* **20**, 36 (2013).
 49. H.-f. Li, S. Dimitrijević, D. Sweatman, H. Barry Harrison, and Ph. Tanner, *J. Appl. Phys.* **86**, 4316 (1999).
 50. JooHyung Kim, JungYup Yang, JunSeok Lee and JinPyo Hong, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 013512 (2008).
 51. V. Kinsinger, I. Dezi, P. Steiner, and G. Langouche, *J. Phys. Condens. Matter* **2**, 22 (1990).
 52. M. C. Biesinger, B. P. Payne, A. P. Grosvenor, L. W. M. Lau, A. R. Gerson, and R. St. C. Smart, *Applied Surface Science* **257**, 2717 (2011).
 53. Y. Shin, D. A. Tuan, Y. Hwang, T. V. Cuong, and S. Cho, *J. Appl. Phys.* **113**, 17C306 (2013).
 54. A. Zelenková, V. Zelenák, I. Mat'ko, M. Strečková, P. Hrubovčák, and J. Kováč, *J. Appl. Phys.* **116**, 033907 (2014).
 55. S. Bedanta and W. Kleemann, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 013001 (2009).
 56. O. Sendetskyi, L. Anghinolfi, V. Scagnoli, G. Möller, N. Leo, A. Alberca, J. Kohlbrecher, J. Lüning, U. Staub, and L. J. Heyderman, *Phys. Rev. B* **93**, 224413 (2016).
 57. M. Perzanowski, A. Zarzycki, J. Gregor-Pawłowski, and M. Marszałek, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8**, 28159 (2016).
 58. Ch.-Y. Yang, Sh.-M. Yang, Y.-Y. Chen, and K.-Ch. Lu, *Nanoscale Res. Lett.* **15**, 197 (2020).
 59. K. Seo, K. S. K. Varadwaj, P. Mohanty, S. Lee, Y. Jo, M.-H. Jung, J. Kim, and B. Kim, *Nano Lett.* **7**(5), 1240 (2007).
 60. M. Ziese, I. Vrejoiu, and D. Hesse, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 052504 (2010).
 61. V. Asvini, G. Saravanan, R. K. Kalaiezhily, and K. Ravichandran, *AIP Conf. Proc.* **1942**, 1 (2018).
 62. W. Zhu, Zh. Zhu, D. Li, G. Wu, L. Xi, Q. Y. Jin, and Z. Zhang, *Journal J. Magn. Magn. Mater.* **479**, 179 (2019).
 63. I. Goldfarb, F. Cesura, and M. Dascalu, *Adv. Mater.* **30**(41), 1800004 (2018).
 64. H. Xu, A. C. H. Huan, A. T. S. Wee, and D. M. Tong, *Solid State Commun.* **126**, 659 (2003).
 65. H. Xu, A. C. H. Huan, A. T. S. Wee, and D. M. Tong, *J. Appl. Phys.* **109**, 023908 (2011).
 66. Z. J. Huba, K. J. Carroll, and E. E. Carpenter, *J. Appl. Phys.* **109**, 07B514 (2011).
 67. T. Hasegawa, *Journal of Applied Physics Electronics and Communications in Japan* **104**, 2 (2021).
 68. M. Belusky, S. Lepadatu, J. Naylor, and M. Vopson, *Physica B: Condensed Matter* **574**, 411666 (2019).
 69. A. M. Lebedev, K. A. Menshikov, V. G. Nazin, V. G. Stankevich, M. B. Tsetlin, and R. G. Chumakov, *Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques* **15**, 1039 (2021).

Структурная наследственность жидкость-кристалл в потенциалах машинного обучения для сетевых систем

И. А. Балякин^{+*1)}, Р. Е. Рыльцев⁺¹⁾, Н. М. Щелкачев^{+×1)}

⁺ Институт металлургии Уральского отделения РАН, 620016 Екатеринбург, Россия

^{*} Научно-образовательный центр “Наноматериалы и нанотехнологии”,
Уральский Федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия

[×] Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Вережагина, 142190 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 ноября 2022 г.

После переработки 31 января 2023 г.

Принята к публикации 31 января 2023 г.

В работе рассмотрен вопрос о способности потенциалов машинного обучения (MLIP), параметризованных с использованием только неупорядоченных конфигураций, соответствующих жидкости, описывать свойства кристаллических фаз и предсказывать их структуру. В качестве объекта исследования мы рассматриваем сетевую систему SiO₂, обладающую большим количеством полиморфных фаз, значительно отличающихся по структуре и плотности. С использованием только высокотемпературных неупорядоченных конфигураций был параметризован MLIP на основе искусственных нейронных сетей (модель DeePMD). Потенциал демонстрирует хорошую способность воспроизводить *ab initio* зависимости энергии от объема и плотности колебательных состояний для всех рассмотренных тетра- и октаэдрических кристаллических фаз SiO₂. Более того, при помощи комбинации эволюционного алгоритма и разработанного DeePMD-потенциала удалось воспроизвести реально наблюдаемые в эксперименте кристаллические структуры SiO₂. Такая хорошая переносимость жидкость-кристалл для MLIP открывает перспективы моделирования структуры и свойств новых систем, для которых отсутствует экспериментальная информация о кристаллических фазах.

DOI: 10.31857/S1234567823050099, EDN: pybaym

Введение. В последние годы достигнут существенный прогресс в атомистическом моделировании материалов, связанный с применением методов машинного обучения для построения классических межатомных потенциалов взаимодействия [1–3]. Основная идея такого подхода – аппроксимировать поверхность потенциальной энергии системы с помощью некоторой многочастичной функции общего вида (например, многослойной нейронной сети), используя эталонные значения энергий и межатомных сил, полученные с помощью *ab initio* расчетов. Данная идея аналогична предложенному в начале 1990-х методу Force-Matching [4], который в дальнейшем успешно использовался для параметризации модельных потенциалов типа погруженного атома [5–7]. Принципиальное отличие потенциалов машинного обучения (MLIP – *Machine Learning Interatomic Potentials*) в использовании гораздо более сложных многочастичных функций, имеющих иногда сотни

тысяч настраиваемых параметров, что позволяет достигать точности, сравнимой с точностью *ab initio* методов, при на порядки меньших вычислительных затратах.

Несмотря на привлекательность такого подхода, многие ключевые вопросы, касающиеся построения MLIP и их применения для решения конкретных задач, являются нерешенными. Ключевой проблемой является разработка эффективных методов формирования тренировочного датасета (ТД) – набора репрезентативных атомных конфигураций и соответствующих им значений энергий и сил, используемых для параметризации MLIP. В большинстве случаев, основой для построения ТД являются упорядоченные конфигурации, соответствующие различным кристаллическим фазам исследуемой системы; неупорядоченные (жидкие, аморфные) конфигурации используются только как дополнение к кристаллическим или в том случае, когда изучение соответствующих неупорядоченных фаз является целью исследования [3]. Возникают естественные вопросы: какие кристаллические конфигурации рассматривать

¹⁾ e-mail: i.a.balyakin@gmail.com; rrylcev@mail.ru;
n.chelchekatchev@gmail.com

для параметризации потенциалов и каким алгоритмом их генерировать. Один из возможных вариантов – использование кристаллографических баз данных, либо репозитория вычислительных проектов, таких как Materials Project, OQMD, AiiDA и др. Найденные в таких базах конфигурации формируют базовый ТД, который затем расширяется путем введения структурных дефектов и/или в ходе МД расчетов [8]. Основная проблема такого подхода – необходимость априорного знания или, по крайней мере, некоторых предположений о кристаллических структурах, которые могут возникать в исследуемой системе. Однако для многих (особенно многокомпонентных) систем подобная информация может быть весьма ограничена или вовсе недоступна. В таких случаях необходимы методы построения репрезентативных ТД, которые не используют априорную информацию о кристаллических структурах.

Один из способов решения данной задачи – параметризация MLIP с использованием только неупорядоченных конфигураций, соответствующих жидкости. В силу достаточной подвижности атомов, моделирование жидкости методом МД при различных концентрациях, температурах и давлениях позволяет достаточно быстро сформировать репрезентативный ТД и параметризовать MLIP, который позволяет с высокой точностью моделировать свойства расплавов [9, 10]. Возникает вопрос: как MLIP, параметризованный с использованием исключительно неупорядоченных жидких конфигураций, будет описывать свойства кристаллических фаз?

Данный вопрос пока мало изучен; в литературе имеется всего несколько примеров использования такого подхода. Так, недавно был предложен MLIP для моделирования рубидия, при параметризации которого использовались преимущественно неупорядоченные конфигурации [11]. Было показано, что такой потенциал воспроизводит максимум на зависимости температуры плавления ОЦК-фазы рубидия от давления. Однако рубидий – сравнительно простой пример щелочного металла с преимущественно изотропным межатомным взаимодействием. Кроме того, авторы все же использовали небольшое число кристаллических конфигураций для параметризации. Принципиальный вопрос – будет ли такая процедура машинного обучения эффективна для описания более сложных многокомпонентных систем с анизотропным взаимодействием. Частичный ответ на этот вопрос дает работа [12], где MLIP, параметризованный на конфигурациях жидкой воды, был использован для расчета плотности, энергий и колебательных спектров различных фаз льда в сравнении с *ab*

initio расчетами. Однако в данной работе наблюдается невысокая точность воспроизведения энергий кристаллических структур. А именно, на корреляционных зависимостях энергий, вычисленных с помощью MLIP и *ab initio*, имеется систематическое смещение от диагонали, равное по порядку величины дисперсии (ср. с рис. 4 в данной работе). Аналогичная проблема наблюдалась и в работе [13], где MLIP, параметризованный на жидких конфигурациях, использовался для поиска стабильных кристаллических структур с помощью эволюционного алгоритма. Это является серьезным недостатком, поскольку систематические ошибки в описании энергетики кристаллов недопустимы при использовании MLIP для предсказания их структуры.

Возникает принципиально важный вопрос: можно ли построить самосогласованный и не требующий априорной информации о кристаллических структурах метод построения MLIP, позволяющий с высокой точностью описывать как неупорядоченные, так и упорядоченные фазы и предсказывать их структуру. Очевидно, что универсального ответа на поставленный вопрос не существует и результат будет различным для систем различной природы, различных моделей машинного обучения и способов формирования ТД. В данной работе мы исследуем данный вопрос для сетевых систем, рассмотрев кремнезем SiO_2 в качестве репрезентативной системы для данного класса. Это достаточно сложная система с большим количеством полиморфных фаз, значительно отличающихся по структуре и плотности. В литературе имеются примеры построения MLIPs для SiO_2 [10, 14, 15], которые хорошо воспроизводят известные экспериментальные и расчетные данные для свойств как кристаллических, так и неупорядоченных фаз. Однако во всех случаях для моделирования кристаллов были использованы потенциалы, параметризованные с использованием соответствующих кристаллических конфигураций. Ни в одной из представленных работ не были рассмотрены вопросы о переносимости жидкость-кристалл при построении MLIPs и, в частности, о возможности предсказания структуры кристаллических фаз на основе информации о локальной структуре жидкости.

Помимо практической важности для вычислительного материаловедения, рассматриваемые вопросы имеют и чисто фундаментальный интерес для физики неупорядоченных систем. Действительно, вопрос о том, насколько локальная структура жидкостей содержит информацию о структуре кристаллов и в какой мере она может быть использована для вычисления и предсказания их свойств, яв-

ляется крайне интересным и малоизученным. В последние годы стали появляться работы, посвященные изучению данного вопроса. Оказалось, что анализ свойств расплава в некоторых случаях позволяет делать важные (в том числе и предсказательные) выводы о структуре и свойствах твердых фаз [16–19]. Для характеристики генетической взаимосвязи между структурой жидкости и кристалла мы в дальнейшем будем употреблять термин “структурная наследственность”.

Разработка потенциала. Ключевыми этапами разработки любого MLIP являются выбор способа преобразования координат локального окружения атомов в набор так называемых дескрипторов – чисел, инвариантных относительно операций трансляции, вращения и пермутации и выбор регрессионной модели, используемой для аппроксимации поверхности потенциальной энергии. Как показывает опыт, выбор дескрипторов влияет на точность и производительность модели существенней, чем выбор регрессора [9]. В данной работе мы применяем модель DeePMD [20], в которой используются две связанные искусственные нейронные сети (ИНС): сеть погружения для преобразования локального окружения атомов в дескрипторы, и аппроксимирующая сеть для преобразования дескрипторов всех атомов системы в потенциальную энергию. Архитектура обеих ИНС выбирается в виде многослойной полносвязной нейронной сети прямого распространения (так называемый перцептрон). Полное математическое описание структуры модели довольно громоздко и подробно изложено в работе [2]. Мы ограничимся только кратким описанием основных идей.

Локальное окружение i -го атома описывается матрицей $\mathcal{R}^i \in \mathbb{R}^{N_i \times 3}$, содержащей координаты N_i ближайших соседей в сфере радиуса r_{cut} , заданных в локальной системе координат. Эта матрица преобразуется в $\tilde{\mathcal{R}}^i \in \mathbb{R}^{N_i \times 4}$ как $\{\mathbf{r}_{ij}\} \rightarrow s(r_{ij})\{1, \mathbf{r}_{ij}/r_{ij}\}$, где $s(r_{ij})$ – некоторая непрерывная дифференцируемая функция, монотонно убывающая до нуля при $r \rightarrow r_{\text{cut}}$. Набор дескрипторов для окружения i -го атома формируется как $\mathcal{D}_i = \frac{1}{N_i^2} (\mathcal{G}_i^{<M})^T \tilde{\mathcal{R}}_i \tilde{\mathcal{R}}_i^T \mathcal{G}_i$, где $\mathcal{G}_i$ – вектор длины M , возвращаемый ИНС погружения, на входной слой которой подаются векторы $s(R_{ij})$, а $\mathcal{G}_i^{<M}$ – вектор, состоящий из первых $M_1 < M$ элементов вектора $\mathcal{G}_i$. Можно показать, что $\mathcal{D}_i$ обеспечивают инвариантность относительно трансляций, вращений и перестановок. Важно, что данные дескрипторы адаптивны, поскольку веса ИНС погружения также модифицируются в ходе параметризации. Для использования таких дескрипторов требуется минимум человеческого вме-

шательства, фактически необходимо лишь задание архитектуры ИНС погружения. Большое в сравнении с другими дескрипторами число параметров позволяет ИНС-дескрипторам быть достаточно гибкими для описания различных фаз материала в широком диапазоне температур и давлений.

Ключевую роль при параметризации MLIP играет способ формирования ТД. Один из стандартных способов – строить ТД из конфигураций, полученных в ходе моделирования первопринципной МД. Такой подход может давать неудовлетворительные результаты, поскольку длина траекторий в первопринципной МД, как правило, не превышает несколько пикосекунд. Генерируемые таким образом конфигурации оказываются сильно коррелированы, поскольку на временах моделирования система может оказаться запертой в области конфигурационного пространства, соответствующей некоторому локальному минимуму потенциальной энергии (вероятно, с такой проблемой столкнулись авторы работы [13]). Для решения данной проблемы применяются различные алгоритмы так называемого активного обучения, позволяющие эффективно отбирать конфигурации в широкой области конфигурационного пространства [2, 21].

В данной работе для формирования ТД использовался один из вариантов активного обучения, реализованный в программном пакете DPGEN [22]. В основе алгоритма лежит итеративное повторение трех шагов *training*, *exploration* и *labeling*. На этапе *training* на существующем ТД параметризуются несколько (N_{models}) DeePMD-потенциалов с одинаковой архитектурой ИНС, но различными случайными распределениями начальных значений параметров. Данные модели используются для проведения классического МД моделирования при различных температурах T , давлениях P и концентрациях (этап *exploration*). Использование классического МД позволяет запускать десятки параллельных расчетов при различных термодинамических параметрах и рассматривать траектории длиной в сотни пикосекунд и тем самым эффективно охватывать широкие области конфигурационного пространства. Для каждой из таких траекторий происходит контроль точности потенциала и отбор конфигураций, на которых модель дает низкую точность. Для этой цели для конфигураций $\mathcal{R}_t$, возникающих в ходе данной траектории на шаге t , оценивается величина:

$$\epsilon_t = \max_i \sqrt{|\langle F_{w,i}(\mathcal{R}_t) - \langle F_{w,i}(\mathcal{R}_t) \rangle|^2},$$

где $F_{w,i}(\mathcal{R}_t)$ – сила, действующая в DeePMD-модели с параметрами w на i атом в конфигурации $\mathcal{R}_t$,

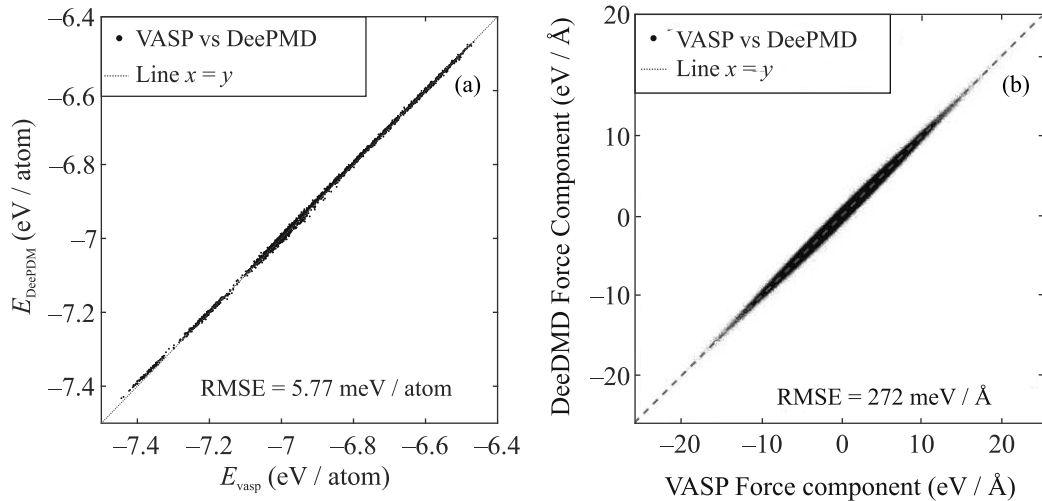


Рис. 1. (Цветной онлайн) Корреляционные зависимости энергий (a) и компонент сил (b), вычисленных в VASP и DeePMD

усреднение проводится по ансамблю моделей. Конфигурации, для которых выполняется неравенство $\epsilon_l < \epsilon_t < \epsilon_h$, отбираются в список кандидатов на пополнение ТД. Затем, для некоторого заданного числа конфигураций из списка кандидатов проводятся *ab initio* расчеты энергии, межатомных сил и тензоров напряжений (этап *labeling*). Описанная процедура повторяется, пока не наступает насыщение ТД, т.е. новые конфигурации перестают отбираться на этапе *exploration*. Данный алгоритм позволяет сформировать компактный и репрезентативный ТД, содержащий статистически независимые конфигурации.

В данной работе для проведения классического МД моделирования с MLIP использовался программный пакет LAMMPS [23]; первопринципные расчеты осуществлялись в рамках теории функционала электронной плотности (DFT), реализованной в пакете VASP [24]. В ходе параметризации рассматривались сверхъядейки, состоящие из 342 частиц (114 структурных единиц SiO_2).

Важными параметрами DeePMD модели являются: радиус обрезки r_{cut} , радиус сглаживания r_{smth} , архитектура ИНС погружения, архитектура аппроксимирующей ИНС, начальная скорость обучения l_{start} , конечная скорость обучения l_{stop} , начальный (конечный) вес энергий (сил, вириалов) $p_{e(f,v)}^{\text{start(limit)}}$, количество эпох обучения N_{epoch} , размер пакета обучения N_{batch} .

Помимо указанных выше параметров, на ИНС-потенциал влияют параметры *ab initio* расчетов. К важнейшим из них в нашем случае относятся: тип используемого приближения для обменно-корреляционной энергии, вид псевдопотенциалов,

энергия обрезки плосковолнового базиса E_{cut} , способ размытия плотности электронных состояний (ISMEAR) и параметр размытия σ , сетка в k пространстве. При расчетах в VASP использовались PAW-PBE псевдопотенциалы [25].

В таблице 1 приведены значения всех ключевых параметров активного обучения, DeePMD модели и *ab initio* расчетов. С использованием приведенных параметров было разработано два потенциала: один параметризовался только на конфигурациях расплава, соответствующих траекториям при нулевом давлении (LP-DeePMD), а второй – с включением высоких давлений вплоть до 70 ГПа (HP-DeePMD).

Таблица 1. Параметры DeePMD и VASP, используемые при параметризации потенциалов

Параметр	Значение	Параметр	Значение
T , 10^3 К	3.0–4.5	p , ГПа	0–70
ϵ_l , эВ/Å	0.15	ϵ_h , эВ/Å	0.30
r_{cut} , Å	7	r_{smth} , Å	4
ИНС погружения	[50 100]	Атомная ИНС	[250 250 250]
l_{start}	10^{-3}	l_{stop}	10^{-5}
N_{models}	4	p_e	5
p_f	500	p_v	5
N_{epoch}	10^6	N_{batch}	1
E_{cut} , эВ	520	k -сетка	Г-точка
ISMEAR	0	σ	0.05

Тестирование потенциала. На рисунке 1 представлены корреляционные зависимости энергий (рис. 1a) и компонент сил (рис. 1b), вычисленных посредством DFT и HP-DeePMD для одних и тех же конфигураций. Из рисунка 1 видно, что *ab initio*

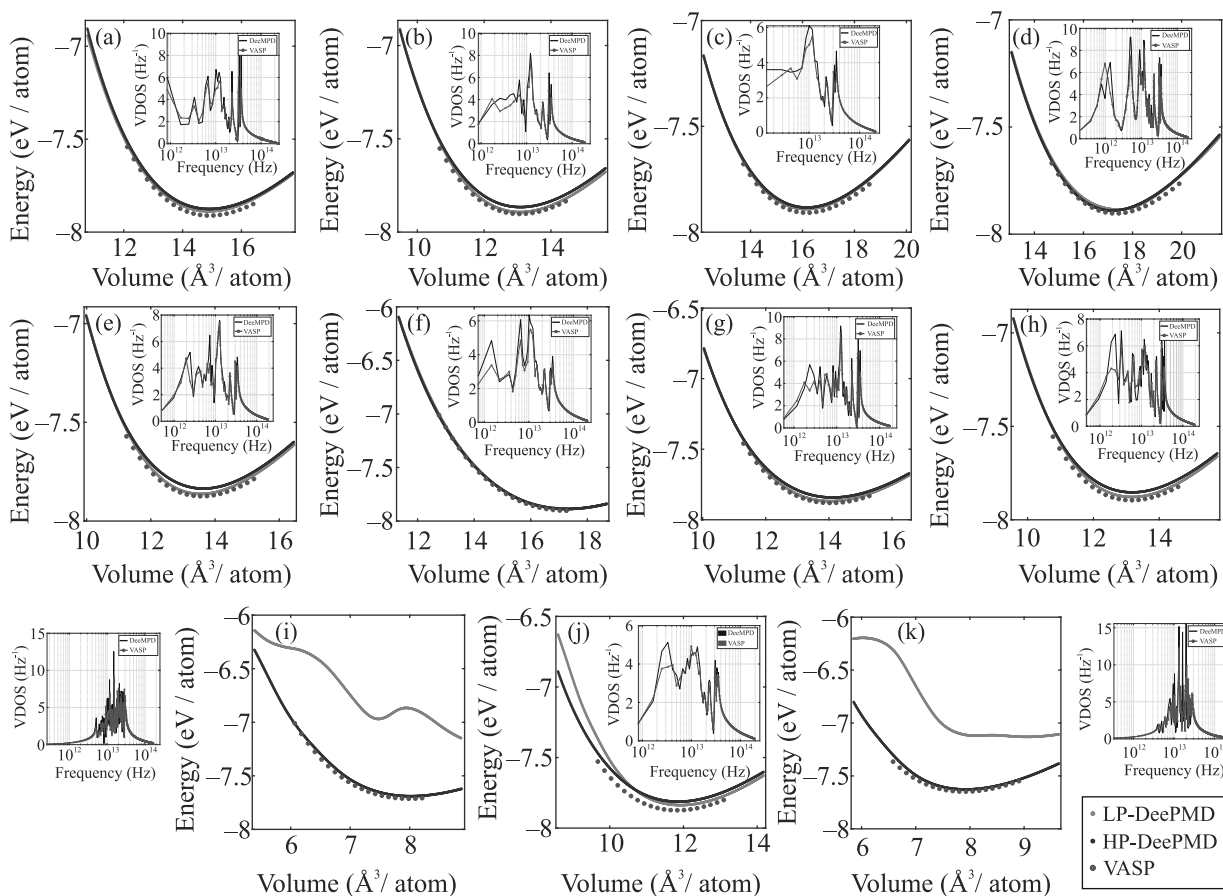


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости энергии от объема, полученные потенциалами DeePMD и DFT расчетами в VASP для: (a) – α -кварцита; (b) – α -кварца; (c) – α -тридимита; (d) – β -кварцита; (e) – β -кварца; (f) – β -тридимита; (g) – кеатита; (h) – могонита; (i) – сейферита; (j) – коэсита; (k) – стировита. На вставках – плотности колебательных состояний, полученные потенциалом HP-DeePMD и с помощью *ab initio* молекулярной динамики в VASP

энергии и силы достаточно хорошо воспроизводятся DeePMD-потенциалом для конфигураций, соответствующих жидкому состоянию. Опыт показывает, что такая точность обеспечивает хорошую воспроизводимость структурных и динамических свойств расплавов [9, 10].

Для анализа переносимости полученного потенциала на кристаллические фазы SiO_2 были рассчитаны зависимости энергии от объема для следующих структур: α и β кварцита, кварца и тридимита, кеатит, коэсит, могонит, сейферит и стировит. Данные зависимости, вычисленные посредством LP-DeePMD и HP-DeePMD, представлены на рис. 2. Видно, что LP-DeePMD потенциал очень хорошо воспроизводит уравнения состояния тетраэдрических фаз (рис. 2a–h, k), однако не способен описывать октаэдрические фазы (рис. 2i, k). Этот результат является ожидаемым, поскольку при нулевом давлении локальная структура расплава име-

ет только тетраэдрические конфигурации. Однако включение жидких конфигураций при высоких давлениях, которые уже содержат и октаэдрические конфигурации, позволяет описать уравнения состояния сейферита и стировита при практически неизменной точности описания тетраэдрических фаз. Помимо уравнений состояния, мы рассчитали плотности колебательных состояний (фурье-образы автокорреляционной функции скорости) при температурах и давлениях, находящимся в области стабильности той или иной фазы, с помощью HP-DeePMD и DFT для всех исследованных в работе кристаллических фаз (см. вставки на рис. 2). Из рисунка 2 видно, что разработанный потенциал обеспечивает хорошую точность вычисления колебательных спектров в сравнении с *ab initio* расчетами. Различия в области малых частот обусловлены относительно малой длиной траекторий *ab initio* молекулярной динамики.

Таким образом, DeePMD потенциал, параметризованный только при помощи неупорядоченных конфигураций, способен правильно описывать энергетику и колебательные свойства кристаллических фаз, что является нетривиальным результатом.

Эволюционный поиск. Для проверки возможности использования жидкостного MLIP для предсказания стабильных кристаллических структур мы использовали потенциал HP-DeePMD для оптимизации структур и вычисления их энтальпий в ходе эволюционного поиска в программном пакете USPEX [26–28]. Данным методом были определены как наиболее устойчивые, так и метастабильные кристаллические фазы при давлениях 0 и 10 ГПа. Отметим, что для SiO_2 данная задача является очень сложной, поскольку эта система, помимо фаз, присутствующих на равновесной фазовой диаграмме, имеет десятки метастабильных фаз, отличающихся по энергии на несколько мэВ/атом. По этой причине даже алгоритмы поиска, основанные на *ab initio* расчетах, могут испытывать трудности с поиском стабильных фаз в SiO_2 [29]. Так, например, в базах данных известных вычислительных материаловедческих проектов materialsproject.org и oqmd.org экспериментально наиболее стабильный α -кварц занимает лишь соответственно 56 и 29 места в сортированных по энергии списках возможных структур. Поэтому успешным тестом потенциала в ходе такого поиска является даже не правильное предсказание стабильных фаз, а хорошая корреляция между энергиями предсказанных структур, вычисленных с помощью DeePMD и VASP. На рисунке 3 представлена такая корреляционная зависимость для структур, найденных посредством HP-DeePMD и USPEX. Мы видим выраженную линейную корреляцию между *ab initio* и DeePMD энергиями (коэффициент корреляции Пирсона равен 0.987). Среднеквадратичное отклонение DeePMD значений энергий от DFT составляет 59 мэВ/атом. Однако, как видно из рис. 3, на корреляционной кривой присутствует заметное количество метастабильных структур, энергии которых отличаются от энергий экспериментально наблюдаемых фаз на несколько эВ/атом. Подобные нефизичные структуры всегда генерируются в ходе эволюционного поиска. Ясно, что их локальная структура может существенно отличаться от локальной структуры жидкости и надеяться на хорошее воспроизведение их энергий не приходится. Однако это никак не сказывается на эффективности поиска стабильных конфигураций, поскольку важным здесь является правильное описание энергетики фаз в некоторой сравнительно узкой энергетической об-

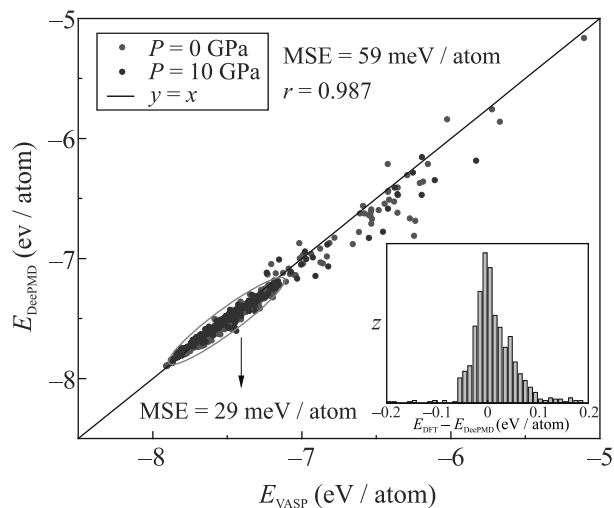


Рис. 3. (Цветной онлайн) Корреляционная зависимость DeePMD и DFT энергий кристаллических структур предсказанных USPEX с помощью DeePMD. На вставке приведена гистограмма распределения отклонения $E_{\text{DFT}} - E_{\text{DeePMD}}$. Зеленым овалом выделена область энергий, соответствующая наиболее стабильным структурам (см. диапазон энергий экспериментально наблюдаемых структур на рис. 2)

ласти. На рисунке 3 такая область отмечена зеленым овалом, ограничивающим интервал энтальпий (–8, –7) эВ/атом (см. энергии стабильных структур на рис. 2). Среднеквадратичное отклонение DeePMD значений энергий от DFT в данной области заметно меньше и составляет 29 мэВ/атом.

Анализ найденных структур позволяет заключить, что во всех случаях при $P = 0$ атомы кремния находятся в тетраэдрическом окружении атомов кислорода, а при $P = 10$ ГПа – в октаэдрическом, что наблюдается для всех известных фаз SiO_2 низкого давления и высокого давления, соответственно. Также полученные результаты воспроизводят существование десятков структур с близкими энергиями (в несколько мэВ/атом). В числе наиболее стабильных структур при нулевом давлении был найден β -кristобалит, обладающий пространственной группой симметрии 227. Наиболее стабильной структурой по результатам эволюционного поиска при 10 ГПа является структура с пространственной группой симметрии 136, что соответствует стишовиту – наиболее устойчивой фазе SiO_2 при высоких давлениях. На рисунке 4 представлены парциальные радиальные функции распределения β -кristобалита и стишовита в сравнении с соответствующими структурами из кристаллографических баз данных. Несколько смещенные в сторону больших расстояний пики расчетной структуры стишовита объясняются тем, что

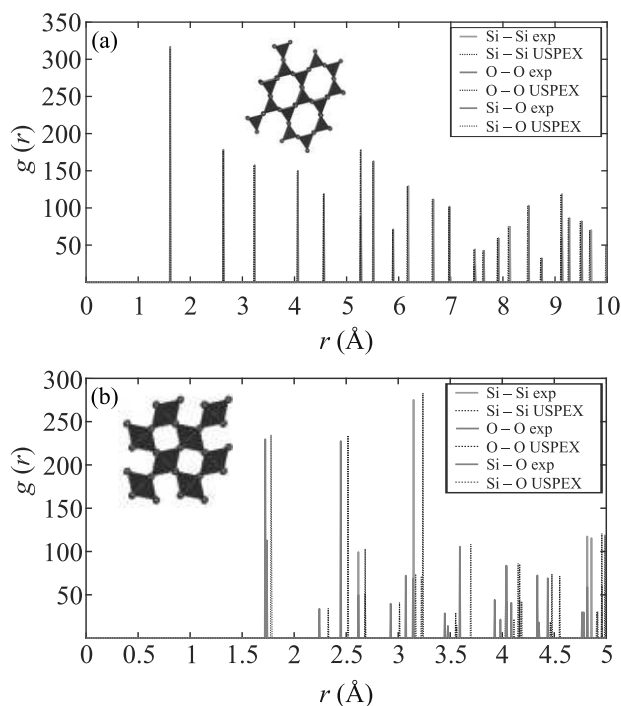


Рис. 4. (Цветной онлайн) Сравнение парциальных радиальных функций распределения для кристаллических фаз SiO_2 , найденных в ходе эволюционного поиска в программе USPEX и экспериментально наблюдаемых. (a) – β -квартц при $P = 0$ ГПа; (b) – стшовит при $P = 10$ ГПа. На вставках представлена визуализация данных структур

экспериментальный образец находился под давлением около 30 ГПа, в то время как расчет проводился для 10 ГПа.

Выводы. В данной работе изучена структурная наследственность жидкость-кристалл в потенциалах машинного обучения для сетевых систем. Показана способность MLIP, параметризованных только с помощью высокотемпературных неупорядоченных конфигураций, не только воспроизводить с *ab initio* точностью свойства кристаллических фаз, но и предсказывать их структуру при помощи эволюционных алгоритмов. А именно, с использованием DeePMD-потенциала, параметризованного по конфигурациям расплава SiO_2 в температурном диапазоне от 3000 до 4500 К и барическом диапазоне от 1 атм до 70 ГПа, удалось рассчитать с *ab initio* точностью зависимости энергии от объема для известных кристаллических фаз SiO_2 . Помимо этого, мы показали, что эволюционный поиск, реализованный в программе USPEX, позволяет предсказать структуру β -квартца и стшовита, и что даже более важно – получить хорошее описание энергетики всех найденных структур в сравнении с *ab initio* расчетами.

Полученные результаты демонстрируют глубокую связь между структурами кристалла и жидкости для сетевых систем. Такая связь, помимо фундаментального смысла, дает возможность использования MLIP, обученных на жидкости, в качестве исходной точки для построения MLIP для кристаллов. При помощи MLIP, параметризованного только на жидкости, генетическим алгоритмом может быть получен набор кристаллических структур, которые в дальнейшем должны быть включены в расширенный ТД, используемый для дообучения MLIP. Использование такой самосогласованной схемы даст возможность разрабатывать MLIP для систем, в которых априорная информация о кристаллических структурах либо отсутствует либо является ограниченной. Отметим, что для успешной практической реализации этой идеи необходимо применение алгоритмов активного обучения для создания репрезентативного набора неупорядоченных конфигураций.

Полученные результаты открывают целый ряд новых фундаментальных вопросов: как можно увеличить точность и вычислительную эффективность предложенной схемы? Будет ли данный метод работать при исследовании сложных многокомпонентных систем? Для каких классов систем структурная наследственность жидкость-кристалл достаточно ярко выражена и может быть использована для построения MLIP? Рассмотрение данных вопросов требует отдельного изучения и стимулирует развитие новых направлений исследования в вычислительном материаловедении и физике конденсированного состояния.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 22-22-00506, <https://rscf.ru/project/22-22-00506/>.

Численные расчеты проводились с использованием суперкомпьютера “Уран” ИММ УрО РАН, оборудования центра коллективного пользования “Комплекс моделирования и обработки данных исследовательских установок мега-класса” НИЦ “Курчатовский институт” (<http://ckp.nrcki.ru/>) и вычислительных ресурсов Межведомственного суперкомпьютерного центра Российской академии наук (МСЦ РАН).

1. Y. Mishin, Acta Mater. **214**, 116980 (2021).
2. T. Wen, L. Zhang, H. Wang, E. Weinan, and D. J. Srolovitz, Materials Futures **1**, 022601 (2022).
3. V. L. Deringer, M. A. Caro, and G. Csányi, Adv. Mater. **31**, 1902765 (2019).

4. F. Ercolessi and J.B. Adams, *Europhys. Lett.* **26**, 583 (1994).
5. P. Brommer, A. Kiselev, D. Schopf, P. Beck, J. Roth, and H.R. Trebin, *Model. Simul. Mat. Sci. Eng.* **23**, 074002 (2015).
6. С.В. Старииков, В.В. Стегайлов, Г.Э. Норман et al. (Collaboration), *Письма в ЖЭТФ* **93**, 719 (2011).
7. Г.Э. Норман, С.В. Старииков, В.В. Стегайлов, *ЖЭТФ* **141**, 9102012 (2012).
8. D. Marchand, A. Jain, A. Glensk, and W.A. Curtin, *Phys. Rev. Materials* **4**, 103601 (2020).
9. R.E. Ryltsev and N.M. Chtchelkatchev, *J. Mol. Liq.* **349**, 118181 (2022).
10. I.A. Balyakin, S.V. Rempel, R.E. Ryltsev, and A.A. Rempel, *Phys. Rev. E* **102**, 052125 (2020).
11. E. Oren, D. Kartoon, and G. Makov, *J. Chem. Phys.* **157**, 014502 (2022).
12. B. Monserrat, J.G. Brandenburg, E.A. Engel, and B. Cheng, *Nat. Commun.* **11**, 1 (2020).
13. C. Hong, J.M. Choi, W. Jeong, S. Kang, S. Ju, K. Lee, J. Jung, Y. Youn, and S. Han, *Phys. Rev. B* **102**, 224104 (2020).
14. W. Li and Y. Ando, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **20**, 30006 (2018).
15. L.C. Erhard, J. Rohrer, K. Albe, and V.L. Deringer, *npj Computational Materials* **8**, 1 (2022).
16. J. You, C. Wang, S.L. Shang, Y. Gao, H. Ju, H. Ning, Y. Wang, H.-Y. Wang, and Z.K. Liu, 10.1016/j.jma.2021.11.024.
17. R.E. Ryltsev and N.M. Chtchelkatchev, *J. Phys.: Condens. Matter* **34**, 404002 (2022).
18. V.A. Levashov, R.E. Ryltsev, and N.M. Chtchelkatchev, *Physica A* **585**, 126387 (2022).
19. L.V. Kamaeva, R.E. Ryltsev, V.I. Lad'yanov, and N.M. Chtchelkatchev, *J. Mol. Liq.* **299**, 112207 (2020).
20. H. Wang, L. Zhang, and J. Han, *Comput. Phys. Commun.* **228**, 178 (2018).
21. E.V. Podryabinki and A.V. Shapeev, *Comput. Mater. Sci.* **140**, 171 (2017).
22. Y. Zhang, H. Wang, W. Chen, J. Zeng, L. Zhang, H. Wang, and E. Weinan, *Comput. Phys. Commun.* **253**, 107206 (2020).
23. A.P. Thompson, H.M. Aktulga, R. Berger, D.S. Bolintineanu, W.M. Brown, P.S. Crozier, P.J. in 't Veld, A. Kohlmeyer, S.G. Moore, T.D. Nguyen, R. Shan, M.J. Stevens, J. Tranchida, C. Trott, and S.J. Plimpton, *Comput. Phys. Commun.* **271**, 108171 (2022).
24. G. Kresse and J. Furthmuller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
25. G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B* **59**, 1758 (1999).
26. A.R. Oganov and C.W. Glass, *J. Chem. Phys.* **124**, 244704 (2006).
27. A.R. Oganov, A.O. Lyakhov, and M. Valle, *Acc. Chem. Res.* **44**, 227 (2011).
28. A.O. Lyakhov, A.R. Oganov, H.T. Stokes, AND Q. Zhu, *Comput. Phys. Commun.* **184**, 1172 (2013).
29. A. Lahti, R. Östermark, and K. Kokko, *Comput. Mater. Sci.*, **210**, 111011 (2022).

Formal valence, charge distribution and chemical bond in a compound with a high oxidation state: KMnO_4

V. I. Anisimov^{+×1)}, A. R. Oganov*, M. A. Mazannikova^{+×}, D. Y. Novoselov^{+×}, Dm. M. Korotin⁺

⁺M. N. Mikheev Institute of Metal Physics of Ural Branch of Russian Academy of Sciences,
620108 Yekaterinburg, Russia

[×]Department of theoretical physics and applied mathematics, Ural Federal University, 620002 Yekaterinburg, Russia

^{*}Skolkovo Institute of Science and Technology, 121205 Moscow, Russia

Submitted 19 January 2023

Resubmitted 31 January 2023

Accepted 31 January 2023

DOI: 10.31857/S1234567823050105, EDN: pybkwg

Transition metals compounds with high oxidation state often reveal anomalous properties with a rich phase diagram, like for example in trivalent nickel in RNiO_3 [1] and tetravalent iron in CaFeO_3 [2]. There one observes metal-insulator transitions, charge ordering and unusual types of antiferromagnetic ordering. Charge disproportionation in charge ordered states formally corresponds to appearance of even higher oxidation states Ni^{+4} and Fe^{+5} . All those anomalies are usually ascribed to significant contribution of oxygen orbitals to formally d -states of transition metals.

Chemically those high oxidation compounds are also very unusual. They are often unstable and can be used as strong oxidizers. The high formal metal ionic charge looks strange because it requires very large energy to create such ions. The most interesting example of this class is KMnO_4 where formal valency of manganese ion is Mn^{+7} . To make such highly charged ion one needs ~ 119 eV [3], while energies of chemical bonds are below ~ 10 eV.

In this paper we present electronic structure calculations for this compound and analyze it using formalism of Wannier function (WF). Our conclusion is that the chemical bond in MnO_4^- complex is strongly covalent and charge transfer between d -states of manganese to p -states of oxygen is rather small in spite of very large formal valence. Also, our calculations give the number of d -electrons on Mn ion 5.25 that is more appropriate to ionic charge +2 rather than +7.

Electronic structure calculations were performed using Quantum ESPRESSO package. Wannier functions (WF) used for its results analysis are the most general and natural choice for definition a set of localized atomic

orbitals as electronic states that are formally equivalent to the set of itinerant Bloch functions set. The transition between them can be considered as unitary transformation in Hilbert functional space. The localization degree and the symmetry of such wave functions could be controlled in the projection procedure. We used the procedure [4–6], that constraint symmetry of the WF to be the same as the symmetry of pure atomic d -orbitals.

WFs were generated as projections of the pseudoatomic orbitals $|\phi_n^{\mathbf{k}}\rangle = \sum_{\mathbf{T}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{T}} |\phi_n^{\mathbf{T}}\rangle$ onto a subspace of the Bloch functions $|\Psi_{\mu}^{\mathbf{k}}\rangle$ (the detailed description of WFs construction procedure is given in [7]):

$$|W_n^{\mathbf{T}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N_k}} \sum_{\mathbf{k}} |W_n^{\mathbf{k}}\rangle e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{T}}, \quad (1)$$

where

$$|W_n^{\mathbf{k}}\rangle \equiv \sum_{\mu=N_1}^{N_2} |\Psi_{\mu}^{\mathbf{k}}\rangle \langle \Psi_{\mu}^{\mathbf{k}} | \phi_n^{\mathbf{k}} \rangle. \quad (2)$$

Here $\mathbf{T}$ is the lattice translation vector. The resulting WFs $|W_n^{\mathbf{T}}\rangle$ have symmetry of the atomic orbitals ϕ_n positioned at the unit cell defined by $\mathbf{T}$ and describe electronic states that form energy bands numbered from N_1 to N_2 . Within this new basis of WFs one can calculate energies, occupation numbers for every WF and also get contribution of atomic orbitals to the specific WF. All these data are used below for the analysis of electronic configuration of Mn ion in potassium permanganate.

KMnO_4 crystallizes in the orthorhombic $Pmmn$ space group with unit cell parameters $a = 5.93 \text{ \AA}$, $b = 7.58 \text{ \AA}$, $c = 9.23 \text{ \AA}$ [8]. The manganese ion is surrounded by four oxygens ions with a tetrahedral environment corresponding to the T_d point group symmetry. Obtained energy bands dispersion and density of states show rather narrow bands in agreement with well separated MnO_4^- ions in the structure.

¹⁾e-mail: via@imp.uran.ru

In order to analyze spatial distribution of electronic states in this material we have calculated squared modulus of WF for the unoccupied bands. The results are presented in Fig. 1. The figure shows spatial distribu-

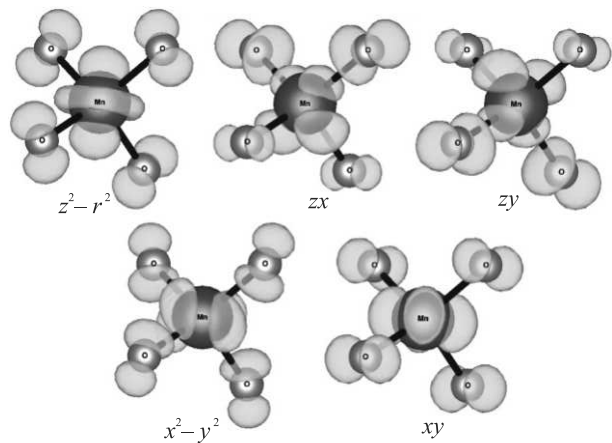


Fig. 1. (Color online) WF (isosurface of the squared moduli) with the symmetry of manganese *d*-orbitals

tion of holes for various symmetry states of MnO_4^- ion. As one can easily see, nearly half of the hole density for every WF is situated on the neighboring oxygen ions. The Table 1 shows percentage of Mn *d* and O *p* contributions to the WF charge representing holes in formally

Таблица 1. Contribution of atomic states to WF of KMnO_4

	$z^2 - r^2$	zx	zy	$x^2 - y^2$	xy
Mn <i>d</i>	46 %	45 %	45 %	45 %	46 %
O <i>p</i>	50 %	49 %	48 %	47 %	50 %

d^0 shell of manganese ion. It is clear that in fact more than half of each ten formally *d* holes in reality belong to the oxygen states. The total number of *d*-holes from this Table gives 4.54 which corresponds to the number of *d*-electrons 5.46. That agrees well with the occupancy of manganese *d*-shell 5.25 obtained in full DFT calculations. So while formal valence of Mn in this compound is seven the occupancy of *d*-shell corresponds rather to Mn^{+2} with admixture of Mn^+ .

Using the WF formalism, we calculated the contribution of covalent and ionic parts to the chemical

bond within the MnO_4^- complex. The obtained values $E_{\text{bond}}^{\text{cov}} = -38.2 \text{ eV}$ and $E_{\text{bond}}^{\text{ion}} = 0.07 \text{ eV}$ confirm that MnO_4^- ion in KMnO_4 is a totally covalent complex.

To summarize, we have calculated electronic structure for KMnO_4 compound with formally seven valency Mn ion and analyzed the results with WF formalism. We have found the chemical bond in MnO_4^- complex being nearly of perfectly covalent type with practically no presence of ionic contribution. The *d*-electors charge distribution for Mn atom corresponds to rather Mn^{+2} ionic state then to formal valency Mn^{+7} .

Electronic structure calculations were performed with the support of the Russian Science Foundation (project # 19-12-00012), contributions to the energy of chemical bond are obtained within the state assignment of Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (theme “Electron” # 122021000039-4).

This is an excerpt of the article “Formal valence, charge distribution and chemical bond in a compound with a high oxidation state: KMnO_4 ”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023600143

1. M. L. Medarde, J. Phys.: Condens. Matter **9**, 1679 (1997).
2. P. M. Woodward, D. E. Cox, E. Moshopoulou, A. W. Sleight, and S. Morimoto, Phys. Rev. B **62**, 844 (2000).
3. [https://en.wikipedia.org/wiki/Ionization_energies_of_the_elements_\(data_page\)](https://en.wikipedia.org/wiki/Ionization_energies_of_the_elements_(data_page)).
4. V. Anisimov, D. Kondakov, A. Kozhevnikov, I. Nekrasov, Z. Pchelkina, J. Allen, S.-K. Mo, H.-D. Kim, P. Metcalf, S. Suga, A. Sekiyama, G. Keller, I. Leonov, X. Ren, and D. Vollhardt, Phys. Rev. B **71**, 125119 (2005).
5. A. O. Shorikov, M. A. Korotin, S. V. Streltsov, S. L. Skorniyakov, D. M. Korotin, and V. I. Anisimov, JETP **108**, 121 (2009).
6. A. O. Shorikov, D. Y. Novoselov, D. M. Korotin, and V. I. Anisimov, JETP Lett. **116**, 798(2022).
7. D. Korotin, A. V. Kozhevnikov, S. L. Skorniyakov, I. Leonov, N. Binggeli, V. I. Anisimov, and G. Trimarchi, Eur. Phys. J. B **65**, 91 (2008).
8. D. Marabello, R. Bianchi, G. Gervasio, and F. Cargnoni, Acta Crystallogr. A **60**, 5 (2004).

Effects of quantum recoil forces in resistive switching in memristors

O. G. Kharlanov¹⁾

Lomonosov Moscow State University, Faculty of Physics, 119991 Moscow, Russia

Submitted 27 December 2022

Resubmitted 3 February 2023

Accepted 3 February 2023

DOI: 10.31857/S1234567823050117, EDN: pyfcht

Memristors – electric devices whose resistance “remembers” the history of the previously passed current [1] – are appealing circuit elements for neuromorphic applications beyond the von Neumann architecture [2]. Current-controlled resistive switching in such devices typically occurs due to ion migration in a dielectric layer between the anode and the cathode resulting in the growth or rupture of conductive filaments [3]. The physics of this key process still remains quite obscure because of the stochasticity of the filament dynamics and a possible interplay of various scales and effects, especially when it comes to filaments several atoms thick exhibiting quantized conductance [4, 5]. Because of the attractiveness of such thin filaments for encoding discrete states of the memristor [6], in this letter, we analyze the role of electron-induced, “recoil” forces acting on the ions [7] in the dynamics of these filaments, in particular, in the context of conductance quantization. In fact, in our recent study [8], we identified that recoil forces should be large enough at voltages $V \sim 1$ V and conductances near the conductance quantum $G_0 = e_0^2/\pi\hbar \approx 77.5 \mu\text{S}$ (e_0 is the elementary charge, $\hbar$ is the Planck’s constant) to compete with the interatomic forces, potentially affecting the evolution of the filament; our experiments also favored the presence of such forces. However, the model in [8] lacked the dynamics and used a semi-quantitative continuous description of the filament in the form of a liquid drop with a certain profile. In contrast, in the present work we develop an atomistic quantum theory of electron recoil forces, estimate the latter ones within a toy model of a 1D atomic chain, and further incorporate quantum recoil into a molecular-dynamics (MD) framework with realistic interatomic potentials. Using the latter, we observe a quantum analogue of electromigration triggering a resistive switching event independently of the conventional electrostatically-driven ion migration mechanism. Our results thus indicate that quantum recoil should be taken into account when describing memristive nanode-

vices and could potentially be used in their rational design to achieve better retention characteristics of their quantized-conductance states.

We use a semiclassical, Born–Oppenheimer description of the nanofilament supporting a quantum current in terms of the tight-binding model:

$$\begin{aligned}\hat{H} &= \hat{H}^{(\text{el})} + \sum_{i=1}^N \frac{\mathbf{P}_i^2}{2M_i} + U(\mathbf{X}), \\ \hat{H}^{(\text{el})} &= \sum_{\sigma} \int \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{x}) \left[-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + u(\mathbf{x}; \mathbf{X}) \right] \hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{x}) d^3x = \\ &= \sum_{i,j,\sigma} t_{ij}(\mathbf{X}) \hat{c}_{i\sigma}^{\dagger} \hat{c}_{j\sigma},\end{aligned}\quad (1)$$

where m is the electron mass, $\mathbf{X} = (\mathbf{X}_1, \dots, \mathbf{X}_N)$ and $\mathbf{P}_i = M_i \dot{\mathbf{X}}_i$ are the (classical) coordinates and the momenta of the ions, respectively, $U(\mathbf{X})$ is the “bare” ion-ion potential, $u(\mathbf{x}; \mathbf{X})$ is the effective (Kohn–Sham) potential. We take the electron field operator $\hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{x})$ with the spin projection $\sigma = \pm 1/2$ expanded over a set of annihilation operators $\hat{c}_{i\sigma}$, one per each atom, yielding transfer integrals/on-site energies t_{ij} . The Ehrenfest equations for the atomic coordinates now give $\dot{\mathbf{P}}_i \approx -\partial U/\partial \mathbf{X}_i + \mathbf{F}_i^{(\text{el})}(\mathbf{X})$, where the “recoil” force acting due to electrons can be written using nonequilibrium Green’s functions (NEGFs) [9]:

$$\mathbf{F}_i^{(\text{el})} = \sum_{j,k} \mathbf{f}_{jk}^i \sum_{S=L,R} \int_{E_0}^{\mu_S} \frac{dE}{\pi} [G_F \Gamma_S G_F^{\dagger}(E)]_{kj}. \quad (3)$$

In this formula, $\mu_{L,R}$ are the chemical potentials of the two leads, $V = (\mu_R - \mu_L)/e_0$ is the applied bias, E_0 is the conduction band bottom, while $G_F(E)$ and $\Gamma_{L,R}(E)$ are the filament’s retarded Green’s function and the broadening operators, respectively. The force coefficients $\mathbf{f}_{jk}^i$ are suppressed except for neighboring atoms and can be approximately expressed in terms of the t_{mn} matrix and the inverse atomic radius ζ .

First we apply our model to a 1D chain of atoms with the filament comprised of one, central atom ($i = 0$) and all the other atoms assumed fixed (Fig. 1a); all nearest-neighbor transfer integrals $t_{i,i\pm 1}$ are equal to $t < 0$

¹⁾e-mail: kharlanov@physics.msu.ru

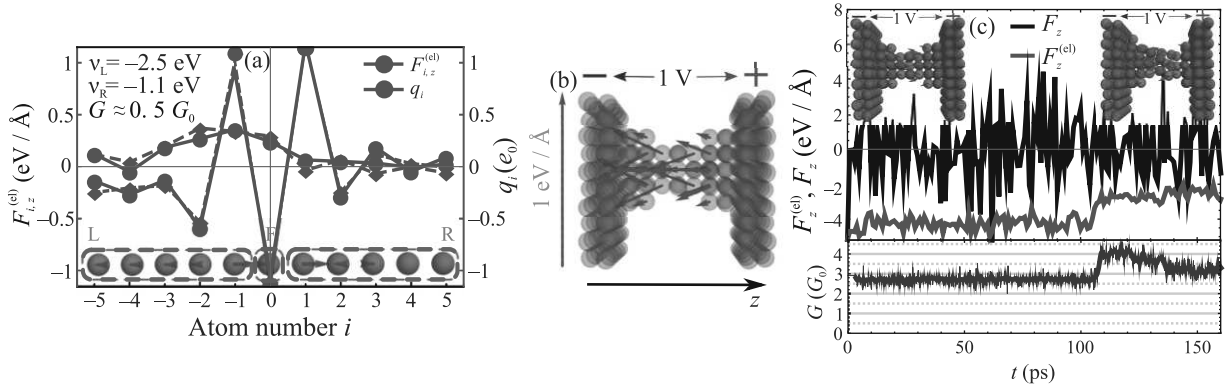


Fig. 1. (Color online) (a) – Forces acting on atoms of a 1D atomic chain and their partial charges at $V = 0$ and 1 V (solid and dashed lines, respectively). (b) – Renormalized recoil forces for a 3D copper filament. (c) – Recoil-driven resistive switching for the 3D filament (warmup and production MD at $T = 300 \text{ K}$), with the plots showing the evolution of the total renormalized recoil force $\mathbf{F}^{(el)}$ acting on the whole filament, the total EAM + recoil force $\mathbf{F}$, and the conductance G

except $t_{0,\pm 1} = v_{R,L}$. Figure 1a demonstrates that the recoil forces can be as large as $1 \text{ eV}/\text{\AA}$; moreover, a nonzero bias can trigger a Peierls-like instability of the central atom's position [10] with the critical voltage

$$V_{\text{crit}} = \frac{\pi|t|}{e_0|1/2 - \beta|} \left[\frac{2q_{\text{eff}}^2}{\zeta^2 a^3 |t|} - 1 - 8/\pi \right], \quad (4)$$

where q_{eff} is the partially screened charges of the ions, a is the interatomic distance, and $\beta = (\mu_R - E_F)/e_0 V \in [0, 1]$ is the percentage of the voltage drop between the cathode and the Fermi energy. For example, for $a = 1/\zeta = 2.5 \text{ \AA}$, $t = -2 \text{ eV}$, $q_{\text{eff}} = 0.8e_0$, and $\beta = 0$, the recoil-driven instability appears at $V_{\text{crit}} \approx 1.7 \text{ V}$, resulting in a voltage-controlled ion displacement.

Next, to simulate the effect of the recoil forces for a realistic copper filament at room temperature – beyond the above toy model at $T = 0$ – we developed a custom MD code implementing the embedded-atom model (EAM) of the interatomic Cu-Cu forces [11] together with the recoil forces (3). To avoid double counting, the latter ones were “renormalized” by subtracting their zero-bias values, which should already be included into the EAM force field. The recoil forces for the initial, fcc-like filament configuration are presented in Fig. 1b, and the MD results in Fig. 1c. During all the simulation time, the recoil force remains directed toward the cathode, facilitating ion migration in this direction, which results in a resistive switching around $t = 110 \text{ ps}$. Note that the electrostatic field between the electrodes is absent in our simulations, and the ion transport occurs solely due to momentum transfer from conduction electrons. This is a novel mechanism of resistive switching we report here, which is important in the atomic-scale-filaments regime and could potentially be used for rational design of memristive devices.

The author thanks Anton Minnekhanov for fruitful discussions.

The work was supported by the Russian Foundation for Basic Research (Project # 20-07-00696).

This work has been carried out using computing resources of the federal collective usage center Complex for Simulation and Data Processing for Megascience Facilities at National Research Centre “Kurchatov Institute”.

This is an excerpt of the article “Effects of quantum recoil forces in resistive switching in memristors”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364022603323

1. L. Chua, IEEE Trans. Circuit Theory **18**, 507 (1971).
2. D. Ielmini and H.-S. P. Wong, IEEE Nanotechnol. Mag. **1**, 333 (2018).
3. Z. Wang, H. Wu, G. W. Burr, C. S. Hwang, K. L. Wang, Q. Xia, and J. J. Yang, Nat. Rev. Mater. **5**, 173 (2020).
4. R. Landauer, IBM J. Res. Dev. **1**, 223 (1957).
5. W. Xue, S. Gao, J. Shang, X. Yi, G. Liu, and R. Li, Adv. Electron. Mater. **5**, 1800854 (2019).
6. A. A. Minnekhanov, B. S. Shvetsov, M. M. Martyshev, K. E. Nikiruy, E. V. Kukueva, M. Yu. Presnyakov, P. A. Forsh, V. V. Rylkov, V. V. Erokhin, V. A. Demin, and A. V. Emelyanov, Org. Electron. **74**, 89 (2019).
7. D. Dundas, E. J. McEniry, and T. N. Todorov, Nat. Nanotechnol. **4**, 99 (2009).
8. O. G. Kharlanov, B. S. Shvetsov, V. V. Rylkov, and A. A. Minnekhanov, Phys. Rev. Applied **17**, 054035 (2022).
9. V.-N. Do, Adv. Nat. Sci: Nanosci. Nanotechnol. **5**, 033001 (2014).
10. R. E. Peierls, *Quantum Theory of Solids*, Oxford University Press, London (1955).
11. H. W. Sheng, M. J. Kramer, A. Cadien, T. Fujita, and M. W. Chen, Phys. Rev. B **83**, 134118 (2011).

Обратное рассеяние инфракрасного излучения многослойной модельной биотканью

Ю. А. Жаворонков⁺¹⁾, С. В. Ульянов⁺¹⁾, А. Ю. Вальков^{*+1)}, В. Л. Кузьмин^{*1)}

⁺ Санкт-Петербургский государственный университет, 198504 С.-Петербург, Россия

^{*} Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, 195251 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 25 января 2023 г.

После переработки 25 января 2023 г.

Принята к публикации 30 января 2023 г.

Для многослойной биоткани, моделирующей голову человека, рассчитана интенсивность обратного рассеяния лазерного излучения ближнего инфракрасного диапазона, как функция расстояния между источником и приемником излучения, расположенными на голове. Итерационное решение уравнения Бете–Солпитера представлено в виде ряда по кратностям рассеяния. Предложена модификация известной процедуры MCML (Monte Carlo Multi-Layered), приводящая к ускорению расчетов. Показано, что полученные зависимости интенсивности обратного рассеяния существенно меняются при изменении оптических свойств слоев биоткани, в первую очередь при попадании крови в слой спинномозговой жидкости. Это может быть использовано при развитии оптических методов диагностики травматических повреждений биотканей.

DOI: 10.31857/S1234567823050129, EDN: pyibsk

Введение. В настоящее время наблюдается рост интереса к оптическим методам в медицинской диагностике [1–5]. Во многом это связано с тем, что критически важную информацию о состоянии глубоких слоев биологических тканей можно получить, применяя недорогие, неинвазивные оптические методы исследования, которые к тому же могут быть достаточно легко применены в “полевых” условиях. В силу низкой величины коэффициента абсорбции биотканей в ближней инфракрасной области, получили развитие методы диффузионной спектроскопии в обнаружении повреждений кожных покровов, подкожной клетчатки, травм мягких тканей и мозга, в диагностике венозных повреждений и пролежней [3, 5–9]. На биоткань может подаваться инфракрасное излучение разных видов, это может быть облучение непрерывной волной [10–13], облучение короткими импульсами [14–17] или же волнами с различными вариантами модуляции излучения [14, 18, 19].

В данной работе развивается подход, посвященный получению информации о состоянии многослойной биоткани из данных по обратному рассеянию непрерывного инфракрасного лазерного излучения. Объектом исследования является модель головы человека. Для адекватного использования результатов обратного рассеяния лазерного инфракрасного

излучения в медицинской диагностике необходимо учитывать неоднородную, слоевую структуру головы. Для этого, по крайней мере, необходимо учитывать наличие двух слоев, а именно, черепа и мозга [12, 13, 20, 21]. Поскольку оптические свойства биологических тканей головы человека, очень существенно меняются в глубину, для более точной интерпретации результатов обратного рассеяния требуется точнее моделировать слоевую структуру головы [6].

Нами проводится расчет зависимости интенсивности обратно рассеянного лазерного излучения от расстояния вдоль поверхности головы между источником и приемником, располагающимися непосредственно на голове. Голова человека при этом моделируется, как четырехслойная среда: “кожный покров–черепа–спинномозговая жидкость (СМЖ)–мозг”. Для описания переноса излучения в случайно неоднородной среде мы используем итерационное решение уравнения Бете–Солпитера. Получающийся при этом ряд фактически является разложением по кратностям рассеяния. Каждый член ряда представляет собой многократный интеграл, для вычисления которого мы пользуемся процедурой Монте-Карло (МК). Проведенные расчеты позволяют выяснить, как зависимость обратно рассеянного излучения от расстояния “источник–приемник” меняется при изменении физических и геометрических параметров модели. Наибольший интерес здесь представляет влияние на интенсивность изменения оптических

¹⁾ e-mail: zhavoronkov95@gmail.com; ulyanov_sv@mail.ru; alexvalk@mail.ru; kuzmin_vl@mail.ru

характеристик слоя спинномозговой жидкости при попадании в нее крови, что часто происходит при травматических повреждениях головы, а также влияния толщины кости черепа, которая заметно изменяется при перемещении по поверхности головы.

Описание переноса излучения. Моделирование обратного рассеяния инфракрасного излучения проводим, полагая, что слоистая рассеивающая среда заполняет полупространство $z > 0$. Через θ_i обозначим угол падения, отсчитанный от внешней нормали к среде, под которым плоская волна входит в рассеивающую среду, а через θ_f – отсчитанный от той же нормали угол обратного рассеяния, под которым из среды выходит луч, испытавший многократные рассеяния. Отражениями и преломлениями волн на границах слоев пренебрегается. Для исходящего поля мы используем фраунгоферовское приближение, в котором поле в дальней зоне является произведением сферической волны и плоской волны, направленной в точку наблюдения [13, 22]. При этом главная некогерентная часть интенсивности обратного рассеяния, с точностью до постоянного размерного множителя, может быть представлена в виде [13, 22–24]:

$$J(s_i, s_f) = 4\pi \int_0^\infty dz_1 \int_{z_2 > 0} d\mathbf{r}_2 \Gamma(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_1 | \mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i) \times \exp(-\mu(s_f z_2 + s_i z_1)), \quad (1)$$

где $s_i = 1/\cos\theta_i$, $s_f = 1/\cos\theta_f$, μ – коэффициент экстинкции. Экспоненциальный множитель в (1) возникает из-за затухания плоской волны по закону Бугера–Ламберта–Бера на пути от границы среды до места первого рассеяния и на пути от последнего рассеяния до границы. Перенос излучения в случайно-неоднородной среде из точки $\mathbf{r}_1$ в точку $\mathbf{r}_2$ с учетом рассеяний всех кратностей обеспечивает функция когерентности $\Gamma(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_1 | \mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i)$, где $\mathbf{k}_i$ и $\mathbf{k}_f$ – соответственно волновые вектора волны, пришедшей в точку $\mathbf{r}_1$, и волны, вышедшей после многократных рассеяний из точки $\mathbf{r}_2$.

Перенос излучения внутри случайно-неоднородной среды может быть описан уравнением Бете–Солпитера [22, 23]

$$\Gamma(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_1 | \mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i) = \mu_s p(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i) \delta(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1) + \mu_s \int d\mathbf{r}_3 p(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_{23}) \Lambda(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_3) \Gamma(\mathbf{r}_3, \mathbf{r}_1 | \mathbf{k}_{23}, \mathbf{k}_i), \quad (2)$$

где $\mathbf{k}_{ij}$ – волновой вектор, направленный из точки $\mathbf{r}_j$ в $\mathbf{r}_i$, $\mathbf{k}_{ij} = k_0 \mathbf{r}_{ij}/r_{ij}$, $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$. Для волнового числа в вакууме использовано обозначение

$k_0 = 2\pi/\lambda$, где λ – длина волны. Произведение двух комплексно-сопряженных средних функций Грина скалярного поля дает пропагатор однократного рассеяния $\Lambda(r) = r^{-2} \exp(-\mu r)$. Коэффициент рассеяния μ_s в сумме с коэффициентом абсорбции μ_a дают коэффициент экстинкции $\mu = \mu_s + \mu_a$. При написании уравнения (2) считалось выполненным условие слабого рассеяния $\lambda \ll l_s = \mu_s^{-1}$, что позволило ограничиться “лестничным” приближением. Также в уравнении Бете–Солпитера была использована оптическая теорема для скалярного поля,

$$\mu_s = \frac{k_0^4}{(4\pi)^2} \int d\Omega_f G(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i),$$

где $G(\mathbf{k})$ – Фурье-образ корреляционной функции флуктуаций диэлектрической проницаемости,

$$G(\mathbf{k}) = \int d(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)} \langle \delta\epsilon(\mathbf{r}) \delta\epsilon^*(\mathbf{r}_0) \rangle.$$

Нормированная корреляционная функция $G(\mathbf{k})$ выступает в качестве фазовой функции

$$p(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i) = G(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i) / \int d\Omega_f G(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i),$$

– функцией угла θ между векторами $\mathbf{k}_f$ и $\mathbf{k}_i$.

Интенсивность обратного излучения в приближении однократного рассеяния $J^{(1)}(s_i, s_f)$ получим после подстановки в выражение (1) первого члена из правой части уравнения Бете–Солпитера. Подстановка в выражение (1) всего итерационного ряда для уравнения Бете–Солпитера (2) позволяет представить интенсивность рассеяния в виде разложения по кратностям рассеяния [13, 22, 25].

$$J(s_i, s_f) = \sum_{n=1}^{\infty} J^{(n)}(s_i, s_f),$$

где вклад однократного и двухкратного рассеяний в интенсивность имеют вид

$$J^{(1)}(s_i, s_f) = 4\pi(\mu_s/\mu)(s_f + s_i)^{-1} p(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i),$$

$$J^{(2)}(s_i, s_f) = 4\pi\mu_s^2 \int_0^\infty dz_1 \int_{z_2 > 0} d\mathbf{r}_2 \Lambda(r_{21}) \times p(\mathbf{k}_{21} - \mathbf{k}_i) p(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_{21}) e^{-\mu(s_i z_1 + s_f z_2)}.$$

Вклад в интенсивность от n -кратного рассеяния при $n \geq 3$ представляется многократным интегралом

$$\begin{aligned}
J^{(n)}(s_i, s_f) = & 4\pi\mu_s^n \int_0^\infty dz_1 \int d\mathbf{r}_2 \dots \int d\mathbf{r}_n \Lambda(r_{21}) \times \\
& \times p(\mathbf{k}_{21} - \mathbf{k}_i) \prod_{j=2}^{n-1} \Lambda(r_{j+1j}) p(\mathbf{k}_{j+1j} - \mathbf{k}_{jj-1}) \times \\
& \times H(z_j) H(z_n) p(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_{nn-1}) e^{-\mu(s_i z_1 + s_f z_n)}. \quad (3)
\end{aligned}$$

Здесь функции Хевисайда $H(z)$ обеспечивают учет актов рассеяния только внутри полубесконечной случайно-неоднородной среды.

Для МК-расчета вклада n -кратного рассеяния в интенсивность по формуле (3) будем многократно проводить процедуру обратного преобразования, определяющую связь между $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_n$ и зависящих от них функций с равномерно распределенными случайными величинами. Подробно эта процедура для однородной системы описана в [13, 22]. В результате для случая нормального падения лазерного луча на многослойную систему, усреднением по выборке из N_{ph} падающих фотонов, получим

$$J^{(n)}(1, s_f) \simeq \sum_{i=1}^{N_{\text{ph}}} \frac{W_n^{(i)}}{N_{\text{ph}}} p(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_{nn-1}^{(i)}) e^{-\mu s_f z_n^{(i)}}.$$

Веса $W_n^{(i)}$ равны случайным значениям многократных пространственных интегралов, полученных в n -м порядке итерационного решения уравнения Бете–Солпитера. При вычислении $W_n^{(i)}$ моделируется стохастическая последовательность (траектория фотона), точек рассеяния $\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n$.

Метод МК широко используется для моделирования миграции фотонов в тканях и тканевых фантомах, в основном в рамках известного алгоритма MCML (Monte Carlo Multi-Layered) [26], где в сигнал вносят вклад фотоны, выходящие из рассеивающей среды, что требует довольно большой выборки из-за того, что число случайно вышедших фотонов в задаче с конкретно заданной геометрией, может составлять очень малую долю от интенсивности падающего света. В применяемой в настоящей работе модификации метода MCML, каждый фотон вносит свой вклад в регистрируемый сигнал при каждом акте рассеяния, пока не покинет среду. При этом объем выборки и, соответственно, время вычислений, необходимое для получения устойчивых результатов, существенно уменьшается.

Метод обратного преобразования для многослойной среды. Процесс моделирования распространения фотона в среде осуществляется в несколько этапов. На первом шаге определяется направление

движения фотона. Рассматривается нормальное падение плоской волны. Для всех рассеяний направление является случайным и определяется посредством розыгрыша равномерно распределенного на отрезке $[0; 1]$ случайного числа и проведения обратного преобразования модельной фазовой функции Хенни–Гринштейна [1]:

$$p_{\text{HG}}(\cos \theta) = (4\pi)^{-1} (1 - g^2) (1 + g^2 - 2g \cos \theta)^{-3/2},$$

где $g = \langle \cos \theta \rangle$ – параметр анизотропии рассеяния. Азимутальный угол предполагается распределенным равномерно. Вторым этапом в моделировании является определение расстояния, которое пройдет фотон до следующего рассеяния, на основе розыгрыша другой равномерно распределенной случайной величины ξ и использования обратного преобразования, обобщенного для многослойной системы. Ввиду того, что фотон может находиться в любой части системы, это расстояние зависит от положения фотона и угла, определенного на предыдущем шаге.

Процедура проведения обратного преобразования в двухслойной среде была подробно изложена в статье [13]. В настоящей работе исследована полнее описывающая реальную структуру головы человека модель, состоящая из четырех слоев, а именно, из кожного покрова, кости черепа, СМЖ и собственно мозга. Ниже построена функция распределения длины пути фотона до следующего рассеяния и проведено обратное преобразование для системы со сколь угодно большим числом слоев. Новым в предложенном алгоритме является изменение очередности применения обратного преобразования к пространственным и угловым переменным; в многослойной системе в силу цилиндрической симметрии эффективным является обратный порядок, поскольку при этом нахождение случайной длины шага фотона проводится в условиях заданного направления.

В изучаемой неоднородной среде оптические параметры зависят от положения фотона, а именно – от декартовой координаты z , нормальной к границам, в частности, $\mu = \mu(z)$. Слои, при перемещении вглубь головы, будем обозначать буквами A, B, C и D . Для краткости записи примем, что $T_{AB} = T_A + T_B$, а $T_{ABC} = T_A + T_B + T_C$ соответственно. Таким образом, слой A занимает область $0 < z < T_A$, слой B – область $T_A < z < T_{AB}$, слой C – область $T_{AB} < z < T_{ABC}$, слой D – область $T_{ABC} < z < T$, где $T = T_A + T_B + T_C + T_D$ – толщина данной четырехслойной системы. При построении обратного преобразования мы рассматриваем среду D как полубесконечный слой $T_{ABC} < z$, а в численных расчетах будем полагать T_D конечным, но $T_D \gg T_{ABC}$.

Поскольку фотон на своем пути от точки предыдущего рассеяния до точки следующего может либо пересекать, либо не пересекать границы между слоями и, к тому же, может либо приближаться к границе $z = 0$, либо удаляться от нее, то при построении кумулятивной функции распределения и при выполнении обратного преобразования следует учесть все возникающие при этом случаи. В общем случае рассеяния в системе из k слоев возникает $k(k+1)$ существенно различных путей фотона между рассеяниями, а в четырехслойной системе этих путей 20. Таким образом, нам необходимо построить алгоритм определения последовательных шагов, которые должен пройти фотон, начиная с точки z_0 . Подробно опишем случай, когда фотон после рассеяния в точке z_0 , находящейся внутри слоя A , движется вглубь среды, $\cos \theta > 0$. Здесь и ниже θ обозначает угол между осью z и направлением движения фотона. Для описания случайного расстояния, пройденного фотоном между двумя последовательными актами рассеяния, определим функцию плотности вероятности аналогично тому, как это делается в подходе MCML [26]:

$$f(z) = \begin{cases} \frac{\mu_s(A)}{C \cos \theta} \exp\left(\frac{-\mu(A)}{\cos \theta}(z - z_0)\right), \\ \frac{\mu_s(B)}{C \cos \theta} \xi_A \exp\left(\frac{-\mu(B)}{\cos \theta}(z - T_A)\right), \\ \frac{\mu_s(C)}{C \cos \theta} \xi_A \xi_B \exp\left(\frac{-\mu(C)}{\cos \theta}(z - T_{AB})\right), \\ \frac{\mu_s(D)}{C \cos \theta} \xi_A \xi_B \xi_C \exp\left(\frac{-\mu(D)}{\cos \theta}(z - T_{ABC})\right). \end{cases} \quad (4)$$

Здесь и далее в “многослойных” формулах подразумеваются, что строки в правых частях относятся к слоям A, B, C и D сверху вниз. Величины ξ_A, ξ_B и ξ_C в формуле (4) определяются выражениями

$$\xi_A = \exp\left(\frac{-\mu(A)}{\cos \theta}(T_A - z_0)\right), \\ \xi_B = \exp\left(\frac{-\mu(B)}{\cos \theta}T_B\right), \quad \xi_C = \exp\left(\frac{-\mu(C)}{\cos \theta}T_C\right).$$

Интегрированием плотности вероятности (4) находим кумулятивную функцию распределения F . Значения кумулятивной функции являются равномерно распределенной случайной величиной $\xi = F(z, z_0)$. Обратное преобразование дает

$$z(\xi) = \begin{cases} z_0 - \frac{\cos \theta}{\mu(A)} \ln\left(1 - \frac{C \xi'_A}{C_1}\right), \\ T_A - \frac{\cos \theta}{\mu(B)} \ln\left(1 - \frac{C \xi'_B}{C_2}(\xi - \xi_{\text{crit}}^B)\right), \\ T_{AB} - \frac{\cos \theta}{\mu(C)} \ln\left(1 - \frac{C \xi'_C}{C_3}(\xi - \xi_{\text{crit}}^C)\right), \\ T_{ABC} - \frac{\cos \theta}{\mu(D)} \ln\left(1 - \frac{C}{C_4}(\xi - \xi_{\text{crit}}^D)\right). \end{cases}$$

Величины $\xi_{\text{crit}}^B, \xi_{\text{crit}}^C, \xi_{\text{crit}}^D$ соответствуют значениям ξ , приводящее фотон на границу слоя B, C или D с предшествующим слоем. Константа нормировки, с учетом обозначения $\xi'_i = 1 - \xi_i$, имеет вид

$$C = C_1 + C_2 + C_3 + C_4, \\ C_1 = A_\mu \xi'_A, \quad C_2 = B_\mu \xi_A \xi'_B, \\ C_3 = C_\mu \xi_A \xi_B \xi'_C, \quad C_4 = D_\mu \xi_A \xi_B \xi_C.$$

Здесь были использованы следующие обозначения для параметра альбеда соответствующего слоя

$$A_\mu = \mu_s(A)/\mu(A), \quad B_\mu = \mu_s(B)/\mu(B), \\ C_\mu = \mu_s(C)/\mu(C), \quad D_\mu = \mu_s(D)/\mu(D).$$

Значения случайной величины ξ , соответствующие достижению границ слоев, можно записать в виде

$$\xi_{\text{crit}} = \frac{1}{C} \times \begin{cases} C_1, \\ C_1 + C_2, \\ C_1 + C_2 + C_3. \end{cases}$$

Выражение (4) для плотности вероятности длины свободного пробега фотона в четырехслойной системе может быть обобщено на случай произвольного числа слоев. Для рассеяния на системе k плоских слоев $A_1, A_2, \dots, A_k$ с конечными толщинами $T_1, T_2, \dots, T_{k-1}$ и $T_k = \infty$, плотность вероятности (4) обобщается следующим образом. Для плотности вероятности $f_n(z)$ в n -ом слое получим

$$f_1(z) = \frac{\mu_s(A_1)}{C \cos \theta} \exp\left(\frac{-\mu(A_1)}{\cos \theta}(z - z_0)\right), \quad n = 1, \quad (5)$$

$$f_n(z) = \frac{\mu_s(A_n)}{C \cos \theta} \prod_{i=1}^{n-1} \xi_i \exp\left(\frac{-\mu(A_n)}{\cos \theta}\left(z - \sum_{j=1}^{n-1} T_j\right)\right), \quad (6)$$

при $n \geq 2$. Здесь нормировочная константа

$$C = \sum_{i=1}^k C_i, \quad C_i = \frac{\mu_s(A_i)}{\mu(A_i)} \xi'_i \prod_{j=0}^{i-1} \xi_j, \quad 1 \leq i \leq k,$$

$$\xi_1 = \exp\left(\frac{-\mu(A_1)}{\cos \theta}(T_1 - z_0)\right), \quad \xi_i = \exp\left(\frac{-\mu(A_i)}{\cos \theta}T_i\right),$$

$i \geq 2$, а величины $\xi'_i = 1 - \xi_i$, и формально положено $\xi_0 = 1$ и $\xi_k = 0$. Интегрируя плотности вероятности (5) и (6), получаем кумулятивную функцию распределения и, выполняя для нее обратное преобразование, находим зависимость координаты z , определя-

ющей положение фотона после рассеяния, от равномерно распределенной случайной величины ξ :

$$z(1) = z_0 - \frac{\cos \theta}{\mu(A_1)} \ln \left(1 - \frac{C\xi'_1\xi'}{C_1} \right),$$

$$z(n) = \sum_{i=1}^{n-1} T_i - \frac{\cos \theta}{\mu(A_n)} \ln \left(1 - \frac{C\xi'_n(\xi - \xi_{\text{crit}}^{A_n})}{C_n} \right),$$

$$z(k) = \sum_{i=1}^{k-1} T_i - \frac{\cos \theta}{\mu(A_k)} \ln \left(1 - \frac{C}{C_k} (\xi - \xi_{\text{crit}}^{A_k}) \right).$$

Здесь $2 \leq n < k$ и $\xi_{\text{crit}}^{A_n} = \sum_{i=1}^n C_i/C$. Полученные выражения позволяют моделировать расстояние, пройденное фотоном в системе, состоящей из k слоев с различными оптическими характеристиками.

Ниже мы приведем также результаты расчетов для варианта нашего МК-алгоритма в случае проникновения света в биокань под случайным углом к поверхности. Угол θ_i входа фотона в среду будет считаться распределенным по нормальному закону со стандартным отклонением σ .

Результаты моделирования. В данном разделе приводятся результаты расчетов интенсивности обратного рассеяния лазерного излучения ближнего инфракрасного диапазона в четырехслойной среде. Оптические параметры слоев, взятые для системы “кожа–череп–СМЖ–мозг” из работ [6, 48], приведены в табл. 1. Параметр анизотропии для всех проведенных расчетов составил $g = 0.9$. Толщины слоев были выбраны исходя из данных о средних толщинах соответствующих слоев для головы человека: толщина слоя кожи составила $T_A = 3$ мм, слоя черепа $T_B = 7$ мм и слоя СМЖ $T_C = 3$ мм. Слой мозга, в таком случае, занимает все оставшееся место в системе и его толщина составляет $T_D = 150$ мм.

Таблица 1. Коэффициенты абсорбции μ_a мм⁻¹ и приведенные коэффициенты рассеяния μ'_s мм⁻¹ для различных тканей при заданной длине волны

	Длина волны, λ							
	750 нм		850 нм		950 нм		1050 нм	
	μ_a	μ'_s	μ_a	μ'_s	μ_a	μ'_s	μ_a	μ'_s
Мозг	0.036	0.859	0.106	0.762	0.114	0.622	0.118	0.525
Череп	0.006	1.974	0.013	1.876	0.019	1.757	0.019	1.665
Кровь	0.530	0.725	0.720	0.649	0.930	0.650	0.560	0.645
Кожа	0.046	1.535	0.038	1.485	0.030	1.625	0.022	1.695

Процесс моделирования проводился методом МК с использованием как традиционного подхода в расчете обратного преобразования кумулятивной функции распределения вероятности длины свободного

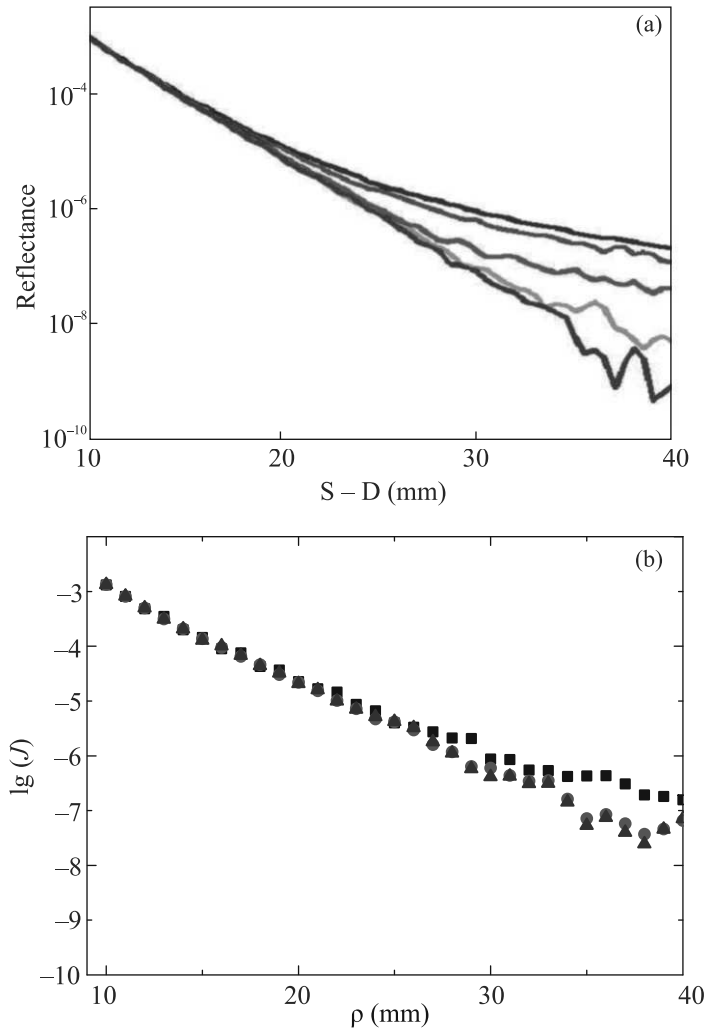


Рис. 1. (Цветной онлайн) Интенсивность обратного рассеяния для четырехслойной модели головы человека в зависимости от расстояния между источником и приемником. Параметры: $\lambda = 750$ нм, кожа 3 мм, череп 7 мм, СМЖ 2 мм. (а) – График из работы [6], 100 мм мозг. (б) – Наши результаты, 150 мм мозг. Концентрация крови в СМЖ: квадрат – 0 %, круг – 50 %, треугольник – 100 %

пробега фотона, описанного ранее, так и с использованием предложенной в работе [13] модификации, обобщенной на случай системы, состоящей из четырех слоев. Рассматриваемая нами среда в рамках моделирования занимает полупространство $z \geq 0$. Лазерное излучение попадает в данную систему в точке $(0, 0, 0)$ на поверхности среды и движется вдоль оси z , т.е. вглубь среды. В результате многократного рассеяния в четырехслойной среде возникает обратное рассеяние, интенсивность которого рассчитывалась в точке на поверхности $z = 0$ на различных расстояниях ρ от точки входа лазерного луча в сре-

ду. С ростом кратности вклады в интенсивность обратного рассеяния ослабевают, и мы ограничивались предельной кратностью $n = 5 \cdot 10^5$. В свою очередь, объем выборки определялся из соображений достаточности точности и составлял $N_{ph} = 10^6 - 10^7$.

На рисунке 1 представлены результаты моделирования зависимости интенсивности обратного рассеяния от расстояния между источником и приемником для системы “кожа–череп–СМЖ–мозг”. Данные, приведенные на рис. 1а, взяты из работы [6], в которой проводилось рассмотрение локализованного распространения крови в слое СМЖ. Данные, на рис. 1б приведены для различных концентраций крови в слое СМЖ. Кривая для концентрации крови $n = 0\%$ на рис. 1б отвечает случаю полного отсутствия крови в рассматриваемом слое и соответствует верхней кривой графика рис. 1а, в то время как кривая для $n = 100\%$ на рис. 1б отвечает случаю полного заполнения кровью слоя СМЖ и соответствует нижней кривой графика рис. 1а. На рисунке 2 также представлены зависимости интенсивности обратного рассеяния от расстояния между источником и приемником для системы “кожа–череп–СМЖ–мозг”. Рисунок 2а и б с теми же параметрами, за исключением толщины слоя кости черепа, которая в первом случае составляет 5 мм, а во втором – 10 мм. Такие расчеты были проведены с целью определения влияния экранирования глубоко лежащих слоев черепом и оценки значимости глубины нахождения очага кровоизлияния в голове. Из результатов моделирования следует, что появление крови в слое СМЖ тем заметнее, чем ближе к поверхности головы находится этот слой. Так, например, различие в интенсивности обратного рассеяния в случае 10 мм черепа удается определить лишь на достаточно больших расстояниях между источником и приемником лазерного излучения (> 30 мм), в то время как с 5 мм черепом эти различия видны уже на расстояниях гораздо меньших (> 17 мм).

Были проведены расчеты по определению влияния разброса угла проникновения фотона в многослойную систему. Для этого рассмотрены несколько вариантов распределения угла: падение перпендикулярное плоскости поверхности, равномерное распределение в интервале $[0, \pi/2]$, нормальное распределение с нулевым средним и стандартным отклонением σ , значения для которого мы рассматривали равными $\pi/6$ и $\pi/90$. Результаты моделирования приведены на рис. 3. Можно видеть, что при перпендикулярном падении фотонов в среду результаты оказываются практически идентичные со случаем $\sigma = \pi/90$. В свою очередь, равномерное распределение угла дало

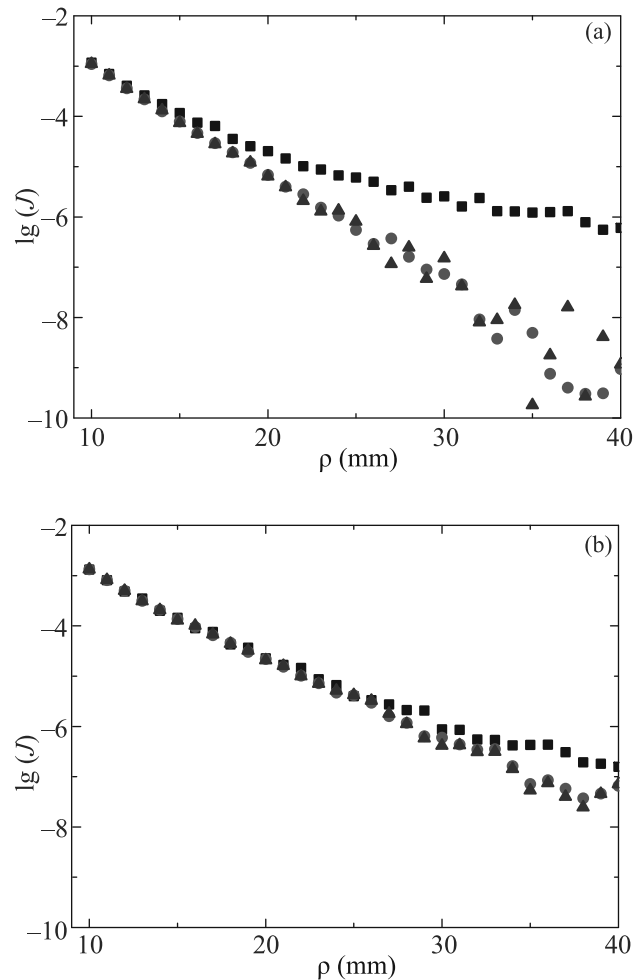


Рис 2. (Цветной онлайн) Интенсивность обратного рассеяния для четырехслойной модели головы человека в зависимости от расстояния между источником и приемником. Кожа 3 мм, череп 5 мм – (а) / череп 10 мм – (б), 2 мм СМЖ и 150 мм мозг. Концентрация крови в СМЖ: квадрат – 0%, круг – 50%, треугольник – 100%. Длина волны $\lambda = 750$ нм. Параметр анизотропии $g = 0.9$

результат с наименьшим значением интенсивности обратного рассеяния, а кривая с $\sigma = \pi/6$ расположилась между кривой с $\sigma = \pi/90$ и кривой, соответствующей равномерному распределению угла. Значение $\sigma = \pi/90$ выбрано не случайно и отвечает характерному значению угла раствора конуса излучения световода. Значение $\sigma = \pi/6$ выбиралось, как характерное отклонение, вызванное погрешностью измерений. По результатам моделирования можно утверждать, что изменение разброса угла излучения приводит к изменению интенсивности обратного рассеяния на расстояниях между источником и приемником, дающих наибольшую информацию об устройстве исследуемой среды.

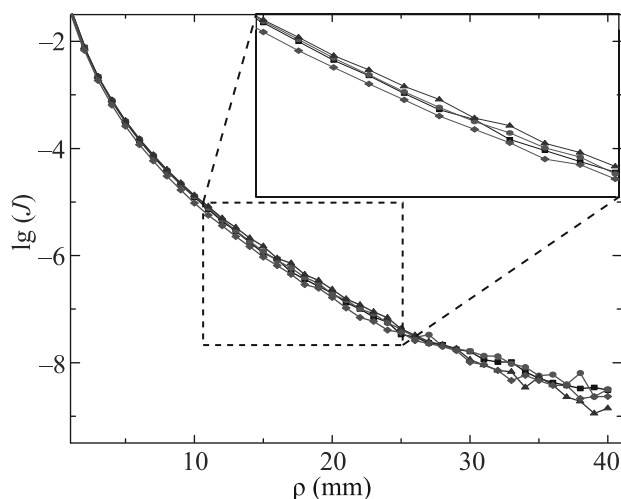


Рис. 3. (Цветной онлайн) Интенсивность обратного рассеяния для четырехслойной модели головы человека в зависимости от расстояния между источником и приемником. Кожа 3 мм, череп 7 мм, 2 мм СМЖ и 150 мм мозг. Угол проникновения излучения в среду: треугольник – нормальное падение; круг – Гауссово распределение с $\sigma = \pi/90$; квадрат – Гауссово распределение с $\sigma = \pi/6$; ромб – равномерное распределение. Длина волны $\lambda = 750$ нм. Параметр анизотропии $g = 0.9$

В рамках исследования четырехслойной системы также был рассмотрен альтернативный способ проведения обратного преобразования, предложенный ранее в работе [13], однако, как и в случае двухслойной системы, различия в используемых подходах не превысили погрешности вычисления.

Заключение. В работе проведен расчет интенсивности обратного рассеяния лазерного инфракрасного излучения на четырехслойной случайно неоднородной биоткани. В качестве основной модели рассматривалась система “кожный покров–кость черепа–спинномозговая жидкость–мозг”, которая лучше подходит для моделирования головы человека, чем рассмотренная нами ранее упрощенная двухслойная биомодель “черепа–мозг” [13]. Перенос излучения в биоткани с учетом многократных рассеиваний моделировался на основе уравнения Бете–Солпитера в лестничном приближении. Представление его решения в виде разложения рассеянной интенсивности в ряд по кратностям рассеяния, в котором каждый член разложения является многократным интегралом, позволило для вычисления членов ряда воспользоваться методом Монте-Карло. Для учета анизотропии рассеяния излучения в биоткани была использована модельная фазовая функция Хеньи–Гринштейна с параметром анизотропии $g = 0.9$. В расчетах мы применяли нашу модифика-

цию известной процедуры MCML [26], отличающуюся способом регистрации фотонов [22] а для моделирования длины свободного пробега фотона мы использовали как традиционный метод MCML, так и предложенную в [13] его модификацию. Рассчитанные зависимости интенсивности обратного рассеянного инфракрасного излучения от расстояния между источником и приемником, находящимися непосредственно на голове человека, оказались чрезвычайно чувствительными к концентрации крови в слое спинномозговой жидкости. Это позволяет использовать сравнительно недорогие оптические методы в быстрой, полевой диагностике травматических повреждений и кровоизлияний в голове человека и в других многослойных биотканях.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 23-22-00035, <https://rscf.ru/project/23-22-00035/>.

1. В. В. Тучин, *Оптика биологических тканей. Методы рассеяния света в медицинской диагностике*, IPR Media, М. (2021).
2. S. L. Jacques, *Phys. Med. Biol.* **58**, R37 (2013).
3. D. J. Davies, Z. Su, M. T. Clancy, S. J. Lucas, H. Dehghani, A. Logan, and A. Belli, *J. Neurotrauma* **32**, 933 (2015).
4. A. Sabeeh and V. V. Tuchin, *J. Biomed. Photonics & Engineering*, **6**, 040201 (2020).
5. A. P. Tran, S. Yan, and Q. Fang, *Neurophoton.* **7**, 015008 (2020).
6. R. Francis, B. Khan, G. Alexandrakakis, J. Florence, and D. MacFarlane, *Biomed. Opt. Express* **6**, 3256 (2015).
7. E. S. Papazoglou, M. S. Weingarten, L. Zubkov, M. Neidrauer, L. Zhu, S. Tyagi, and K. Pourrezaei, *J. Biomed. Opt.* **13**, 044005 (2008).
8. E. S. Papazoglou, M. T. Neidrauer, L. Zubkov, M. S. Weingarten, and K. Pourrezaei, *J. Biomed. Opt.* **14**, 064032 (2009).
9. E. Zinchenko, N. Navolokin, A. Shirokov et al. (Collaboration), *Biomed. Opt. Express* **10**, 4003 (2019).
10. F. Scholkmann, S. Kleiser, A. J. Metz, R. Zimmermann, J. Mata Pavia, U. Wolf, and M. Wolf, *Neuroimage* **85**, 6 (2014).
11. H. Liu, D. A. Boas, Y. Zhang, A. G. Yodh, and B. Chance, *Phys. Med. Biol.* **40**, 1983 (1995).
12. O. Pucci, V. Toronov, and K. St. Lawrence, *Appl. Opt.* **49**, 6324 (2010).
13. В. Л. Кузьмин, Ю. А. Жаворонков, С. В. Ульянов, А. Ю. Вальков, *ЖЭТФ* **161**, 779 (2022).
14. J. Zhao, H. S. Ding, X. L. Hou, C. L. Zhou, and B. Chance, *J. Biomed. Opt.* **10**, 024028 (2005).
15. V. Ntziachristos and B. Chance, *Med. Phys.* **28**, 1115 (2001).

16. A. Torricelli, D. Contini, A. Pifferi, M. Caffini, R. Re, L. Zucchelli, and L. Spinelli, *Neuroimage* **85**, 28 (2014).
17. H. Wabnitz, J. Rodriguez, I. Yaroslavsky, A. Yaroslavsky, and V.V. Tuchin, in *Handbook of Optical Biomedical Diagnostics. Light-Tissue Interaction*, 2nd ed., SPIE Press, Bellingham, Washington (2016), v. 1, p. 401.
18. T. Durduran, R. Choe, J.P. Culver, L. Zubkov, M.J. Holboke, J. Giammarco, B. Chance, and A.G. Yodh, *Phys. Med. Biol.* **47**, 2847 (2002).
19. M.A. Franceschini, S. Thaker, G. Themelis, K.K. Krishnamoorthy, H. Bortfeld, S.G. Diamond, D.A. Boas, K. Arvin, and P.E. Grant, *Pediatr. Res.* **61**, 546 (2007).
20. S. Mahmoodkalayeh, M.A. Ansari, and V.V. Tuchin, *Biomed. Opt. Express* **10**, 2795 (2019).
21. M.S. Cano-Velázquez, N. Davoodzadeh, D. Halaney, C.R. Jonak, D.K. Binder, J. Hernández-Cordero, and G. Aguilar, *Biomed. Opt. Express* **10**, 3369 (2019).
22. В. Л. Кузьмин, А. Ю. Вальков, Л. А. Зубков, *ЖЭТФ* **155**, 460 (2019).
23. V.L. Kuzmin, V.P. Romanov, and E.V. Aksenova, *Phys. Rev. E* **65**, 016601 (2001).
24. T.M. Nieuwenhuizen and J.M. Luck, *Phys. Rev. E* **48**, 569 (1993).
25. V.L. Kuzmin, M.T. Neidrauer, D. Diaz, and L.A. Zubkov, *J. Biomed. Opt.* **20**, 105006 (2015).
26. L. Wang, S.L. Jacques, and L.Q. Zheng, *Comput. Meth. Prog. Bio.* **47**, 131 (1995).
27. A.N. Bashkatov, E.A. Genina, V.I. Kochubey, and V.V. Tuchin, *Proc. SPIE* **6163**, 616310 (2006).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 117

Выпуск 6

25 марта 2023

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

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

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

On x -independence of $R^Q = F_L^Q/F_2^Q$ ratio at low x

N. A. Abdulov⁺¹⁾, A. V. Kotikov⁺¹⁾, A. V. Lipatov^{+*1)}

⁺Joint Institute for Nuclear Research, 141980 Dubna, Russia

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

Submitted 21 January 2023

Resubmitted 8 February 2023

Accepted 8 February 2023

DOI: 10.31857/S1234567823060010, EDN: qrpvxz

An important new data on the cross sections for the open charm and beauty production in deep inelastic electron-proton scattering (DIS) have appeared [1] by combining the results of research from the H1 and ZEUS collaborations at HERA. Measurements have shown that the production of heavy flavor Q in DIS occurs predominantly due to the photon-gluon fusion process $\gamma g \rightarrow Q\bar{Q}$ and therefore depend strongly on gluon density in the proton and mass m_Q of produced heavy quark ($Q = c, b$ and t). Theoretical studies usually serve to confirm that available HERA data can be described by perturbative heavy flavor generation in QCD (see, for example, review [2] and references therein). Further investigations are planned at future lepton-hadron and hadron-hadron colliders [3–5], such as eIC, LHeC, FCC-eh and FCC-hh, where the measurements can be performed with much increased precision and extended to much smaller x and high Q^2 values.

In our previous consideration [6, 7] we have analyzed latest experimental data [1] taken by the H1 and ZEUS Collaborations at HERA. In particular, we have studied the heavy quark contributions to the proton structure function (SF) $F_2(x, Q^2)$ and reduced charm and beauty cross sections $\sigma_{\text{red}}^{c\bar{c}}(x, Q^2)$ and $\sigma_{\text{red}}^{b\bar{b}}(x, Q^2)$ measured mostly at small values of the Bjorken variable x in a wide region of Q^2 [8–11]. An additional important result of the evaluations [7] is that the compact analytical expressions for these DIS coefficient functions have been presented up to next-to-next-to-leading order (NNLO) accuracy. These expressions were used very recently to investigate the top quark production in the FCC-he kinematical regime [12, 13]. Here we continue

our study [6, 7]. Using the previously derived expressions for DIS coefficient functions, we study the ratio $R^Q(x, Q^2) = F_L^Q(x, Q^2)/F_2^Q(x, Q^2)$ in the first three orders of perturbation theory. We demonstrate an approximate x -independence of this ratio for non-large Q^2 values, namely, $Q^2 \leq 8 \div 10m_Q^2$. Moreover, we show a very slow ratio's dependence on the choice of used gluon density.

This is an excerpt of the article “On x -independence of $R^Q = F_L^Q/F_2^Q$ ratio at low x ”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S002136402360012X

1. H. Abramowicz, I. Abt, L. Adamczyk et al. (H1 and ZEUS Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **78**(6), 473 (2018).
2. J. Gao, L. Harland-Lang, and J. Rojo, *Phys. Rep.* **742**, 1 (2018).
3. S. Amoroso, A. Apyan, N. Armesto et al. (Collaboration), arXiv:2203.13923 [hep-ph].
4. K.D. J. André, L. Aperio Bella, N. Armesto, et al. (Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **82**(1), 40 (2022).
5. M. Klein, arXiv:1802.04317 [hep-ph].
6. A.V. Kotikov, A.V. Lipatov, B.G. Shaikhmatdenov, and P. Zhang, *JHEP* **2002**, 028 (2020).
7. A.V. Kotikov, A.V. Lipatov, and P.M. Zhang, *Phys. Rev. D* **104**(5), 054042 (2021).
8. ZEUS Collaboration, *JHEP* **1409**, 127 (2014).
9. H1 Collaboration, *Eur. Phys. J. C* **71**, 1769 (2011).
10. H1 Collaboration, *Eur. Phys. J. C* **72**, 2252 (2012).
11. H1 Collaboration, *Eur. Phys. J. C* **65**, 89 (2010).
12. G.R. Boroun, arXiv:2109.09583 [hep-ph].
13. G.R. Boroun, arXiv:2301.03261 [hep-ph].

¹⁾e-mail: nizami.abdulov@gmail.com; kotikov@theor.jinr.ru; artem.lipatov@mail.ru

Нелинейный отклик разреженных газов на ультрафиолетовый фемтосекундный импульс

Н. Р. Врублевская⁺, Д. Е. Шипило^{+,*}, И. А. Николаева^{+,*}, Н. А. Панов^{+,*}, О. Г. Косарева^{+,*1)}

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

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

Поступила в редакцию 2 февраля 2023 г.

После переработки 7 февраля 2023 г.

Принята к публикации 7 февраля 2023 г.

Квантовомеханические расчеты нелинейного отклика одномерной квантовой системы, воспроизводящей энергетическую структуру ксенона, на ультрафиолетовый фемтосекундный импульс с интенсивностью 1–100 ТВт/см² показали дисперсию коэффициента кубической нелинейности в диапазоне 266–400 нм и его зависимость от интенсивности, исключая описание отклика связанных электронов в виде $\chi^{(3)}E^3$. Вычисление поляризации на базе одномерной квантовой модели может быть использовано при моделировании распространения ультрафиолетового фемтосекундного излучения в газе.

DOI: 10.31857/S1234567823060022, EDN: qrrkuz

1. Введение. К настоящему времени проведено детальное экспериментальное и теоретическое исследование распространения высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного излучения инфракрасного диапазона в газах как при филаментации в объеме газовой среды [1], так и в газонаполненном волокне [2]. Для теоретического описания нелинейного отклика газовых сред на фемтосекундный импульс инфракрасного диапазона применяется *феноменологический* подход [3], основанный на представлении нелинейности в виде суперпозиции тока электронов, освободившихся в актах многофотонной/туннельной ионизации [4], и производной по времени t нелинейной поляризации среды P_{nl} , соответствующей ангармоничному движению связанных электронов. Поляризация P_{nl} , в основном, определяется мгновенным кубическим по полю E вкладом $P_{nl} = \chi^{(3)}E^3$ [5–8], причем коэффициент нелинейности третьего порядка $n_2 \propto \chi^{(3)}$ определяется экспериментально [9–11]. Для расчетов распространения в молекулярных газах модель дополняют описанием резонансного линейного [11–14] и инерционного кубического [14–18] откликов.

Строго говоря, феноменологический подход к описанию нелинейности не обоснован математически, его применимость обусловлена существенно различным числом фотонов, обеспечивающих отклик связанных электронов ($3\hbar\omega$) и ионизацию среды ($8\hbar\omega$ для молекулы O_2 при центральной длине волны излучения $\lambda = 2\pi c/\omega = 800$ нм, c –

скорость света). Для фемтосекундных импульсов с центральной длиной волны в ближнем и среднем инфракрасном диапазоне феноменологический подход воспроизводит экспериментальные результаты. Например, для наиболее часто используемого в экспериментах излучения с центральной длиной волны около 800 нм (лазер на титан-сапфире) оцененная из измерений и моделирования пиковая интенсивность в филаменте в воздухе составляет около 100 ТВт/см² [19–22].

В плазменном канале ультрафиолетового филамента возможно усиление радиочастотного и терагерцового излучения благодаря относительно узкому спектру фотоэлектронов [23]. Однако параметры филаментов ультрафиолетового диапазона не столь детально изучены, как для инфракрасного излучения. В частности, неизвестен даже порядок интенсивности импульса на длине волны ~ 250 нм (третья гармоника лазера на титан-сапфире) в филаменте: согласно работе [24] она составляет около 0.1 ТВт/см², тогда как согласно [25] – 20 ТВт/см². Вызывает сомнения сама возможность применения феноменологического подхода [25–28] для теоретического описания взаимодействия высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного излучения ультрафиолетового диапазона с газовыми средами. Действительно, для излучения с длиной волны ~ 250 нм ионизация таких газов как кислород или ксенон становится трехфотонной [29]. Поэтому отклик электронов как связанных в атомах или молекулах, так и освобожденных в актах ионизации [4, 30] становится кубичным по полю.

¹⁾ e-mail: kosareva@physics.msu.ru

Косвенное подтверждение ограниченной применимости феноменологического подхода к описанию нелинейности газов в ультрафиолетовом диапазоне представлено в работе [31], в которой построена аппроксимация зависимости коэффициента n_2 , полученного на основе квантовых вычислений, от длины волны λ формулой селлмейеровского типа. Сингулярность в аппроксимации $n_2(\lambda)$ достигалась на длине волны, соответствующей трети потенциала ионизации, – т.е. когда нелинейная ионизация становится трехфотонной. Тем самым, для фемтосекундного излучения ультрафиолетового диапазона с частотой вблизи трети потенциала ионизации само определение n_2 может терять физический смысл.

Стоит отметить, что квантовомеханическое описание нелинейного отклика полупроводников и диэлектриков обычно базируется на системе уравнений Максвелла–Блоха, см., например, [32, 33]. В случае разреженного одноатомного газа, однако, отсутствует необходимость учитывать зонную структуру, анизотропию среды, взаимодействие с резервуаром и термализацию плазмы, поэтому можно отказаться от такого формализма в пользу нестационарного уравнения Шредингера [34, 35].

В настоящей работе мы, используя одномерную квантовомеханическую модель [36] взаимодействия света с потенциальной ямой с уровнями энергии, приближенно соответствующими основному и возбужденным состояниям атома ксенона, исследуем нелинейный отклик, наводимый в среде фемтосекундным импульсом. В широком диапазоне интенсивностей импульса от 0.1 до 100 ТВт/см² и его центральных длин волн от 266 до 1500 нм из численного решения нестационарного уравнения Шредингера нами получен нелинейный отклик среды, состоящей из таких невзаимодействующих между собой квантовых систем. Установлено, что в инфракрасном диапазоне найденная нами нелинейная поляризация соответствует отклику, определенному из феноменологического подхода. Для ультрафиолетовых фемтосекундных импульсов это согласие нарушается: уже при низкой интенсивности 2 ТВт/см² нелинейный отклик не может быть аппроксимирован кубом поля, а с ростом интенсивности до 25 ТВт/см² рассчитанные квантовомеханически и феноменологически зависимости нелинейной поляризации от времени осциллируют со сдвигом фазы в четверть оптического периода и имеют различный частотный состав.

2. Одномерная квантовомеханическая модель взаимодействия фемтосекундного импульса с веществом. Пусть $U(x)$ – одномерная потенциальная яма. Для определения связанных состо-

яний потенциала $U(x)$ мы использовали итерационный алгоритм, подробно описанный в Приложении. Вариацией параметров мы построили такой потенциал (здесь и далее в формулах использованы атомные единицы)

$$U(x) = -\frac{0.5625}{\sqrt{x^2 + 0.63^2}} \exp\left[-\left(\frac{x}{8}\right)^{16}\right], \quad (1)$$

что его связанные состояния $|\Psi_j\rangle$, $j = 0, 1, 2$ с энергиями $W_0 = -12.08$ эВ, $W_1 = -2.93$ эВ и $W_2 = -1.17$ эВ воспроизводят энергетическую структуру атома ксенона (см. рис. 1).

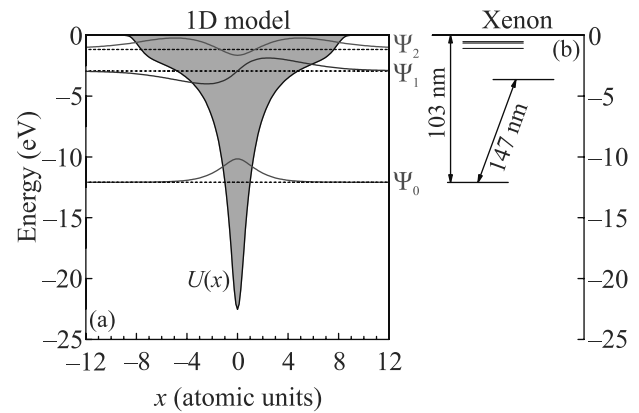


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Потенциал $U(x)$ (черная кривая) и волновые функции связанных состояний $\Psi_j(x)$ (цветные кривые). (б) – Атомные уровни ксенона

Для описания взаимодействия света с веществом использовалось нестационарное уравнение Шредингера для волновой функции $\Psi(x, t)$ с начальными условиями $\Psi(x, t \rightarrow -\infty) = |\Psi_0\rangle$:

$$i\frac{\partial \Psi}{\partial t} = -\frac{1}{2}\frac{\partial^2 \Psi}{\partial x^2} + U(x)\Psi - E(t)x\Psi, \quad (2)$$

где $E(t) = \sqrt{I_0} \exp(-t^2/[2\tau_0^2]) \sin \omega_0 t$ – электрическое поле лазерного импульса длительностью $2\tau_0 = 10$ фс. Интенсивность излучения I_0 варьировалась от 0.1 до 100 ТВт/см² (от 3×10^{-6} до 3×10^{-3} атомной интенсивности), частота ω_0 соответствовала длинам волн от 1500 до 266 нм, т.е. от низкочастотного туннельного предела до трехфотонной ионизации.

Расчеты проводились на видеокарте NVIDIA GeForce RTX 3080 с использованием технологии CUDA. Общий размер временной области составлял $20\tau_0 = 100$ фс, пространственной области – 8192 ат. ед. Количество узлов временной и пространственной сеток $N = 2^{16}$ обеспечивало разрешение по времени $\Delta t = 1.5$ ас и по пространству $\Delta x = 0.125$ ат. ед. Характерное время расчета составляло около 5 мин.

Полученная при численном интегрировании уравнения (2) вероятность ионизации $\eta = 1 - \sum_j |\langle \Psi_j | \Psi \rangle|^2$ находится в согласии с результатами расчета по формуле Переломова–Попова–Терентьева. Для центральных длин волн 266, 800 и 1500 нм зависимости вероятности перехода системы из связанного состояния в свободное от интенсивности приведены на рис. 2. Полученные из квантовомеханических расчетов зависимости $\eta(I_0)$ соответствуют многофотонному пределу для ультрафиолетовых импульсов и туннельному – для импульсов ближнего и среднего инфракрасного диапазона.

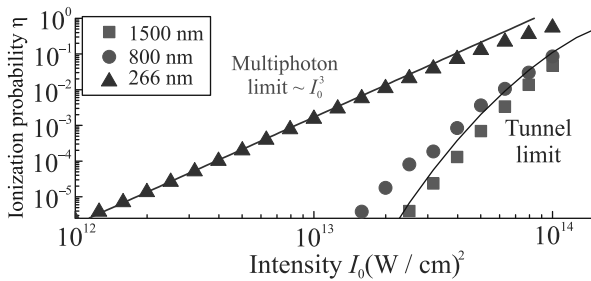


Рис. 2. (Цветной онлайн) Вероятности ионизации в широком диапазоне значений пиковой интенсивности импульса длительностью 10 фс (символы) и ее аппроксимация в многофотонном и туннельном пределах (кривые)

3. Нелинейный отклик одномерной квантовой системы. Поскольку мы рассматриваем разреженные газовые среды, макроскопическая поляризация P равна произведению дипольного момента атома газа и концентрации частиц. Произведем нормировку макроскопической поляризации на концентрацию частиц. Нормированная поляризация будет равна дипольному моменту нашей квантовой системы:

$$P(t) = -\langle \Psi | \hat{x} | \Psi \rangle. \quad (3)$$

Поляризация $P(t)$ содержит как линейный по полю, так и нелинейный вклады связанных электронов, а также вклад электронов континуума и интерференционные члены, разделить которые в общем случае невозможно. Определим эффективный коэффициент кубической нелинейности $n_2 \propto \chi^{(3)}$ из наилучшей аппроксимации поляризации (3) зависимостью

$$P(t) = \chi^{(1)}(t) \otimes E(t) + \chi^{(3)} E^3(t), \quad (4)$$

где знаком $\otimes$ обозначена свертка. Используя для аппроксимации расчеты при нескольких значениях пиковой интенсивности I_0 , можно выделить нелинейную часть поляризации. При этом дисперсия линей-

ного отклика газовой среды учитывается для всего диапазона пиковой интенсивности.

По найденным из аппроксимации (4) значениям $\chi^{(3)}$ на рис. 3 построены зависимости эффективного коэффициента кубической нелинейности n_2 как функции интенсивности для трех длин волн $\lambda = 1500, 800$ и 266 нм. Эти значения примерно на порядок меньше известных из экспериментов [9–11] значений коэффициента керровской нелинейности газов в инфракрасном диапазоне $n_2 \sim 10^{-19}$ см²/Вт. Для импульсов с $\lambda = 1500, 800$ нм эффективный коэффициент n_2 постоянен вплоть до интенсивностей 30–40 ТВт/см², после чего становится отрицательным из-за существенной доли ионизованных атомов ($\eta \gtrsim 10^{-3}$, см. рис. 2). В случае $\lambda = 266$ нм рост ионизации с интенсивностью происходит “постепенно”, и уже на интенсивностях более 5 ТВт/см² нельзя считать n_2 постоянным.

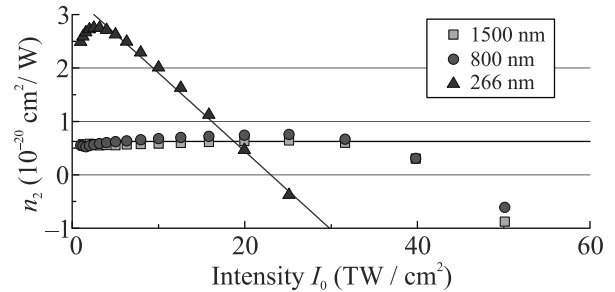


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости эффективного коэффициента кубической нелинейности от интенсивности для различных длин волн. Для инфракрасных импульсов зависимость можно считать постоянной, для ультрафиолетового – линейно убывающей (линии)

Для демонстрации дисперсии кубической нелинейности на рис. 4 построена зависимость эффективного коэффициента n_2 от центральной частоты лазерного импульса. В согласии с данными моделирования [31] она может быть аппроксимирована формулой селлмейеровского типа [26], если в качестве резонансных частот взять 1/3 от резонансных частот линейной дисперсии, которые соответствуют переходам из основного состояния в первое возбужденное и в континуум:

$$n_2(\omega_0) = \frac{A}{\Omega_A^2 - \omega_0^2} + \frac{B}{\Omega_B^2 - \omega_0^2}, \quad (5)$$

где $\Omega_A = |W_0|/3 = 4.03$ эВ, $\Omega_B = |W_0 - W_1|/3 = 3.05$ эВ. На частотах выше 600–700 ТГц (длинах волн меньше 430–500 нм) значения n_2 существенно меняются с изменением частоты в пределах спектральной ширины фемтосекундного импульса и ста-

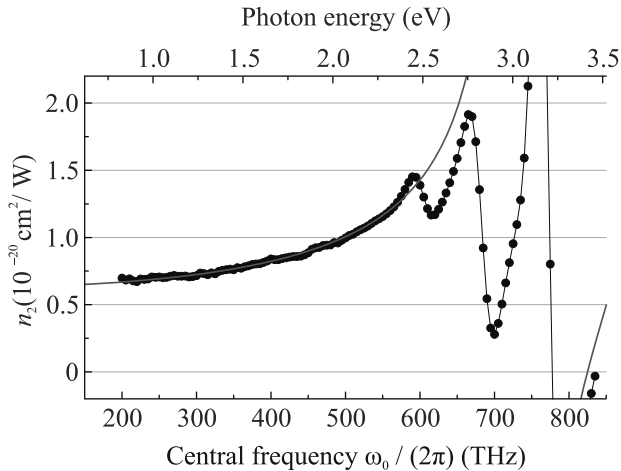


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость эффективного коэффициента кубической нелинейности n_2 , оцененного согласно аппроксимации (4) из квантовомеханических расчетов (2), от центральной частоты фемтосекундного импульса с пиковой интенсивностью 10 ТВт/см^2 (черные точки) и ее аппроксимация формулой селлмейеровского типа (5) (красная линия)

новятся отрицательными. Аппроксимация (4) перестает быть физически осмысленной, поскольку нелинейный отклик третьего порядка является запаздывающим и/или зависит от интенсивности излучения.

Для инфракрасных импульсов (1500 нм, рис. 5) нелинейную поляризацию квантовой системы можно с хорошей точностью воспроизвести в феноменологической модели, подобрав коэффициент кубической нелинейности и предэкспоненциальный фактор в скорости ионизации. Высокочастотные осцилляции поляризации на заднем фронте импульса соответствуют рекомбинационной генерации гармоник [37, 38]. Для ультрафиолетового импульса (266 нм, рис. 6) можно добиться совпадения амплитуд $P(t)$, рассчитанных двумя способами, но при этом у них существенно отличается фаза, внутрипериодная динамика и частотный спектр (ср. рис. 7а и б). Даже при низкой интенсивности 2 ТВт/см^2 (рис. 6а), когда доля ионизованных атомов $\eta \sim 10^{-5}$, в квантовой системе поляризация не пропорциональна кубу электрического поля и запаздывает относительно него. С ростом интенсивности до 25 ТВт/см^2 запаздывание нелинейного отклика, найденного при численном решении уравнения Шредингера, относительно отклика, рассчитанного в рамках феноменологического подхода, увеличивается, достигая четверти оптического периода (рис. 6б, с).

4. Заключение. На основе разработанной одномерной квантовомеханической модели взаимодействия лазерного излучения с веществом исследован

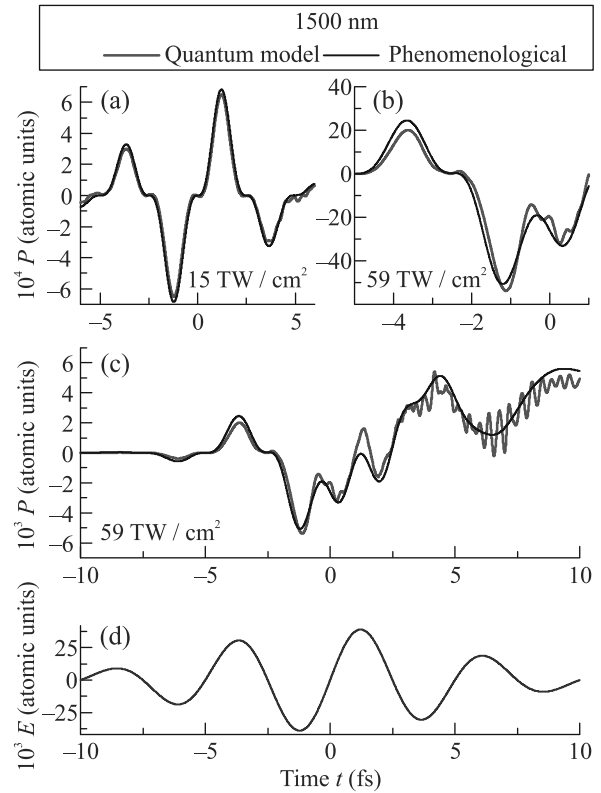


Рис. 5. (Цветной онлайн) Нелинейная поляризация атомной системы, полученная в квантовомеханическом расчете (красные линии) и на основе феноменологической модели (черные линии) при воздействии импульса на длине волны 1500 нм с интенсивностью: (а) – 15 и (б), (с) – 59 ТВт/см^2 . (д) – Поле лазерного импульса

нелинейный отклик атома на фемтосекундное излучение с центральными длинами волн от 266 до 1500 нм. В ультрафиолетовой части спектра эффективный коэффициент кубической нелинейности демонстрирует дисперсию и сильную зависимость от интенсивности, т.е. $\chi^{(3)}$ не может считаться константой. Даже при интенсивности $\sim 1 \text{ ТВт/см}^2$ нелинейный отклик на ультрафиолетовый импульс не является кубическим по полю. С ростом интенсивности до $\sim 20 \text{ ТВт/см}^2$ отклонение результатов квантовомеханического расчета нелинейной поляризации от результатов расчета в рамках феноменологического подхода увеличивается.

Тем самым, квантовомеханические расчеты нелинейного отклика атомной системы на ультрафиолетовый фемтосекундный импульс являются, по-видимому, необходимыми для моделирования распространения такого излучения в газовой среде, поскольку феноменологические модели выходят из области применимости, когда отклик связанных электронов и ионизация становятся механизмами одного

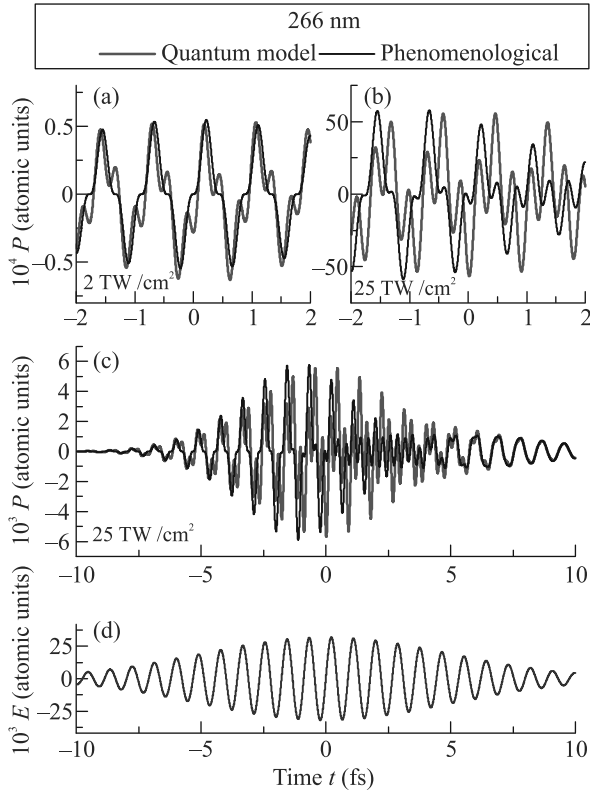


Рис. 6. (Цветной онлайн) То же, что на рис. 5, для импульсов на длине волны 266 нм с интенсивностью: (а) – 2 и (б), (с) – 25 ТВт/см²

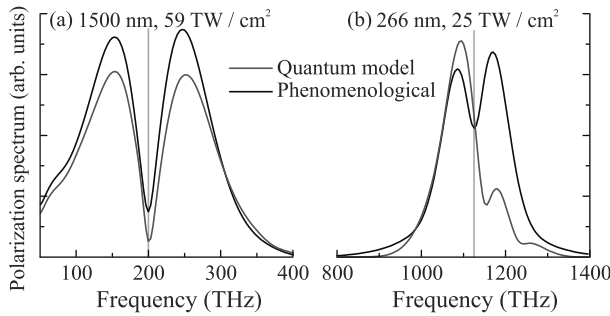


Рис. 7. (Цветной онлайн) Спектры нелинейной поляризации для: (а) – инфракрасного и (б) – ультрафиолетового импульсов. Спектры получены из зависимостей, построенных на рис. 5с и 6с, соответственно. Серые вертикальные линии указывают центральные частоты импульсов

порядка фотонности. Время выполнения квантовых расчетов на базе одномерной модели допускает использование такого подхода при моделировании распространения ультрафиолетового фемтосекундного излучения в газе.

Работа поддержана грантом Российского научного фонда (21-49-00023). Работа Д. Е. Шипило

поддержана стипендией Президента РФ молодым ученым и аспирантам (СП-3450.2022.2). Работа И. А. Николаевой и Н. Р. Врублевской поддержана стипендиями Фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС” (21-2-10-55-1 и 22-2-1-41-1).

Приложение: итерационный алгоритм определения связанных состояний потенциальной ямы. Для определения уровней энергии заданного потенциала $U(x)$ и волновых функций $|\Psi_j\rangle$ к произвольно выбранному начальному приближению $|\Psi_0\rangle^{(0)}$ многократно применялся оператор $(1 - \alpha \hat{H})$:

$$|\Psi_0^{(k+1)}\rangle = \hat{N}(1 - \alpha \hat{H})|\Psi_0^{(k)}\rangle, \quad (6)$$

где $\hat{H} = -\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} + U$ – гамильтониан, $\hat{N}|\varphi\rangle = |\varphi\rangle/\sqrt{\langle\varphi|\varphi\rangle}$ – нормировка волновой функции, а параметр $\alpha \ll 1$ подбирался таким образом, чтобы самые высокие состояния континуума на заданной сетке затухали. Поскольку самое высокое состояние континуума соответствует частоте Найквиста, достаточно потребовать $\alpha < (2\Delta x/\pi)^2$, где Δx – шаг сетки. Стоит отметить, что требовалось достаточно большое количество итераций, до 100 000, чтобы полученная таким образом функция основного состояния $|\Psi_0\rangle$ была ортогональна остальным волновым функциям и не приводила к артефактам в численном решении нестационарного уравнения (2). Высшие связанные состояния $|\Psi_1\rangle$ и $|\Psi_2\rangle$ находились аналогично, с той разницей, что в итерационный алгоритм было добавлено условие ортогональности найденным ранее состояниям:

$$|\Psi_1^{(k+1)}\rangle = \hat{N}\left(1 - |\Psi_0\rangle\langle\Psi_0|\right)\left(1 - \alpha \hat{H}\right)|\Psi_1^{(k)}\rangle, \quad (7)$$

$$|\Psi_2^{(k+1)}\rangle = \hat{N}\left(1 - \sum_{j=0}^1 |\Psi_j\rangle\langle\Psi_j|\right)\left(1 - \alpha \hat{H}\right)|\Psi_2^{(k)}\rangle. \quad (8)$$

1. V. P. Kandidov, S. A. Shlenov, and O. G. Kosareva, *Quantum Electron.* **39**(3), 205 (2009).
2. А. М. Желтиков, *Оптика микроструктурированных волокон*, М. (2004).
3. A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. de J. Ramírez-Góngora, and M. Kolesik, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **199**(1), 5 (2011).
4. F. Brunel, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**(4), 521 (1990).
5. O. Kosareva, J.-F. Daigle, N. Panov, T. Wang, S. Hosseini, S. Yuan, G. Roy, V. Makarov, and S. L. Chin, *Opt. Lett.* **36**(7), 1035 (2011).
6. P. Polynkin, M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, *Phys. Rev. Lett.* **106**(15), 153902 (2011).

7. J. Wahlstrand, Y.-H. Cheng, Y.-H. Chen, and H. Milchberg, *Phys. Rev. Lett.* **107**(10), 103901 (2011).
8. E. A. Volkova, A. M. Popov, and O. V. Tikhonova, *Quantum Electron.* **42**(8), 680 (2012).
9. S. Zahedpour, J. Wahlstrand, and H. Milchberg, *Opt. Lett.* **40**(24), 5794 (2015).
10. W. Liu and S. L. Chin, *Opt. Express* **13**(15), 5750 (2005).
11. V. O. Kompanets, D. E. Shipilo, I. A. Nikolaeva, N. A. Panov, O. G. Kosareva, and S. V. Chekalin, *JETP Lett.* **111**, 31 (2020).
12. N. A. Panov, D. E. Shipilo, V. A. Andreeva, O. G. Kosareva, A. M. Saletsky, H. Xu, and P. Polynkin, *Phys. Rev. A* **94**(4), 041801 (2016).
13. Y. E. Geints and A. A. Zemlyanov, *Appl. Opt.* **56**, 1397 (2017).
14. N. A. Panov, D. E. Shipilo, A. M. Saletsky, W. Liu, P. G. Polynkin, and O. G. Kosareva, *Phys. Rev. A* **100**(2), 023832 (2019).
15. P. A. Oleinikov and V. T. Platonenko, *Laser Phys.* **3**, 618 (1993).
16. E. T. J. Nibbering, G. Grillon, M. A. Franco, B. S. Prade, and A. Mysyrowicz, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**(3), 650 (1997).
17. J. P. Palastro, T. M. Antonsen, and H. M. Milchberg, *Phys. Rev. A* **86**, 033834 (2012).
18. В. О. Компанец, А. А. Архипова, А. А. Мельников, С. В. Чекалин, *Письма в ЖЭТФ* **116**(4), 217 (2022).
19. J. Kasparian, R. Sauerbrey, and S. L. Chin, *Appl. Phys. B* **71**, 877 (2000).
20. O. G. Kosareva, W. Liu, N. A. Panov, J. Bernhardt, Z. Ji, M. Sharifi, R. Li, Z. Xu, J. Liu, Z. Wang, J. Ju, X. Lu, Y. Jiang, Y. Leng, X. Liang, V. P. Kandidov, and S. L. Chin, *Laser Phys.* **19**(8), 1776 (2009).
21. S. Xu, X. Sun, B. Zeng, W. Chu, J. Zhao, W. Liu, Y. Cheng, Z. Xu, and S. L. Chin, *Opt. Express* **20**(1), 299 (2012).
22. S. I. Mitryukovskiy, Y. Liu, A. Houard, and A. Mysyrowicz, *J. Phys. B* **48**(9), 094003 (2015).
23. А. В. Богацкая, Е. А. Волкова, А. М. Попов, *ЖЭТФ* **157**(5), 777 (2020).
24. S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, and S. Moustazis, *Opt. Lett.* **25**(17), 1270 (2000).
25. A. Couairon and L. Bergé, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 135003 (2002).
26. V. Y. Fedorov and V. Kandidov, *Optics and Spectroscopy* **105**(2), 280 (2008).
27. D. E. Shipilo, N. A. Panov, E. S. Sunchugasheva, D. V. Mokrousova, A. V. Shutov, V. D. Zvorykin, N. N. Ustinovskii, L. V. Seleznev, A. B. Savel'ev, O. G. Kosareva, S. L. Chin, and A. A. Ionin, *Opt. Express* **25**, 25386 (2017).
28. A. V. Shutov, D. V. Mokrousova, V. Y. Fedorov, L. V. Seleznev, G. E. Rizaev, A. V. Shalova, V. D. Zvorykin, S. Tzortzakis, and A. A. Ionin, *Opt. Lett.* **44**(9), 2165 (2019).
29. М. В. Федоров, *ЖЭТФ* **149**(3), 522 (2016).
30. M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'huillier, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**(3), 2117 (1994).
31. J. M. Brown, A. Couairon, and M. B. Gaarde, *Phys. Rev. A* **97**, 063421 (2018).
32. A. N. Pfeiffer, *J. Phys. B* **53**(16), 164002 (2020).
33. L. Yue and M. B. Gaarde, *Phys. Rev. A* **101**(5), 053411 (2020).
34. E. Volkova, A. Popov, O. Popovicheva, and C. Eftimiu, *Sov. Phys. JETP* **75**, 263 (1992).
35. С. Стремоухов, *Известия РАН, Серия физическая* **86**(6), 770 (2022).
36. E. Volkova and A. Popov, *ZhETF* **106**, 735 (1994).
37. E. Serebryannikov and A. Zheltikov, *Phys. Rev. Lett.* **113**(4), 043901 (2014).
38. А. М. Желтиков, *Успехи физических наук* **191**(4), 386 (2021).

Влияние свободного движения атомов на эффекты, зависящие от плотности атомов, в нелинейной лазерной спектроскопии резонансных газовых сред

В. И. Юдин^{a,b,c1)}, А. В. Тайченачев^{a,b}, М. Ю. Басалаев^{a,b,c}, О. Н. Прудников^{a,b},
В. Г. Пальчиков^{d,e}, Т. Занон-Виллетт^{f 2)}, С. Н. Багаев^{a,b}

^aНовосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

^bИнститут лазерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

^cНовосибирский государственный технический университет, 630073 Новосибирск, Россия

^dВсероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений,
141570 Менделеево, Россия

^eНациональный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, 115409 Москва, Россия

^fSorbonne Université, Observatoire de Paris, Université PSL, CNRS, LERMA, F-75005 Paris, France

Поступила в редакцию 3 февраля 2023 г.

После переработки 7 февраля 2023 г.

Принята к публикации 7 февраля 2023 г.

Мы развиваем нелинейную по полю теорию распространения монохроматической световой волны в газе двухуровневых атомов в условии неоднородного доплеровского уширения линии, рассматривая при этом самосогласованное решение уравнений Максвелла–Блоха в приближении среднего поля и одно-атомной матрицы плотности. Показано, что при таком подходе возникает существенная деформация доплеровского резонансного контура (сдвиг, асимметрия), которая зависит от плотности атомов. Данный эффект является следствием только свободного движения атомов в газе и не связан с межатомным взаимодействием. При этом частотный сдвиг линейного по полю вклада в сигнале пропускания более чем на порядок превышает сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия, а первая нелинейная поправка испытывает еще более сильную деформацию, которая превышает влияние межатомного взаимодействия на три порядка. Обнаруженные эффекты, обусловленные свободным движением атомов, требуют значительного пересмотра существующей картины спектроскопических эффектов, зависящих от плотности атомов в газе.

DOI: 10.31857/S1234567823060034, EDN: qrsyup

Современная лазерная спектроскопия является мощным инструментом исследований, имеющим огромное значение как для фундаментальной науки, так и для многочисленных практических приложений. Базовые принципы этой науки были сформулированы несколько десятилетий назад и широко представлены в научной и учебной литературе [1–7]. Особую роль играет лазерная спектроскопия атомарных газов для квантовых стандартов частоты и времени, для которых репером служат резонансы, возбуждаемые на частоте атомных переходов. При этом метрологические характеристики данных устройств в значительной степени определяются наличием сдвигов частоты резонансных переходов.

Эти сдвиги можно разделить на две основные категории: полевые, индуцированные внешними статическими и переменными электромагнитными полями, и столкновительные, обусловленные межатомным взаимодействием.

В контексте столкновительных сдвигов для одно-компонентных газовых сред, особую важность имеют коллективные эффекты вследствие межатомного диполь-дипольного взаимодействия, которое влияет на форму резонансной линии (сдвиг, асимметрия, уширение) [8–45]. Как известно [10], в случае ансамбля двухуровневых атомов с невозмущенной частотой ω_0 для замкнутого оптического перехода $|g\rangle \leftrightarrow |e\rangle$ (см. рис. 1), масштаб влияния диполь-дипольного взаимодействия определяется величиной сдвига Лорентц–Лоренца $\Delta_{\mathcal{L}\mathcal{L}} = -\pi n k_0^{-3} \gamma_0$, где n есть плотность атомов (число частиц в еди-

¹⁾e-mail: viyudin@mail.ru

²⁾T. Zanon-Willette.

нице объема), $k_0 = \omega_0/c$ (c есть скорость света в вакууме), γ_0 есть скорость спонтанного распада верхнего уровня (см. рис. 1). В частности, для ансамбля атомов, заключенного в плоском слое толщиной L , полный отрицательный сдвиг, вызванный диполь-дипольным взаимодействием, описывается формулой [8]:

$$\Delta_{dd} = \Delta_{\mathcal{L}\mathcal{L}} - \frac{3}{4}\Delta_{\mathcal{L}\mathcal{L}} \left(1 - \frac{\sin 2k_0 L}{2k_0 L}\right) < 0, \quad (1)$$

где второй член есть коллективный лэмбовский сдвиг. Для достаточно протяженной среды ($k_0 L \gg 1$) из (1) получаем

$$\Delta_{dd} \approx \frac{1}{4}\Delta_{\mathcal{L}\mathcal{L}} = -0.79nk_0^{-3}\gamma_0. \quad (2)$$

Согласно современным представлениям, именно диполь-дипольное взаимодействие является основной причиной частотного сдвига, пропорционального плотности атомов в газе (2). Однако недавно были обнаружены ранее неизвестные эффекты, обусловленные свободным движением атомов в газе, которые также зависят от плотности атомов и приводят к деформации (сдвиг, асимметрия) линейного по полю доплеровского контура поглощения [46]. В частности, сдвиг вершины имеет положительный знак и более чем на порядок превышает величину (2). Эти эффекты возникают при описании распространения световой волны в рамках самосогласованного решения уравнений Максвелла–Блоха в одноатомном приближении, и поэтому никак не связаны с межатомным взаимодействием.

В настоящей работе мы разработали алгоритм построения нелинейной по полю теории распространения бегущей волны в газе двухуровневых атомов как самосогласованного решения уравнений Максвелла–Блоха. Это позволило получить в аналитическом виде выражение для нелинейного сигнала пропускания в среде с произвольной оптической толщиной. Было обнаружено, что вершина резонансной формы линии главной нелинейной поправки имеет положительный сдвиг, который пропорционален плотности атомов и более чем на три порядка превышает сдвиг от межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2). Этот огромный эффект может служить отличным объектом для экспериментального исследования ранее не изученных эффектов, обусловленных свободным движением атомов в газе. Экспериментальное подтверждение результатов, полученных в данной работе, будет иметь принципиальное значение для существенного пересмотра современной картины спектроскопических эффектов, зависящих от плотности атомов в газе.

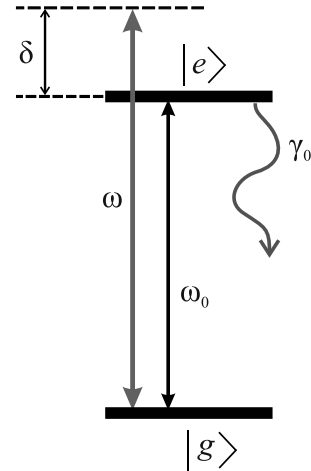


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема двух-уровневого атома

Рассмотрим одномерную задачу распространения вдоль оси z плоской световой волны с вещественным электрическим полем $E = E(t, z)$ в газе свободно-движущихся резонансных двухуровневых атомов с невозмущенной частотой перехода ω_0 (см. рис. 1). Взаимодействие атомов с полем описывается оператором электро-дипольного взаимодействия $-\hat{d}E$. Наш анализ будет проводиться в рамках самосогласованного решения системы уравнений Максвелла–Блоха, которая включает в себя волновое уравнение для поля (в системе СГС):

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) E(t, z) = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(t, z). \quad (3)$$

Поляризация среды в одноатомном приближении определяется как $P(t, z) = n\langle D \rangle$, где $\langle D \rangle$ есть средний дипольный момент атома. В случае монохроматической волны с частотой ω поле $E(t, z)$ и поляризацию среды $P(t, z)$ можно представить следующим образом:

$$\begin{aligned} E(t, z) &= e^{-i\omega t} E(z) + e^{i\omega t} E^*(z), \\ P(t, z) &= e^{-i\omega t} P(z) + e^{i\omega t} P^*(z). \end{aligned} \quad (4)$$

Тогда, исходя из (3), для отрицательно частотных компонент $E(z)$ и $P(z)$ получаем уравнение:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2\right) E(z) = -4\pi k^2 P(z), \quad (5)$$

где $k = \omega/c$ есть волновое число в вакууме.

Атомарный газ мы будем описывать одноатомной матрицей плотности $\hat{\rho}(v)$ (v есть скорость атома), компоненты которой $\rho_{mn}(v) = \langle m|\hat{\rho}(v)|n \rangle$ (где $m, n = e, g$) для замкнутой двухуровневой

системы в резонансном приближении описываются следующими уравнениями:

$$\begin{aligned} \left[v \frac{\partial}{\partial z} + \frac{\gamma_0}{2} - i\delta \right] \rho_{eg}(v) &= \frac{id_{eg}E(z)}{\hbar} [\rho_{gg}(v) - \rho_{ee}(v)], \\ \left[v \frac{\partial}{\partial z} + \gamma_0 \right] \rho_{ee}(v) &= \frac{i}{\hbar} [d_{eg}E(z)\rho_{ge}(v) - d_{ge}E^*(z)\rho_{eg}(v)], \\ \rho_{ge}(v) &= \rho_{eg}^*(v), \quad \rho_{gg}(v) + \rho_{ee}(v) = f(v), \\ \int_{-\infty}^{\infty} f(v)dv &= 1, \end{aligned} \quad (6)$$

где $\delta = \omega - \omega_0$ есть отстройка частоты лазера от частоты атомного перехода, $d_{eg} = \langle e | \hat{d} | g \rangle = d_{ge}^*$ есть матричный элемент оператора дипольного момента. Диагональные элементы матрицы плотности $\rho_{gg}(v)$ и $\rho_{ee}(v)$ описывают населенности в основном и возбужденном состояниях соответственно, а недиагональные элементы $\rho_{eg}(v)$ и $\rho_{ge}(v)$ соответствуют оптической когерентности. Функция $f(v)$ описывает скоростное распределение атомов, которое мы будем полагать максвелловским:

$$f(v) = f_M(v) = \frac{e^{-(v/v_0)^2}}{v_0 \sqrt{\pi}}, \quad v_0 = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}},$$

где k_B есть константа Больцмана, T есть температура газа, m есть масса атома. Оператор $v(\partial/\partial z)$ в левой части (6) есть одномерный вариант скалярного оператора $(\mathbf{v} \cdot \nabla)$. Отрицательно частотная компонента поляризации среды в уравнении (5) для нашей одномерной задачи определяется как:

$$P(z) = n \langle d_{ge} \rho_{eg}(v) \rangle_v, \quad (7)$$

где $\langle \dots \rangle_v$ обозначает интегрирование по скоростям, $\int_{-\infty}^{+\infty} \dots dv$. Таким образом, уравнения (5)–(7) составляют систему уравнений Максвелла–Блоха в нашем случае.

Будем искать решение уравнений (5)–(7) по теории возмущений, исходя из предположения малости следующего параметра (т.е. малого насыщения оптического перехода):

$$\frac{|d_{eg}E(z)|}{\hbar\gamma_0/2} \ll 1, \quad (8)$$

по которому осуществляется разложение для матрицы плотности:

$$\hat{\rho}(v) = \hat{\rho}^{(0)}(v) + \hat{\rho}^{(1)}(v) + \hat{\rho}^{(2)}(v) + \hat{\rho}^{(3)}(v) + \dots \quad (9)$$

В качестве начального члена разложения будем использовать матрицу плотности для газа невозмущенных атомов, находящихся в основном состоянии:

$$\rho_{gg}^{(0)}(v) = f(v), \quad \rho_{ee}^{(0)}(v) = 0, \quad \rho_{eg}^{(0)}(v) = \rho_{ge}^{(0)}(v) = 0. \quad (10)$$

В соответствии с (9), для электрического поля (4) и поляризации (7) имеет место следующее разложение:

$$\begin{aligned} E(z) &= E^{(1)}(z) + E^{(3)}(z) + E^{(5)}(z) + \dots, \\ P(z) &= P^{(1)}(z) + P^{(3)}(z) + P^{(5)}(z) + \dots \end{aligned} \quad (11)$$

Используя (9)–(11) в уравнениях (5)–(7), на первом шаге итерационной процедуры получаем систему уравнений

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2 \right) E^{(1)}(z) &= -4\pi k^2 P^{(1)}(z), \\ \left(v \frac{\partial}{\partial z} + \frac{\gamma_0}{2} - i\delta \right) \rho_{eg}^{(1)}(v) &= \frac{i}{\hbar} d_{eg} E^{(1)}(z) f(v), \\ P^{(1)}(z) &= n \langle d_{ge} \rho_{eg}^{(1)}(v) \rangle_v, \end{aligned} \quad (12)$$

решение которой в случае бегущей волны, как было показано в [46], можно представить в следующем виде:

$$\begin{aligned} E^{(1)}(z) &= \mathcal{E} e^{\mathcal{K}kz}, \\ \rho_{eg}^{(1)}(v) &= \frac{id_{eg}f_M(v)}{\hbar(\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv)} \mathcal{E} e^{\mathcal{K}kv}. \end{aligned} \quad (13)$$

При этом комплексное безразмерное волновое число $\mathcal{K}$ определяется как решение уравнения:

$$\mathcal{K}^2 + 1 = -\frac{i4\pi n |d_{eg}|^2}{\hbar} \left\langle \frac{f_M(v)}{\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv} \right\rangle_v. \quad (14)$$

Используя известное выражение

$$\gamma_0 = \frac{4k_0^3 |d_{eg}|^2}{3\hbar}$$

для скорости спонтанного распада верхнего уровня $|e\rangle$, перепишем (14) в виде:

$$\mathcal{K}^2 + 1 = -i \left\langle \frac{3\pi n k_0^{-3} \gamma_0 f_M(v)}{\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv} \right\rangle_v, \quad (15)$$

где явно фигурирует параметр межатомного диполь-дипольного взаимодействия $n k_0^{-3} \gamma_0$, несмотря на то, что мы работаем в приближении одноатомной матрицы плотности. Предполагая, что волна распространяется вдоль положительного направления оси Oz , накладываем следующие условия на решение уравнения (15):

$$\text{Im}\{\mathcal{K}\} > 0, \quad \text{Re}\{\mathcal{K}\} < 0. \quad (16)$$

Второй шаг итерации заключается в определении поправки $\hat{\rho}^{(2)}(v)$ для матрицы плотности:

$$\begin{aligned} \left(v \frac{\partial}{\partial z} + \gamma_0 \right) \rho_{ee}^{(2)}(v) &= \\ = \frac{i}{\hbar} [d_{eg} E^{(1)}(z) \rho_{ge}^{(1)}(v) - d_{ge} E^{(1)*}(z) \rho_{eg}^{(1)}(v)], \\ \rho_{gg}^{(2)}(v) &= -\rho_{ee}^{(2)}(v), \quad \rho_{eg}^{(2)}(v) = \rho_{ge}^{(2)}(v) = 0. \end{aligned} \quad (17)$$

Подставляя сюда выражения из (13), получаем уравнение:

$$\left(v \frac{\partial}{\partial z} + \gamma_0\right) \rho_{ee}^{(2)}(v) = \frac{|d_{eg}\mathcal{E}|^2 [\gamma_0 + (\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kv] f_M(v) e^{(\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kz}}{\hbar^2 |\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv|^2}, \quad (18)$$

из которого находим:

$$\rho_{ee}^{(2)}(v) = -\rho_{gg}^{(2)}(v) = \frac{|d_{eg}\mathcal{E}|^2}{\hbar^2} \frac{f_M(v) e^{(\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kz}}{|\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv|^2}. \quad (19)$$

На третьем шаге алгоритма мы определяем $\hat{\rho}^{(3)}(v)$, $E^{(3)}(z)$ и $P^{(3)}(z)$ из следующих уравнений:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2\right) E^{(3)}(z) &= -4\pi k^2 P^{(3)}(z), \quad (20) \\ \left[v \frac{\partial}{\partial z} + \frac{\gamma_0}{2} - i\delta\right] \rho_{eg}^{(3)}(v) &= \\ &= \frac{id_{eg}E^{(3)}(z)}{\hbar} [\rho_{gg}^{(0)}(v) - \rho_{ee}^{(0)}(v)] + \\ &+ \frac{id_{eg}E^{(1)}(z)}{\hbar} [\rho_{gg}^{(2)}(v) - \rho_{ee}^{(2)}(v)], \\ P^{(3)}(z) &= n \langle d_{ge} \rho_{eg}^{(3)}(v) \rangle_v. \end{aligned}$$

Используя (10), (13) и (19), получаем уравнение для $\rho_{eg}^{(3)}(v)$:

$$\begin{aligned} \left[v \frac{\partial}{\partial z} + \frac{\gamma_0}{2} - i\delta\right] \rho_{eg}^{(3)}(v) &= \quad (21) \\ &= \frac{id_{eg}E^{(3)}(z) f_M(v)}{\hbar} - \frac{i2d_{eg}\mathcal{E}|d_{eg}\mathcal{E}|^2 f_M(v) e^{(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kz}}{\hbar^3 |\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv|^2}, \end{aligned}$$

из которого вытекает следующая пространственная зависимость для $E^{(3)}(z)$:

$$E^{(3)}(z) = \mathcal{A} e^{(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kz}. \quad (22)$$

Это, в свою очередь, позволяет записать решение для $\rho_{eg}^{(3)}(v)$:

$$\begin{aligned} \rho_{eg}^{(3)}(v) &= \frac{id_{eg}f_M(v)\mathcal{A} e^{(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kz}}{\hbar[\gamma_0/2 - i\delta + (2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kv]} - \quad (23) \\ &- \frac{i2d_{eg}\mathcal{E}|d_{eg}\mathcal{E}|^2 f_M(v) e^{(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kz}}{\hbar^3 |\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv|^2 [\gamma_0/2 - i\delta + (2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kv]}. \end{aligned}$$

Подставляя (22) и (23) в левую и правую части волнового уравнения (20), находим выражение для амплитуды $\mathcal{A}$:

$$\begin{aligned} \mathcal{A} &= \frac{i6\pi n k_0^{-3} \gamma_0 \mathcal{E} |d_{eg}\mathcal{E}|^2}{\hbar^2 [(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)^2 + 1 + F(\delta)]} \times \quad (24) \\ &\times \left\langle \frac{f_M(v)}{|\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv|^2 [\gamma_0/2 - i\delta + (2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kv]} \right\rangle_v, \end{aligned}$$

где

$$F(\delta) = i \left\langle \frac{3\pi n k_0^{-3} \gamma_0 f_M(v)}{\gamma_0/2 - i\delta + (2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kv} \right\rangle_v. \quad (25)$$

Таким образом, мы можем записать выражение для поля с точностью до кубического (по $\mathcal{E}$) члена:

$$E(z) = E^{(1)}(z) + E^{(3)}(z) = \mathcal{E} e^{\mathcal{K}kz} + \mathcal{A} e^{(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kz}. \quad (26)$$

Рассмотрим оптическую среду длиной L ($0 \leq z \leq L$) при условии $kL \gg 1$ (для того, чтобы исключить существенное влияние эффекта Дике [47] и других граничных эффектов [48]). Будем полагать, что на входе в среду ($z = 0$) величина поля равна E_0 . В этом случае, из (26) получаем:

$$E(0) = E_0 = \mathcal{E} + \mathcal{A} \Rightarrow \mathcal{E} = E_0 - \mathcal{A}. \quad (27)$$

Наша задача теперь рассчитать спектроскопический сигнал на выходе из среды (при $z = L$), определяемый интенсивностью $I(L) \propto |E(L)|^2$:

$$\begin{aligned} |E(L)|^2 &= \left| (E_0 - \mathcal{A}) e^{\mathcal{K}kL} + \mathcal{A} e^{(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kL} \right|^2 \approx \quad (28) \\ &\approx |E_0|^2 e^{2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL} - 2\text{Re}\{\mathcal{A}E_0^*\} (e^{2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL} - e^{4\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL}), \end{aligned}$$

где мы пренебрегли малыми членами с $|\mathcal{A}|^2 \propto |\mathcal{E}|^6$, так как члены этого порядка будут появляться также и от вклада $E^{(5)}$ (см. (11)), который мы в данной работе не учитываем. Далее, сохраняя такую же точность, мы можем положить $\mathcal{E} = E_0$ в выражении (24) для амплитуды $\mathcal{A}$, что, исходя из (28), приводит нас к окончательному выражению для спектроскопического сигнала пропускания:

$$\begin{aligned} I(L) &\approx \quad (29) \\ &\approx I(0) e^{2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL} [1 - 3\pi n k_0^{-3} S_0 (1 - e^{2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL}) U(\delta)], \end{aligned}$$

где $I(0) \propto |E_0|^2$ есть интенсивность поля на входе в среду, $S_0 = 4|d_{eg}E_0/\hbar\gamma_0|^2 \ll 1$ есть малый параметр насыщения, а функция $U(\delta)$ определяется как:

$$\begin{aligned} U(\delta) &= \quad (30) \\ &= \text{Re} \left\langle \frac{if_M(v) [(2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)^2 + 1 + F(\delta)]^{-1} \gamma_0^3}{|\gamma_0/2 - i\delta + \mathcal{K}kv|^2 [\gamma_0/2 - i\delta + (2\mathcal{K} + \mathcal{K}^*)kv]} \right\rangle_v. \end{aligned}$$

Следует особо отметить, что аналитическое выражение (29) получено нами в рамках самосогласованного решения уравнений Максвелла–Блоха для любой оптической плотности среды, что ранее в научной литературе представлено не было.

В случае малой оптической плотности $|2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL| \ll 1$, из (29) получаем:

$$I(L) \approx I(0) [1 + 2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL + 6\pi n k_0^{-3} kL S_0 \text{Re}\{\mathcal{K}\} U(\delta)]. \quad (31)$$

Для сравнения, приведем хорошо известное выражение для оптически тонкой среды:

$$I(L) \approx I(0)[1 + D(\delta)kL + 6\pi nk_0^{-3}kLS_0B(\delta)], \quad (32)$$

где функция $D(\delta)$, обычно именуемая в научной литературе контуром Фойгта, определяется как:

$$D(\delta) = -\frac{3}{2}\pi nk_0^{-3} \left\langle \frac{f_M(v)\gamma_0^2}{|\gamma_0/2 - i\delta + ikv|^2} \right\rangle_v, \quad (33)$$

а функция $B(\delta)$ есть:

$$B(\delta) = \frac{1}{8} \left\langle \frac{f_M(v)\gamma_0^4}{|\gamma_0/2 - i\delta + ikv|^4} \right\rangle_v. \quad (34)$$

Отметим, что вывод формул (32)–(34) основан на приближении, когда в уравнении на атомную матрицу плотности используется выражение для бегущей волны в вакууме:

$$E(z, t) = E_0 e^{-i\omega t + ikz} + \text{с.с.}, \quad (35)$$

а вместо (5) используется укороченное уравнение Максвелла:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{E}(z) = 2i\pi k \tilde{P}(z), \quad (36)$$

которое получается из (5) путем замены

$$E(z) = \tilde{E}(z)e^{ikz}, \quad P(z) = \tilde{P}(z)e^{ikz}, \quad (37)$$

и пренебрегая второй производной $\partial^2 \tilde{E}(z)/\partial z^2$ в левой части (36).

Следует отметить, что функции $D(\delta)$ и $B(\delta)$ являются четными по отстройке: $D(-\delta) = D(\delta)$ и $B(-\delta) = B(\delta)$. Однако, как показано в работе [46], форма линии доплеровского контура $\text{Re}\{\mathcal{K}\}$ (см. (31)) испытывает существенную деформацию (асимметрия, сдвиг), что является следствием свободного движения атомов в самосогласованном решении уравнений Максвелла–Блоха. В частности, сдвиг вершины линейного по полю сигнала поглощения примерно равен $19nk_0^{-3}\gamma_0$, что отличается по знаку и более чем на порядок превышает сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2). В этом контексте особый интерес представляет сравнение формы линии нелинейной поправки, полученной в нашем рассмотрении (см. выражение $\text{Re}\{\mathcal{K}\}U(\delta)$ в (31)), с известным выражением (34). Как видно из рис. 2а, имеет место асимметрия формы линии и положительный сдвиг вершины резонанса, что обусловлено свободным движением атомов при самосогласованном описании в рамках системы уравнений Максвелла–Блоха. Более того, из численных расчетов нами установлено, что обнаруженный сдвиг для

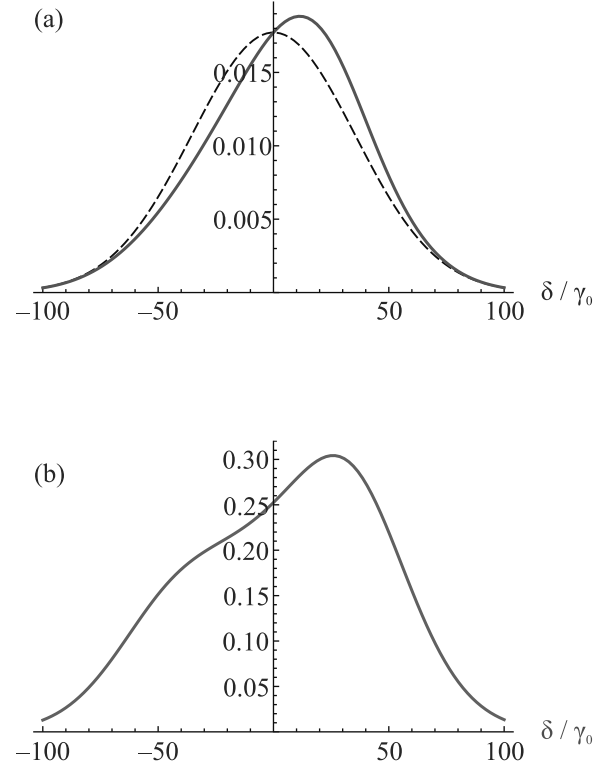


Рис. 2. (Цветной онлайн) Форма линии нелинейной поправки в сигнале поглощения (параметры расчета: $nk_0^{-3} = 0.01$, $k_0 v_0/\gamma_0 = 50$). (а) – Случай оптически тонкой среды: частотная зависимость $\text{Re}\{\mathcal{K}\}U(\delta)$ (красная сплошная линия), частотная зависимость $B(\delta)$ (черная штриховая линия). (б) – Частотная зависимость (39) для оптически толстой среды ($kL = 2\pi \times 35$)

нелинейной поправки в (31) в случае $k_0 v_0/\gamma_0 \gg 1$ пропорционален доплеровскому фактору $k_0 v_0$ и примерно равен

$$25nk_0^{-3}(k_0 v_0) = 25nk_0^{-2}v_0, \quad (38)$$

что уже более чем на три порядка превышает эффект межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2) при комнатных (и выше) температурах для подавляющего большинства атомных оптических переходов. Отметим, что мы намеренно использовали в расчетах зависимостей на рис. 2 относительно большую плотность атомов ($nk_0^{-3} = 0.01$) с целью заметной визуализации асимметрии и сдвига, обусловленных движением атомов, в масштабе всей формы линии.

В случае произвольной оптической толщины среды форма линии нелинейной поправки, как следует из (29), описывается общим выражением:

$$-3\pi nk_0^{-3} e^{2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL} (1 - e^{2\text{Re}\{\mathcal{K}\}kL}) U(\delta). \quad (39)$$

На рисунке 2б приведен пример частотной зависимости (39), когда уровень полного поглощения в центре

линии составляет около 50 %. Как видно, имеет место дополнительная деформация по отношению к оптически тонкой среде (см. рис. 2а), а положительный сдвиг вершины резонансного контура еще увеличился при той же плотности атомов.

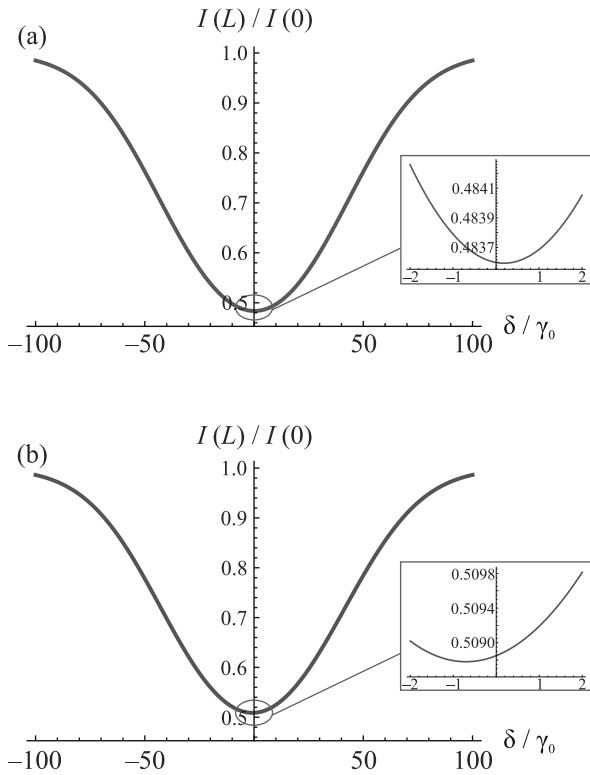


Рис. 3. (Цветной онлайн) Форма линии сигнала пропускания (параметры расчета: $nk_0^{-3} = 0.01$, $S_0 = 0.1$, $k_0 v_0/\gamma_0 = 50$, $kL = 2\pi \times 35$). (а) – Линейный по полю вклад $\exp(2\text{Re}\{K\}kL)$, где на вставке детально представлена центральная часть резонанса, сдвинутая вправо. (б) – Полный сигнал пропускания (29), где на вставке детально представлена центральная часть резонанса, сдвинутая влево

Таким образом, оба вклада в формуле (29) имеют положительный частотный сдвиг: как основной (линейный по полю) вклад, пропорциональный $\exp(2\text{Re}\{K\}kL)$ (см. рис. 3а), так и нелинейный вклад, пропорциональный выражению (39) (см. рис. 3б). Тем не менее, как показано на рис. 3б, вершина суммарной зависимости (29) может оказаться сдвинутой влево. Этот “графический” эффект зависит от величины параметра насыщения S_0 и обусловлен противоположной направленностью резонансных контуров на рис. 2б и 3а. Поэтому, важное значение имеет возможность экспериментального исследования формы линии (39) именно для нелинейной поправки, для которой положительный сдвиг верши-

ны резонансной зависимости более чем на три порядка (см. (38)) превышает сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2). Для экспериментальной реализации мы предлагаем применить известный метод, использующий относительно медленную гармоническую модуляцию входной интенсивности $I(0)$ на частоте f ($f \ll \gamma_0$), что приведет к следующей замене в формуле (29):

$$I(0) \rightarrow I_0[1 + a \sin(ft)], \quad S_0 \rightarrow S_0[1 + a \sin(ft)], \quad (40)$$

где a есть глубина модуляции. В результате, спектральная зависимость сигнала пропускания на второй гармонике ($2f$) будет определяться только интересующим нас нелинейным по полю вкладом, который пропорционален выражению (39).

Отметим, что нами был рассмотрен случай плоской монохроматической бегущей волны в бесконечном плоском слое толщиной L , когда атомы описываются стационарной матрицей плотности $\hat{\rho}(v)$, для которой производная по времени ($\partial/\partial t$) отсутствует в левой части уравнений (6). В случае ограниченного светового пучка с поперечным размером r применимость нашего подхода определяется условием

$$(r/v_0) \gg \gamma_0^{-1}, \quad (41)$$

где величина r/v_0 соответствует среднему времени пролета атомов через световой пучок, а γ_0^{-1} есть время выхода на стационарное состояние атомов, описываемое уравнениями (6). Обычно для дипольных оптических переходов имеет место $\gamma_0/2\pi > 1$ МГц, а наиболее вероятная скорость атомов при комнатных температурах (~ 300 К) составляет порядок $v_0 \sim 100$ м/с. Тогда неравенство (41) с очень большим запасом выполняется для $r \gtrsim 1$ мм и полностью соответствует типичным экспериментальным условиям ($r \sim 1$ – 10 мм) как для атомных газовых ячеек, так и для атомных пучков. Что касается степени немонахроматичности светового поля, то наш анализ применим в случае, когда ширина спектрального распределения меньше чем γ_0 , что является вполне обычным для современных лазеров, используемых в прецизионной лазерной спектроскопии.

Следует также отметить, что представленные результаты получены для замкнутой двухуровневой модели, которая строго соответствует только реальному атомному переходу $J_g = 0 \rightarrow J_e = 1$, где J_g и J_e есть угловые моменты основного и возбужденного состояний соответственно. Поэтому дополнительная проблема заключается в выборе подходящего атома с таким переходом. Четные изотопы (с нулевым ядерным спином) атомов щелочноземельных

металлов (например, Mg, Ca, Sr, Yb, Hg), которые имеют замкнутые оптические переходы $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$ и $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$, представляются наиболее подходящими. Однако температура плавления практически для всех этих элементов очень высока (~ 1000 K), что делает крайне затруднительным использование газовых ячеек. Единственным исключением являются четные изотопы $^{196-204}\text{Hg}$ атома ртути (температура плавления 234 K) с удобным для наших целей интеркомбинационным переходом $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ ($\lambda = 253.7$ нм, $\gamma_0/2\pi = 1.3$ МГц) [49, 50]. Тем не менее, при использовании атомных пучков можно выполнять спектроскопию для любых атомов указанной группы, посылая световую волну перпендикулярно атомному пучку.

В заключение, мы развили последовательную нелинейную по полю теорию доплеровской формы линии спектроскопического сигнала для бегущей монохроматической волны в газе двухуровневых атомов, основываясь на самосогласованном решении уравнений Максвелла–Блоха в приближении среднего поля и одноатомной матрицы плотности. В рамках этого подхода получены аналитические выражения для сигнала пропускания при произвольной оптической толщине газовой среды. Было обнаружено, что положительный частотный сдвиг нелинейного вклада в спектроскопический сигнал более чем на три порядка превосходит известный отрицательный сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия. Несмотря на то, что обнаруженный сдвиг зависит от плотности атомов, этот огромный эффект обусловлен только свободным движением атомов в газе при самосогласованном описании в рамках уравнений Максвелла–Блоха и никак не связан с межатомным взаимодействием. Кроме того, следует отметить пропорциональную зависимость данного сдвига от доплеровской ширины линии, что весьма необычно и в научной литературе ранее не встречалось. Предложена экспериментальная схема, позволяющая отдельно исследовать форму линии только нелинейного по полю вклада. Помимо фундаментального аспекта, полученные результаты имеют принципиальную важность для прецизионной лазерной спектроскопии и оптических атомных часов.

Отметим также, что во многих современных теоретических расчетах (см., например, [24, 31, 32]) неоднородное доплеровское уширение линии описывают в рамках математической модели ансамбля неподвижных атомов, когда резонансная частота каждого атома смещена на случайную величину (в соответствии с распределением Гаусса) с нулевым средним значением и среднеквадратичным

отклонением $k_0 v_0$. Однако следует особо подчеркнуть, что в данном стохастическом методе эффекты свободного движения атомов, обнаруженные нами, не могут быть учтены. Действительно, эти эффекты строго обусловлены наличием дифференциального оператора $(\mathbf{v} \cdot \nabla)$ в уравнении для матрицы плотности в сочетании с комплексностью волнового вектора (из-за поглощения волны в среде), что не может быть сведено только к доплеровскому сдвигу частоты для движущихся атомов.

В качестве дальнейшего развития нашего подхода можно отметить задачи распространения световых волн в газе атомов, с вырожденными по проекции углового момента энергетическими уровнями и наличием сверхтонкой структуры. В этом случае, при построении нелинейной по полю теории необходимо учитывать эффект перераспределения атомов по магнитным подуровням основного состояния (вследствие спонтанной релаксации возбужденного состояния), который отсутствует в рассмотренной нами модели двухуровневого атома. Кроме того, наш подход может быть обобщен для описания нелинейной внутри-доплеровской спектроскопии в случае встречных световых волн.

Мы благодарим за полезные дискуссии И. М. Соколова, В. Л. Величанского и С. А. Зиброва.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 22-72-10096). В. И. Юдин был поддержан Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (грант # FSUS-2020-0036).

1. В. С. Летохов, В. П. Чеботаев, *Принципы нелинейной лазерной спектроскопии*, Наука, М. (1975) [V. S. Letokhov and V. P. Chebotayev, *Nonlinear Laser Spectroscopy*, Springer Ser. Opt. Sci., Springer, Berlin, Heidelberg (1977), v. 4].
2. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Наука, М. (1979).
3. В. Демтредер, *Современная лазерная спектроскопия*, ИД Интеллект, Долгопрудный (2014) [W. Demtröder, *Laser Spectroscopy*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2014)].
4. С. Стенхольм, *Основы лазерной спектроскопии*, Мир, М. (1987) [S. Stenholm, *Foundations of laser spectroscopy*, Wiley & Sons, N.Y. (1984)].
5. В. С. Летохов, В. П. Чеботаев, *Нелинейная лазерная спектроскопия сверхвысокого разрешения*, Наука, М. (1990).
6. F. Riehle, *Frequency Standards: Basics and Applications*, Wiley-VCH, Weinheim (2005).

7. J. Vanier and C. Tómbescu, *The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards*, CRC Press, Boca Raton, FL (2015).
8. R. Friedberg, S. Hartmann, and J. Manassah, *Phys. Rep.* **7**, 101 (1973).
9. E. Lewis, *Phys. Rep.* **58**, 1 (1980).
10. H. A. Lorentz, *The Theory of Electrons and Its Applications to the Phenomena of Light and Radiant Heat*, Dover, N.Y. (2011).
11. A. P. Kazantsev, *Sov. Phys. JETP* **24**, 1183 (1967).
12. Yu. A. Vdovin and V. M. Galitskii, *Sov. Phys. JETP* **25**, 894 (1967).
13. Yu. A. Vdovin and N. A. Dobrodeev, *Sov. Phys. JETP* **28**, 544 (1969).
14. R. P. Srivastava and H. R. Zaidi, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **16**, 301 (1976).
15. M. Fleischhauer and S. F. Yelin, *Phys. Rev. A* **59**, 2427 (1999).
16. S. Giovanazzi, A. Görlitz, and T. Pfau, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 130401 (2002).
17. R. Löw, R. Gati, J. Stuhler, and T. Pfau, *Europhys. Lett.* **71**, 214 (2005).
18. T. Lahaye, C. Menotti, L. Santos, M. Lewenstein, and T. Pfau, *Rep. Prog. Phys.* **72**, 126401 (2009).
19. Ya. A. Fofanov, A. S. Kuraptsev, I. M. Sokolov, and M. D. Havey, *Phys. Rev. A* **84**, 053811 (2011).
20. R. Friedberg and J. T. Manassah, *Phys. Rev. A* **84**, 023839 (2011).
21. L. Weller, R. J. Bettles, P. Siddons, C. S. Adams, and I. G. Hughes, *J. Phys. B* **44**, 195006 (2011).
22. I. M. Sokolov, D. V. Kupriyanov, and M. D. Havey, *JETP* **112**, 246 (2011).
23. J. Keaveney, A. Sargsyan, U. Krohn, I. G. Hughes, D. Sarkisyan, and C. S. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 173601 (2012).
24. J. Javanainen, J. Ruostekoski, Y. Li, and S.-M. Yoo, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 113603 (2014).
25. J. Pellegrino, R. Bourgain, S. Jennewein, Y. R. P. Sortais, A. Browaeys, S. D. Jenkins, and J. Ruostekoski, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 133602 (2014).
26. S. E. Skipetrov and I. M. Sokolov, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 023905 (2014).
27. R. J. Bettles, S. A. Gardiner, and C. S. Adams, *Phys. Rev. A* **92**, 063822 (2015).
28. M. O. Scully, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 243602 (2015).
29. A. A. Svidzinsky, F. Li, H. Li, X. Zhang, C. H. Raymond Ooi, and M. O. Scully, *Phys. Rev. A* **93**, 043830 (2016).
30. R. J. Bettles, S. A. Gardiner, and C. S. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 103602 (2016).
31. S. D. Jenkins, J. Ruostekoski, J. Javanainen, R. Bourgain, S. Jennewein, Y. R. P. Sortais, and A. Browaeys, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 183601 (2016).
32. S. D. Jenkins, J. Ruostekoski, J. Javanainen, S. Jennewein, R. Bourgain, J. Pellegrino, Y. R. P. Sortais, and A. Browaeys, *Phys. Rev. A* **94**, 023842 (2016).
33. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, *Phys. Rev. A* **94**, 022511 (2016).
34. M. Wenzel, F. Böttcher, T. Langen, I. Ferrier-Barbut, and T. Pfau, *Phys. Rev. A* **96**, 053630 (2017).
35. T. Peyrot, Y. R. P. Sortais, A. Browaeys, A. Sargsyan, D. Sarkisyan, J. Keaveney, I. G. Hughes, and C. S. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 243401 (2018).
36. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, *Phys. Rev. A* **101**, 033602 (2020).
37. D. E. Chang, J. Ye, and M. D. Lukin, *Phys. Rev. A* **69**, 023810 (2004).
38. L. Ostermann, H. Zoubi, and H. Ritsch, *Opt. Express* **20**, 29634 (2012).
39. L. Ostermann, H. Ritsch, and C. Genes, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 123601 (2013).
40. S. Krämer, L. Ostermann, and H. Ritsch, *Europhys. Lett.* **114**, 14003 (2016).
41. L. Henriot, J. S. Douglas, D. E. Chang, and A. Albrecht, *Phys. Rev. A* **99**, 023802 (2019).
42. A. A. Заболотский, *ЖЭТФ* **158**, 594 (2020).
43. А. И. Трубилко, А. М. Башаров, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 798 (2020).
44. А. А. Бобров, С. А. Саакян, В. А. Саутенков, Б. Б. Зеленер, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 604 (2021).
45. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, *Phys. Rev. A* **105**, 063513 (2022).
46. V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, M. Yu. Basalaev, O. N. Prudnikov, and S. N. Bagayev, *J. Opt. Soc. Am. B* **39**, 1979 (2022).
47. R. H. Dicke, *Phys. Rev.* **89**, 472 (1953).
48. V. V. Batygin and I. M. Sokolov, *Phys. Lett. A* **108**, 29 (1985).
49. H. Dinesan, S. Gravina, C. Clivati, A. Castrillo, F. Levi, and L. Gianfrani, *Metrologia* **57**, 065001 (2020).
50. S. Gravina, C. Clivati, N. A. Chishti, A. Castrillo, E. Fasci, F. Bertiglia, G. Lopardo, A. Sorgi, N. Coluccelli, G. Galzerano, P. Cancio Pastor, F. Levi, and L. Gianfrani, *J. Phys.: Conf. Ser.* **2439**, 012015 (2023).

Оптические моды в эллиптических микрорезонаторах для однофотонных источников

Д. Р. Казанов¹⁾, А. М. Монахов

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

Поступила в редакцию 10 февраля 2023 г.

После переработки 13 февраля 2023 г.

Принята к публикации 13 февраля 2023 г.

Построена теория оптических мод в эллиптическом микрорезонаторе при помощи функций Матье в эллиптических координатах. Ключевым отличием от цилиндрического случая является расщепление двукратно вырожденных мод. Проведен численный расчет расщепленных оптических мод и определена их симметрия. Предложен метод подбора параметров резонатора для выделенной длины волны. Энергия оптических мод в резонаторе с металлическими стенками и в диэлектрическом резонаторе не отличается больше чем на $\sim 20\%$. Дисперсионные зависимости оптических мод показывают возможность вырождения мод различной симметрии, что позволяет провести спектральную и поляризационную фильтрацию излучения источников одиночных фотонов и создать источники многократно запутанных состояний.

DOI: 10.31857/S1234567823060046, EDN: qsejog

1. Введение. Одной из задач квантовой нанофотоники является создание высокоэффективных источников одиночных фотонов (ИОФ), в которых дипольными излучателями являются квантовые точки (КТ). Ключевым способом для усиления излучения и его наиболее эффективного направленного вывода от излучателей является использование микрорезонаторных структур. Так, одними из наиболее известных и перспективных вариантов конструкций микрорезонаторов для ИОФ являются резонансные фотонные кристаллы [1, 2], а также цилиндрические вертикальные микрорезонаторы [3]. Например, для реализации ИОФ в спектральном диапазоне ~ 920 нм используют цилиндрические микрорезонаторы радиусом 1–4 мкм с распределенными брэгговскими отражателями AlGaAs/GaAs над и под GaAs активной областью с квантовыми точками на основе InGaAs/GaAs [4]. Резонатор построен таким образом, что оптический переход реализуется вблизи энергии вырожденной по поляризации волноводной оптической моды типа HE_{11} , а также расположен в максимуме амплитуды реализуемой оптической моды. Это позволяет ускорить излучение КТ за счет эффекта Парселла, а также эффективнее вывести излучение наружу.

Однако при создании таких источников возникает ряд проблем, описанных в обзоре [5], которые могут ухудшать оптические характеристики, например, степень неразличимости фотонов. Одной из них яв-

ляется накачка КТ высоко в зону проводимости с ее дальнейшим рассеянием с непредсказуемым временем излучения. Эту проблему удастся обойти за счет использования резонансной или квази-резонансной накачки, что позволяет избежать потери в степени неразличимости за счет большей определенности времени жизни излучающего состояния. Одновременно с этим в эксперименте при детектировании приходится бороться с рассеянным излучением лазерной накачки: для резонансных фотонных волноводов излучение накачки и детектирование разделяют пространственно [2], тогда как в случае с цилиндрическими микрорезонаторами одним из способов является использование спектральной фильтрации по поляризации [6]. Последний способ уменьшает эффективность источника как минимум на 50 %, что фундаментально ограничивает масштабирование таких источников.

Одним из путей преодоления проблемы ухудшения эффективности ИОФ является понижение симметрии системы таким образом, что ранее двукратно вырожденная фундаментальная оптическая мода резонатора расщепится по поляризации [7]. Этого можно достигнуть, изменив геометрию цилиндрического резонатора, перейдя от кругового сечения к эллиптическому [8, 9]. В результате такого расщепления в дальнем поле излучение из резонатора оказывается линейно поляризованным. Подбирая эксцентриситет, можно добиться того, что две моды такого резонатора окажутся почти вырожденными и при этом поляризованными во взаимно перпендикулярном направ-

¹⁾e-mail: kazanovdr@gmail.com

лении в дальнем поле. Тогда, имея две оптических моды с поляризацией V - и H -, появляется возможность возбуждать, например, V -моды внешним лазером, тогда как при малом межмодовом расстоянии $\Delta\omega$ в резонаторе будет возбуждаться и H -мода, что приведет к возбуждению ИОФ. Поскольку возбуждающее излучение и испускаемые фотоны поляризованы во взаимно перпендикулярных направлениях, то на выходе можно получить высокую эффективность вывода излучения – вплоть до 93 % по оценкам авторов.

Для получения полупроводниковых цилиндрических и эллиптических наноколонн со вставкой из квантовых излучателей в первую очередь используют метод молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ). Этот метод позволяет с атомарной точностью выращивать планарные брэгговские зеркала, а также слои КТ с минимальным числом дефектов для получения близкой к единице квантовой эффективности КТ. В таких резонаторах можно достичь высоких значений добротности порядка $Q \sim 10^4$. Цилиндрическая или эллиптическая форма наноколонн получается с помощью электронной литографии и последующим ионным травлением [10]. Таким образом, текущая технология позволяет получать практически любые формы и размеры резонаторов.

Для контроля параметров резонатора требуется предварительное численное моделирование. Как правило, к нему относятся методы решения уравнений Максвелла во временной или частотной области. К сожалению, использование большого числа слоев в структуре (например, в брэгговских зеркалах) повышает вычислительную сложность задач: увеличивается требование по памяти, а также вычислительной мощности. Кроме того, использование параметрических разверток по выделенному параметру для подбора идеального дизайна в значительной степени увеличивает время выполнения заданного алгоритма.

В этой работе мы представляем методику, позволяющую быстро подбирать необходимые параметры эллиптического резонатора, повышающие эффективность ИОФ. Мы предлагаем метод поиска энергии оптических мод, а также расчет их пространственного распределения в двумерном металлическом резонаторе и представляем оценки погрешности при переходе к диэлектрическому и нульмерному резонатору с трехмерным квантованием за счет брэгговских зеркал. Нами предложен метод, с помощью которого можно возбуждать почти вырожденные состояния для получения эффективного источника одиночных и запутанных фотонов.

2. Теоретическое описание оптических мод.

Для описания модовой структуры эллиптического резонатора рассмотрим точно решаемую задачу об эллиптическом резонаторе с идеальными металлическими стенками. Эта задача частично рассмотрена в книге [11]. Моды резонатора определяются уравнением для z компоненты электрического (ТМ мода) или магнитного (ТЕ) поля. Прочие компоненты через них выражаются. Уравнение для соответствующей компоненты выглядит одинаково:

$$\left(-\frac{n^2\omega^2}{c^2} - \Delta\right)A = 0, \quad (1)$$

где $A = E_z$ (H_z) для ТМ (ТЕ) моды, соответственно, $n^2 = \epsilon\mu$, c – скорость света в вакууме. Для металлического резонатора переменные в уравнении (1) делятся, поэтому оператор Δ можно представить в виде $\Delta = \Delta_2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$, где Δ_2 – двумерный оператор Лапласа. Считая $A = B(x, y)Z(z)$, получим

$$\frac{d^2 Z}{dz^2} = -k_z^2 Z, \quad (2)$$

$$\Delta_2 B = -k_{\parallel}^2 B, \quad (3)$$

где $k_{\parallel}$ – волновой вектор моды в плоскости слоя, k_z – поперечный волновой вектор, а $k_{\parallel}^2 + k_z^2 = \frac{n^2\omega^2}{c^2}$.

Введем эллиптические координаты в плоскости резонатора. Пусть a и $-a$ – положения фокусов эллипса на оси x . Тогда координаты x и y будут описываться как

$$x = a \operatorname{ch} \mu \cos \nu,$$

$$y = a \operatorname{sh} \mu \sin \nu,$$

где $\mu \geq 0$, а $\nu \in [0, 2\pi]$. При такой замене переменных линии уровня $\mu = \text{const}$ являются эллипсами, один из которых должен совпасть с границей резонатора. В каноническом уравнении эллипсов

$$\frac{x^2}{b_1^2} + \frac{y^2}{b_2^2} = 1, \quad (4)$$

параметры эллипса равны $b_1^2 = a^2 \operatorname{ch}^2 \mu$ и $b_2^2 = a^2 \operatorname{sh}^2 \mu$. Параметр μ в данном случае отвечает за степень сплюснутости эллипса и находится из соотношения $\mu = \operatorname{arcth} \frac{b_2}{b_1}$. Так, в цилиндрическом случае $\mu = \infty$, а при увеличении степени сплюснутости стремится к нулю. После такой замены переменных уравнение (3) перейдет в

$$\frac{1}{a^2(\operatorname{sh}^2 \mu + \sin^2 \nu)} \left(\frac{\partial^2 B}{\partial \mu^2} + \frac{\partial^2 B}{\partial \nu^2} \right) + k_{\parallel}^2 B = 0. \quad (5)$$

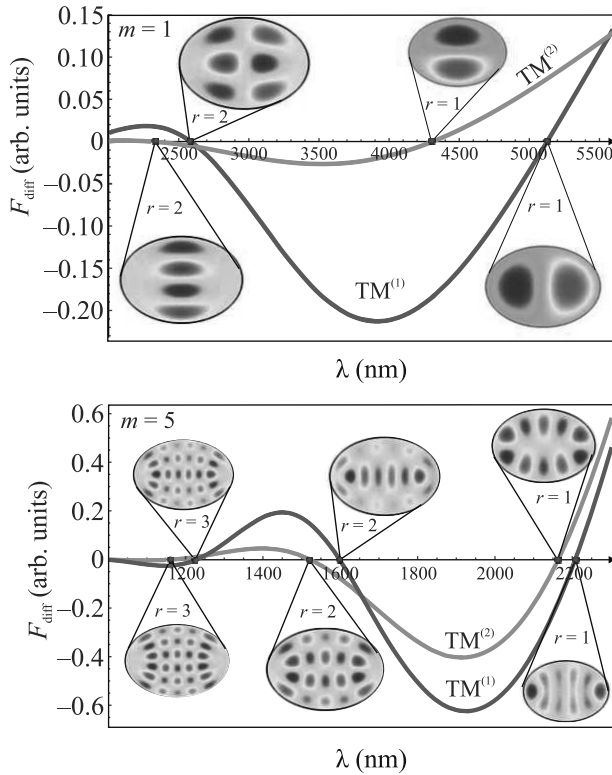


Рис. 1. (Цветной онлайн) Пример поиска оптических мод двумерного эллиптического диэлектрического резонатора с металлическими стенками в ТМ поляризации с использованием трансцендентного уравнения (14) для двух произвольных угловых квантовых чисел $m = 1$ (сверху) и $m = 5$ (снизу). Пересечение линий с осью x отвечает за разные радиальные квантовые числа r , начиная с $r = 1$, при первом пересечении на больших длинах волн. Для каждой точки пересечения показано двумерное пространственное распределение z компоненты электрического поля

Вводя $B = M(\mu)N(\nu)$ и воспользовавшись формулой двойного угла $2\sin^2 x = 1 - \cos 2x$ и ее гиперболическим аналогом, после разделения переменных получаем пару уравнений

$$N'' + \left(\alpha - \frac{k_{\parallel}^2 a^2}{2} \cos 2\nu \right) N = 0 \quad (6)$$

$$M'' - \left(\alpha - \frac{k_{\parallel}^2 a^2}{2} \cosh 2\mu \right) M = 0, \quad (7)$$

где α – еще одна константа разделения. При этом функция N должна быть 2π периодической, а для функции M в металлическом резонаторе на границе

должно выполняться одно из следующих граничных условий:

$$N(\nu + 2\pi) = N(\nu), \quad (8)$$

$$\begin{cases} M(\mu_0) = 0 \text{ для ТМ} \\ M'(\mu_0) = 0 \text{ для ТЕ,} \end{cases} \quad (9)$$

где μ_0 – значение μ , при котором линия уровня μ совпадает с границей резонатора. Уравнение (6) совпадает с уравнением Маттье

$$y''(z) + (\alpha - 2q \cos 2z)y(z) = 0, \quad (10)$$

а уравнение (7) – с модифицированным уравнением Маттье, получающемся из (10) заменой $z = iu$

$$y''(u) - (\alpha - 2q \cosh 2u)y(u) = 0,$$

где

$$q = \frac{k_{\parallel}^2 a^2}{4}. \quad (11)$$

Для того, чтобы найти константы α и $k_{\parallel}$ и, тем самым, спектр резонатора, необходимо воспользоваться граничными условиями (8) и (9). Для этого необходимо отобрать 2π периодические решения уравнения Маттье и решения модифицированного уравнения Маттье, имеющие корень при заданном μ_0 . Про уравнение Маттье известно [12], что для пары значений (α, q) , $q \neq 0$, может существовать не более одного периодического решения периода π или 2π . При фиксированном q существует дискретный набор альф (α_m), для которых решения периодичны. Индекс m нумерует число корней функции на периоде. Важным отличием от привычного цилиндра является то, что эти альфы невырождены.

Для цилиндра $q = 0$ и каждому $\alpha > 0$ соответствуют два периодических решения $\sin \nu$ и $\cos \nu$ с одинаковой частотой моды. В эллипсе эти решения расщепляются по частоте. Появляется четное решение как аналог косинуса – se_m и нечетное решение как аналог синуса – se_m , имеющие в общем случае разные частоты. Для модифицированных функций Маттье вводятся соответствующие функции от мнимого аргумента $\text{Ce}_m(x) = \text{se}_m(ix)$ и $\text{Se}_m = -i \text{se}_m(ix)$, у которых индекс m привязан с четному или нечетному решению уравнения Маттье.

Согласно [11], решение уравнения (5) выглядит следующим образом:

$$B_{z_m} = C_m \text{se}(\nu, q_{mr}) \text{Ce}(\mu, q_{mr}) \text{ для ТМ моды,} \quad (12)$$

$$B_{z_m} = C_m \text{se}(\nu, q_{mr}) \text{Se}(\mu, q_{mr}) \text{ для ТЕ моды,} \quad (13)$$

где B_z соответствует E_z (H_z) для ТМ (ТЕ) моды. Остальные комбинации типа $se_m(\nu, q_{mr})$ $Se_m(\mu, q_{mr})$ запрещены условием непрерывности на отрезке, соединяющем точки $-a$ и a . Индекс r нумерует корни функции Se_m или Se_m . При заданной геометрии эллипса возникают две, в общем случае, невырожденные частоты $q_{mr}^{(i)}$, которые определяются из условий

$$0 = \begin{cases} Ce(\mu_0, q_{mr}^{(1)}) \\ Se(\mu_0, q_{mr}^{(2)}) \end{cases} \quad \text{для ТМ моды} \quad (14)$$

$$0 = \begin{cases} \partial_\mu Ce(\mu_0, q_{mr}^{(1)}) \\ \partial_\mu Se(\mu_0, q_{mr}^{(2)}) \end{cases} \quad \text{для ТЕ моды..} \quad (15)$$

2.1. Примеры оптических мод. Для сравнения рассмотрим отличие цилиндрического резонатора от эллиптического и ограничимся случаем ТМ моды. Как известно, в цилиндре решение для E_z двукратно вырожденно [13] и выглядит следующим образом:

$$E_z = C J_m(qR) \begin{cases} \cos(m\varphi) \\ \sin(m\varphi) \end{cases},$$

где $q^2 = \frac{n^2 \omega^2}{c^2} - k_z^2$. Собственная частота моды определяется из условия

$$J_m(qR) = 0, \quad (16)$$

где R – радиус цилиндра. Для эллиптического же случая в ТМ поляризации (12) вместо двукратно вырожденной оптической моды (16) возникают два собственных числа $q_{mr}^{(1)}$ и $q_{mr}^{(2)}$ из (14). Собственная частота определяется из условия

$$k_{\parallel, mr}^{(i)} = \sqrt{\frac{4q_{mr}^{(i)}}{a^2}}. \quad (17)$$

На рисунке 1 показан пример поиска длины волны оптических мод ТМ поляризации с заранее заданными квантовыми числами (m, r) в двумерном эллиптическом диэлектрическом микрорезонаторе с металлическими стенками, заполненном GaAs ($n_{\text{GaAs}} = 3.5$) и $k_z = 0$. Для этого решались трансцендентные уравнения (14) с размерами $b_1 = 1000$ нм, $b_2 = 700$ нм. Расщепленные моды $TM^{(1)}$ и $TM^{(2)}$ отличаются по симметрии относительно главной оси эллипса; четные моды с одинаковыми квантовыми числами (m, r) находятся ниже по энергии, чем нечетные, по аналогии с уровнями квантования в квантовой яме. Первое пересечение с $y = 0$ для мод с $(m = 1, r = 1)$ происходит при больших длинах волн сопоставимых с главной осью эллипса $\lambda^{(1)} \approx \approx 2b_1 n_{\text{GaAs}} = 7000$ нм для $TM_{11}^{(1)}$, и $\lambda^{(2)} \approx 2b_2 n_{\text{GaAs}} = 4200$ нм для $TM_{11}^{(2)}$. Оптические моды с большими

$(m > 1, r = 1)$ стремятся к границе эллипса и при увеличении m длину волны обеих оптических мод можно оценить как $\lambda_{m \rightarrow \infty}^{(1,2)} = n_{\text{GaAs}} L / m$, где L – периметр эллипса, а расстояние между этими модами будет уменьшаться. Такой подход позволяет распознать расщепленные оптические моды и определить их квантовые числа (m, r) , тогда как численный расчет позволяет определить только энергию оптических мод и картину распределения электромагнитного поля.

2.2. Задача поиска степени сплюсненности. Обратная задача по поиску нужной геометрии (степени сплюсненности) для оптической моды на выделенной частоте показана на рис. 2. Цветом изображены

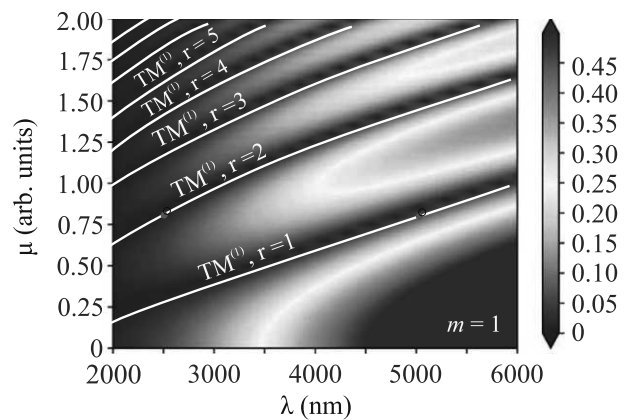


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость длины волны симметричной оптической моды $TM_{mr}^{(1)}$ для углового момента $m = 1$ и нескольких радиальных квантовых чисел $r = 1 - 5$ от степени сплюсненности μ в трансцендентном уравнении (14). Красными точками указаны точки пересечения линий трансцендентного уравнения с осью x для $\mu_0 = 0.867$, что соответствует $b_1 = 1000$ нм и $b_2 = 700$ нм, показанным на рис. 1

значения модуля модифицированной функции Маттье $Se = Se(\mu, \lambda)$ как функции двух переменных μ и λ для частного случая симметричной оптической моды $TM_{rm}^{(1)}$ и $m = 1$. Мы считаем, что $k_z = 0$ и выражаем в (11) частоту ω через λ . Оптические моды с квантовыми числами (m, r) в таком резонаторе соответствуют нулям функции Se , которые для наглядности выделены тонкой белой линией для нескольких первых мод. Красными точками отмечен частный случай резонатора с $b_1 = 1000$ нм и $b_2 = 700$ нм, по аналогии с рис. 1. Видно, что при уменьшении μ энергия каждой оптической моды растет. При увеличении μ эллипс становится похожим на цилиндр и дисперсионные кривые расщепленных мод стремятся друг к другу. Таким образом, в эллиптическом

резонаторе поле представляет из себя произведение функции, зависящей от одной переменной μ (аналог радиуса в цилиндрическом случае) и функцию, зависящей от второй переменной ν (аналог угла в цилиндрическом случае).

Сравнение с численными расчетами показывает, что в диэлектрическом резонаторе в воздухе для поиска требуемой оптической моды нужно корректировать начальное значение частоты для моды с малыми (m, r) на 20–30 % относительно частоты такого резонатора с металлическими стенками, либо делать соответствующие поправки в диэлектрической функции. Более того, описываемая процедура быстрого нахождения оптических мод становится верна для диэлектрического резонатора с большим n , поскольку по известной теореме электродинамики решения уравнений Максвелла в диэлектрических средах переходят в решения с металлическими граничными условиями при стремлении разности показателей преломления на границах к бесконечности.

2.3. Случай вырожденных частот. Для создания наиболее эффективного ИОФ при резонансной накачке хорошим способом является использование оптических мод при почти вырожденной частоте. При таком подходе лазерная накачка может производиться через одну оптическую моду, а детектирование в силу небольшого перекрытия исследуемых оптических мод, происходит через другую оптическую моду на сдвинутой частоте. Кроме того, использование мод разной природы: TE – TM, Ce-Se и прочие несимметричные комбинации при различных (m, r) позволяет естественным образом отфильтровать свет по поляризации. На рисунке 3 представлены для наглядности несколько дисперсионных зависимостей оптических мод с малыми (m, r) различной поляризации в зависимости от геометрии эллиптического резонатора $TM_{mr}^{(1)}$ и $TM_{mr}^{(2)}$. Энергия оптических мод сильно зависит от степени сплюсненности резонатора. В частном случае при $\mu > 1$ эллипс становится слабо отличным от окружности. Отличие полуосей связано с отличием $\text{sh } x$ от $\text{ch } x$, и это оно становится малым при $x > 1$. Поэтому кривые, соответствующие, например, $TM_{41}^{(1)}$ и $TM_{41}^{(2)}$, плавно подходят друг к другу при увеличении μ . Красными точками на рис. 3 отмечены области длин волн, при которых ортогональные моды становятся двукратно вырожденными. При создании ИОФ следует теоретически находить области вырождения и слегка отстраиваться от них в случае, если требуется создать слабое перекрытие для, например, оптической фильтрации. Также необходимо отметить, что в таких структурах возникают близкие к трехкратному

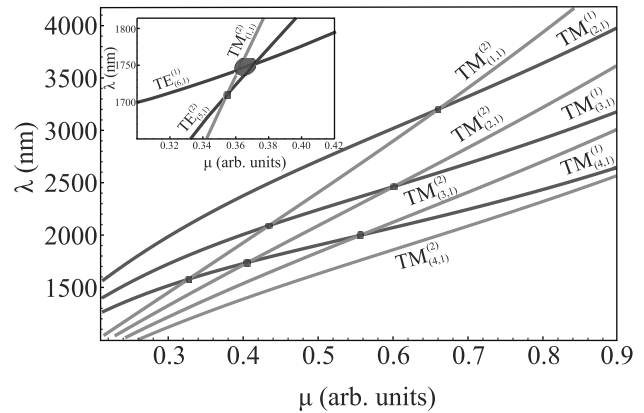


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости собственных длин волн от сплюсненности для выборочных (для наглядности) расщепленных мод $TM_{mr}^{(1)}$ и $TM_{mr}^{(2)}$ с квантовыми числами $m = 1 - 4$ и $r = 1$ для разной степени сплюсненности μ диэлектрического резонатора с металлическими стенками. $\mu = 0.9$ соответствует сплюсненности в 20 %. Красными точками показаны области 2х-кратного вырождения оптических мод. На вставке показан случай 2х-кратного вырождения оптических мод и близко расположенного третьего состояния

вырожденные состояния (двукратно вырожденное и близкое третье). Так, на вставке показан пример области, где близко по частоте одновременно могут существовать три попарно ортогональные оптические моды друг другу ($TE_{51}^{(2)}$, $TE_{61}^{(1)}$, $TM_{11}^{(2)}$). Такие состояния можно использовать для оптической накачки через близко расположенную моду, возбуждая тем самым двукратно вырожденное запутанное состояние.

3. Заключение. Таким образом, в представленной работе была построена теория оптических мод в эллиптических микрорезонаторах на основе функций Матье в диэлектрических микрорезонаторах с металлическими стенками и показано, что полученные таким способом оценки могут быть использованы в качестве нулевого приближения при расчете диэлектрических резонаторов. Ключевым отличием от классического цилиндрического резонатора является расщепление двукратно вырожденных мод. Для большой разницы показателей преломления резонатора и его окружения классификацию мод в металлическом резонаторе можно приближенно использовать для диэлектрических резонаторов, как это делается для круглых волноводов, где в первом приближении можно не учитывать гибридизацию мод. Мы продемонстрировали способ подбора параметров резонатора для задач квантовой фотоники, такие как близко вырожденные моды для ИОФ или многократно запутанные состояния.

Работа частично поддержана госкорпорацией “Росатом” в рамках Дорожной Карты Квантовые Вычисления (контракт # 868-1.3-15/15-2021 от 5.10.2021 и контракт # R2152 от 19.11.2021). Д. Р. Казанов выражает благодарность стипендии президента СП-5068.2022.5.

1. M. Arcari, I. Söllner, A. Javadi, S.L. Hansen, S. Mahmoodian, J. Liu, H. Thyrrstrup, E.H. Lee, J.D. Song, S. Stobbe, and P. Lodahl, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 093603 (2014).
2. R. Uppu, F.T. Pedersen, Y. Wang, C.T. Olesen, C. Papon, X. Zhou, L. Midolo, S. Scholz, A.D. Wieck, A. Ludwig, and P. Lodahl, *Sci. Adv.* **6**, 50 (2020).
3. I. Friedler, C. Sauvan, J.P. Hugonin, P. Lalanne, J. Claudon, and J.M. Gérard, *Opt. Express* **17**, 2095 (2009).
4. М. А. Бобров, С. А. Блохин, Н. А. Малеев, А. Г. Кузьменков, А. А. Блохин, А. П. Васильев, Ю. А. Гусева, М. В. Рахлин, А. И. Галимов, Ю. М. Серов, С. И. Трошков, В. М. Устинов, А. А. Торопов, *Письма в ЖЭТФ* **116**(9), 592 (2022).
5. P. Senellart, G. Solomon, and A. White, *Nat. Nanotechnol.* **12**, 1026 (2017).
6. Y.-J. Wei, Y.-M. He, M.-C. Chen, Y.-N. Hu, Y. He, D. Wu, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu, and J.-W. Pan, *Nano Lett.* **14**(11), 6515 (2014).
7. H. Wang, Y.-M. He, T.-H. Chung et al. (Collaboration), *Nat. Photon.* **13**, 770 (2019).
8. U. M. Gür, M. Mattes, S. Arslanagić, and N. Gregersen, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 061101 (2021).
9. X. Chen, R. Su, J. Liu, J. Li, and X.-H. Wang, *Photonics Research* **10**, 2066 (2022).
10. B. Gayral, J. M. Gérard, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1421 (1998).
11. N. McLachlan, *Theory and Application of Mathieu Functions*, Oxford University Press, Oxford (1947).
12. М. Абрамовиц, И. Стиган, *Справочник по специальным функциям*, Наука, М. (1979).
13. Л. А. Вайнштейн, *Электромагнитные волны*, АСТ, М. (1988), 440 с.

К вопросу о формировании облаков в запыленной ионосфере Марса

Ю. С. Резниченко⁺, А. Ю. Дубинский*, С. И. Попель^{*×1)}

⁺Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), 141700 Долгопрудный, Россия

*Институт космических исследований РАН, 117997 Москва, Россия

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

Поступила в редакцию 12 февраля 2023 г.

После переработки 17 февраля 2023 г.

Принята к публикации 19 февраля 2023 г.

Рассмотрены плазменно-пылевые облака в мезосфере Марса, наблюдаемые на высотах около 100 км. Перечислены особенности запыленной ионосферы Марса по сравнению с запыленной ионосферой Земли. Приведены уравнения модели, описывающей самосогласованным образом плазменно-пылевые структуры в ионосфере Марса, которая учитывает особенности, важные для ионосферы Марса, но не включаемые в рассмотрение при описании плазменно-пылевой системы в ионосфере Земли. Например, в случае Марса модель учитывает эффекты торможения пылевых частиц за счет налипания на них молекул конденсата. Приведен пример высотного распределения частиц, составляющих марсианские мезосферные облака, вычисленный на основе самосогласованной модели. Показано, что важным фактором, влияющим на формирование плазменно-пылевых облаков в ионосфере Марса, является неустойчивость Рэлея–Тейлора, которая приводит к тому, что плазменно-пылевые облака могут существовать лишь при достаточно малых значениях размеров составляющих их пылевых частиц, а также к тому, что имеется ограничение (сверху) на толщину плазменно-пылевого облака.

DOI: 10.31857/S1234567823060058, EDN: qsiouu

Важной особенностью мезосферы Марса является наличие на высотах около 100 км облаков, состоящих из частиц сухого льда (CO_2) с характерным размером порядка 100 нм, сформированных в результате конденсации углекислого газа марсианской ионосферы [1]. Существование облаков было доказано в рамках миссии Mars Express посредством измерений, выполненных с помощью инфракрасного спектрометра SPICAM. В марте 2021 г. аппарат Mars Science Laboratory Curiosity сделал снимки марсианских облаков [2], состоящих, судя по всему, из частиц сухого льда. Эти облака были зарегистрированы выше 60 км, причем фотосъемка происходила на закате, когда солнечные лучи освещали поверхность пылевых частиц и подсвечивали облака на фоне темного неба. Подобное поведение, а также то, что при формировании частиц, составляющих облака, важную роль играют процессы конденсации, указывают на аналогию [1] между марсианскими мезосферными облаками и серебристыми облаками [3, 4], наблюдаемыми на Земле, хотя точные механизмы образования марсианских облаков пока еще до конца не выяснены.

Естественно предположить, что подобно серебристым облакам на Земле мезосферные марсианские облака представляют собой плазменно-пылевые структуры в ионосфере Марса [5, 6]. Данное предположение согласуется с представлениями о пылевой плазме, согласно которым одной из основных особенностей, отличающих пылевую плазму от обычной (не содержащей заряженных пылевых частиц) плазмы, является возможность самоорганизации, приводящей к формированию макроскопических структур, таких, как плазменно-пылевые облака, капли, кристаллы и т.д. [7–10].

Рисунок 1 иллюстрирует условия в ионосфере Марса, важные с точки зрения физики мезосферных плазменно-пылевых облаков. Приведены, в частности, высотные профили температуры нейтрального газа, давления насыщенных паров CO_2 и давления паров CO_2 . Условия для роста (нуклеации) частиц выполняются в диапазоне высот около 92–112 км, где пары CO_2 пересыщены. Отметим, что именно в этом высотном диапазоне наблюдаются плазменно-пылевые мезосферные облака. Согласно результатам работы [5], в ионосфере Марса в случае конденсации углекислого газа частицы, находящиеся изначально в верхней области зоны кон-

¹⁾e-mail: popel@iki.rssi.ru

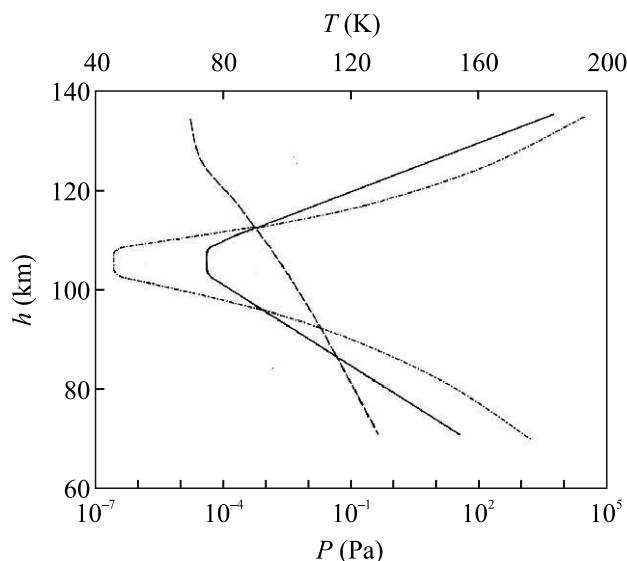


Рис. 1. Качественные высотные профили температуры газа ионосферы Марса (сплошная кривая), парциального давления паров CO_2 (штриховая кривая) и давления насыщенных паров CO_2 (штрих-пунктирная кривая). Пары CO_2 пересыщены в диапазоне высот 92–112 км

денсации (зоны, где пары CO_2 пересыщены), поглощают большую часть углекислого газа и начинают седиментировать. Вследствие неодинаковости начального расположения различные слои поглощают разное количество газа, что создает возможность для перемешивания слоев друг с другом и образования плазменно-пылевых облаков. В зоне конденсации пылевые частицы могут достигать размеров порядка 100 нм или больших размеров. Характерное время осаждения таких облаков в зоне конденсации составляет около нескольких минут. Ниже зоны конденсации сконденсировавшийся углекислый газ испаряется. В связи с этим, характерное время седиментации слоев через зону конденсации определяет характерное время существования плазменно-пылевых облаков аналогично серебристым облакам на Земле. Хотя в работе [5] и описаны процессы, приводящие к формированию плазменно-пылевых облаков в ионосфере Марса, некоторые существенные вопросы остаются открытыми. Прежде всего это касается высотного распределения частиц, составляющих плазменно-пылевые облака.

В работе [5] фактически использовалось описание, аналогичное описанию серебристых облаков в атмосфере Земли [4, 11]. Однако условия в ионосфере Марса существенным образом отличаются от земных. Поэтому важной проблемой является выявление особенностей описания плазменно-пылевых

структур в ионосфере Марса по сравнению с ситуацией на Земле.

Целью данной работы является уточнение модели, приведенной в работе [5] для описания плазменно-пылевых структур в ионосфере Марса, а также определение на основе уточненной модели высотного распределения частиц, составляющих марсианские мезосферные облака. Будет также проведено обсуждение результатов вычислений с точки зрения имеющихся наблюдений, а также процессов, которые могут повлиять на характерные размеры пылевых частиц, среди которых, как будет показано в данной работе, важную роль может играть неустойчивость Рэлея–Тейлора.

Рассматриваемая здесь область марсианской атмосферы с точки зрения термодинамики углекислого газа может быть разделена на три характерные части: среднюю часть с сильно пересыщенными парами углекислого газа и две периферические области ненасыщенных паров CO_2 (см. рис. 1). С точки зрения динамики пылевых частиц верхнюю область ненасыщенных паров можно назвать зоной седиментации с постоянной массой, среднюю – зоной конденсации, нижнюю – зоной сублимации. В области конденсации происходит рост пылевых зародышей ионосферы за счет десублимации паров CO_2 , вследствие чего оказывается возможным формирование слоистой структуры пылевого облака [5]. В зоне сублимации идет процесс испарения ранее сконденсировавшегося углекислого газа с поверхности пылевых частиц, приводящий в конечном итоге к исчезновению пылевого облака, время жизни которого, таким образом, определяется временем седиментации микрочастиц.

Атмосфера Марса имеет следующие особенности по сравнению с атмосферой Земли:

1) Основной газовой компонентой атмосферы Марса является углекислый газ (около 95 %) [12, 13], и именно частицы сухого льда (CO_2) составляют марсианские мезосферные облака. В свою очередь, пары воды, формирующие композитные ледяные частицы, составляющие серебристые облака в ионосфере Земли, несут лишь 0.5 % массовой доли газа атмосферы.

2) Если в условиях земной атмосферы плотность водяных паров ничтожна по сравнению с плотностью азота и кислорода, так что на протяжении всего времени седиментации к поверхности Земли главным тормозящим фактором является вязкое трение, то при оседании частиц в атмосфере Марса в зоне конденсации существенным оказывается фактор торможения пылевой частицы за счет налипания на нее

молекул конденсата (аналог реактивной силы), поскольку концентрации десублимирующего углекислого газа велики, а налипающие на поверхность микрочастиц молекулы CO_2 обладают ненулевой относительной скоростью. В то же время, сила вязкого трения обуславливается лишь 5 % газов, примесных к углекислому газу атмосферы Марса. В зоне же сублимации, весь газ марсианской атмосферы создает силу вязкого трения, поскольку относительная скорость испаряющихся молекул углекислого газа в этом случае равна нулю. Физически это означает, что оторвавшиеся от частицы молекулы испарившегося CO_2 тормозятся не за счет ускорения частицы, а за счет молекул атмосферы.

3) Как и в случае с Землей, атмосфера Марса не пропускает ультрафиолетовое излучение с достаточно малыми длинами волн. Так, коэффициенты пропускания марсианской атмосферы на высоте 100 км, рассчитанные на основе экспериментальных данных, полученных спектрометром SPICAM [14, 15], для длин волн, меньших 165 нм (что соответствует энергиям фотонов, превосходящим 7.5 эВ), приблизительно равны нулю, а для больших длин волн приблизительно равны единице. Работа выхода CO_2 в твердой фазе составляет приблизительно 11.5 эВ (см. рис. 3 работы [16]). Таким образом, можно считать, что на рассматриваемых высотах влияние фотоэффекта на зарядку частиц сухого льда (CO_2) несущественно, и, в виду большей подвижности электронов, чем ионов, заряды частиц сухого льда – отрицательные.

При построении модели плазменно-пылевых структур в мезосфере Марса описание эволюции функции распределения пылевых частиц $f_d(h, a, v, t)$ на высоте h проводится с помощью кинетического уравнения

$$\begin{aligned} \frac{\partial f_d}{\partial t} + \frac{\alpha_{\text{CO}_2} m_{\text{CO}_2} v_{\text{CO}_2}^{th} (n_{\text{CO}_2} - n_{\text{CO}_2}^s)}{4\rho_d} \frac{\partial f_d}{\partial a} + v \frac{\partial f_d}{\partial h} + \\ + \left(g - \frac{\pi \rho_s a^2 F_d (v + v_{\text{wind}})}{m_d} + \frac{u_{\text{rel}}}{m_d} \frac{dm_d}{dt} \right) \frac{\partial f_d}{\partial v} = 0. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь a – характерный линейный размер пылевой частицы, m_d – ее масса, m_{CO_2} – масса молекулы CO_2 , α_{CO_2} – коэффициент аккомодации молекул CO_2 при столкновении с пылевой частицей (обычно в сильно пересыщенных парах $\alpha_{\text{CO}_2} \sim 1$), $v_{\text{CO}_2}^{th}$ – тепловая скорость молекул CO_2 , c_s – местная скорость звука, ρ и ρ_d – плотности, соответственно, атмосферного газа и материала пылевой частицы, $n_{\text{CO}_2}^s$ и n_{CO_2} – концентрации, соответственно, насыщенных паров CO_2 над поверхностью пылевой частицы и CO_2 в мезосфере

Марса, v_{wind} и v – вертикальные скорости ветра и пылевой частицы соответственно, F_d – коэффициент порядка единицы, отражающий влияние формы частицы, g – ускорение свободного падения, u_{rel} – скорость налипающих/испаряющихся молекул относительно пылевой частицы. Второе слагаемое в левой части (1) описывает рост пылевых частиц в окружающем пересыщенном углекислом газе, четвертый член описывает седиментацию (подъем) пылевой частицы при взаимодействии с нейтралами (*neutral drag*). Слагаемое, содержащее dm_d/dt , является следствием учета реактивной силы.

Вычисление концентрации насыщенных паров CO_2 $n_{\text{CO}_2}^s$ над поверхностью частицы проводится стандартным образом [17]. Для этой цели вводится термодинамический потенциал системы Φ , состоящей из пылевой частицы, на поверхности которой происходит конденсация молекул CO_2 , и прилегающего к частице слоя газа указанных молекул. Поскольку пылевые частицы заряжены, и, кроме того, наряду с нейтральными молекулами окружены ионами и электронами, экранирующими поле пылевой частицы, необходимо учитывать электростатическое взаимодействие. Таким образом, производится учет зависимости $n_{\text{CO}_2}^s$ от размера a и заряда q_d пылевых частиц, который также является функцией размера a частицы. Термодинамический потенциал системы Φ имеет вид:

$$\Phi = m_d(\tilde{f}_d + P v_d) + m_g(\tilde{f}_g + P v_g) + \sigma S + \Psi_E, \quad (2)$$

где P – давление, $\tilde{f}_d(v_d, T)$ – удельная свободная энергия пылевой частицы, $\tilde{f}_g(v_g, T)$ – удельная свободная энергия газа, $v_{d(g)}$ – удельный объем пылевой частицы (газа), T – температура, m_g – масса газа, σ – коэффициент поверхностного натяжения вещества частицы, S – площадь поверхности пылевой частицы. Что касается электростатической энергии Ψ_E , то она складывается из энергии электрического поля в пределах пылевой частицы (индекс “in”), и в остальном пространстве (индекс “out”):

$$\Psi_E = \int_{\text{in}} \frac{\varepsilon E^2}{8\pi} dV + \int_{\text{out}} \frac{E^2}{8\pi} dV. \quad (3)$$

Здесь ε – диэлектрическая проницаемость вещества пылевой частицы, E – электрическое поле, V – объем.

Вычисление, основанное на анализе экстремумов выражения (2) в предположениях сферической симметрии пылевой частицы, постоянства ε , экранировки электрического поля пылевой частицы в соответствии с экранирующим потенциалом Юкавы,

характеризуемым длиной экранировки λ , позволя-
ет получить следующее трансцендентное уравнение,
связывающее значение давления P_S насыщенных па-
ров CO_2 над частицей размера a и обладающей по-
верхностным зарядом q_d и значение давления P_0 на-
сыщенных паров CO_2 над плоской поверхностью:

$$v_d(P_S - P_0) - \frac{N_A T}{\mu_g} \ln \left\{ \frac{P_S}{P_0} \right\} + \\ + \frac{2\sigma}{a} + \frac{q_d^2}{2a^2} \left(\frac{1}{\epsilon} - 1 + \nu(\lambda, a) \right) = 0, \quad (4)$$

где μ_g – молярная масса газа, N_A – число Авогадро,

$$\nu(\lambda, a) = \int_a^\infty \frac{a^2(\lambda + r)^2}{r^2} \cdot \frac{2a \exp \{2(a - r)/\lambda\}}{\lambda(\lambda + a)^3} dr. \quad (5)$$

Соответственно, концентрация $n_{\text{CO}_2}^s$ определяется из P_S с помощью хорошо известного соотношения для идеального газа: $n_{\text{CO}_2}^s = P_S/T$.

Динамика паров CO_2 описывается следующим уравнением для их концентрации n_{CO_2} :

$$\frac{\partial n_{\text{CO}_2}}{\partial t} + \frac{\partial \Gamma_{\text{CO}_2}}{\partial h} = \\ = P_{\text{CO}_2} - n_{\text{CO}_2} L_{\text{CO}_2} - \pi \alpha_{\text{CO}_2} v_{\text{CO}_2}^{th} n_{\text{CO}_2} \langle a^2 n_d \rangle, \quad (6)$$

где Γ_{CO_2} – вертикальный диффузионный поток па-
ров CO_2 , P_{CO_2} , L_{CO_2} – фотохимические источники и
стоки паров CO_2 в мезосфере Марса, последнее сла-
гаемое в правой части (6) описывает поглощение мо-
лекул CO_2 пылевыми частицами.

Кинетические уравнения (1), (6) выписаны в рам-
ках одномерного приближения (пространственная
координата – высота частицы h). Оправданность та-
кого приближения связана с тем, что вертикальный
размер мезосферных облаков (~ 1 км) значительно
меньше горизонтального (~ 10 – 100 км), а горизон-
тальные скорости переноса пылевых частиц меньше
или порядка вертикальной скорости переноса, поэто-
му полагаем, что на рассматриваемых временах (ми-
нуты, часы [5]) горизонтальным смещением частиц
можно пренебречь.

Система уравнений, описывающих влияние пы-
левых частиц на динамику заряженных частиц в
ионосфере Марса, записывается в локальном при-
ближении, использование которого оправдано, по-
скольку характерные времена зарядки пылевых час-
тиц в ионосфере значительно меньше характерных
времен их переноса. Система уравнений включает в
себя уравнения непрерывности [4, 18] для concentra-
ции электронов n_e , концентрации ионов n_i , а также
для заряда пылевой частицы Z_d^a радиуса a :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = q_e - \alpha_{\text{rec}} n_e n_i - L_{\text{dust}}^e, \quad (7)$$

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = q_e - \alpha_{\text{rec}} n_e n_i - L_{\text{dust}}^i, \quad (8)$$

$$\frac{\partial Z_d^a}{\partial t} = \nu_i - \nu_e. \quad (9)$$

Здесь L_{dust}^j ($j = e, i$) – слагаемые, описывающие ги-
бель электронов и ионов на пылевых частицах, при-
чем $L_{\text{dust}}^j = \int \nu_j dn_d$ (учитывается распределение dn_d
микрочастиц по размерам, $n_d = \int f_d dv da$), а слагае-
мые ν_e , ν_i описывают скорости зарядки, обусловлен-
ные столкновениями электронов и ионов с пылевыми
частицами.

Отметим, что в мезосфере коагуляцией пылевых
частиц при их столкновениях друг с другом мож-
но пренебречь. Характерное время τ_{coag} такого про-
цесса значительно превышает все остальные значи-
мые характерные времена: $\tau_{\text{coag}} \sim (n_d \nu \pi a^2)^{-1} \geq 10^6$
с. Кроме того, оказывается возможным пренебречь
броуновским движением частиц. Действительно, ха-
рактерная величина смещения частицы может быть
оценена по формуле $\langle x^2 \rangle = 2TB\tau = 2T\tau/(\pi \rho c_s a^2)$,
где $B = 1/(\pi \rho c_s a^2)$ – подвижность частицы в разре-
женной газовой среде. При значениях температуры
среды порядка $T = 100$ К, размера частицы $a = 20$
нм, времени седиментации $\tau = 300$ с, типичных для
марсианской ионосферы, диффузионный дрейф ока-
зывается равным около 10 м, что составляет менее
1 % от высоты падения.

Для вычисления микроскопических токов элек-
тронов и ионов на микрочастицы используется зон-
довая модель (*orbit-limited probe model*) [19, 20], в
рамках которой сечения взаимодействия ионов и
электронов с заряженной частицей определяются из
законов сохранения момента импульса и энергии. Ес-
ли пылевые частицы заряжены отрицательно, то зон-
довое приближение приводит к следующим выраже-
ниям для скоростей зарядки:

$$\nu_e \approx \pi a^2 \left(\frac{8T_e}{\pi m_e} \right)^{\frac{1}{2}} n_e \exp \left(\frac{eq_d^a}{aT_e} \right), \quad (10)$$

$$\nu_i \approx \pi a^2 \left(\frac{8T_i}{\pi m_i} \right)^{\frac{1}{2}} n_i \left(1 - \frac{eq_d^a}{aT_i} \right). \quad (11)$$

Здесь $q_d^a = Z_d^a e$ – заряд пылевой частицы радиуса
 a , $-e$ – заряд электрона, T_e , T_i – температуры соот-
ветственно электронов и ионов, m_α – масса частицы
сорта α .

Приведенные выше уравнения описывают само-
согласованную модель плазменно-пылевых структур

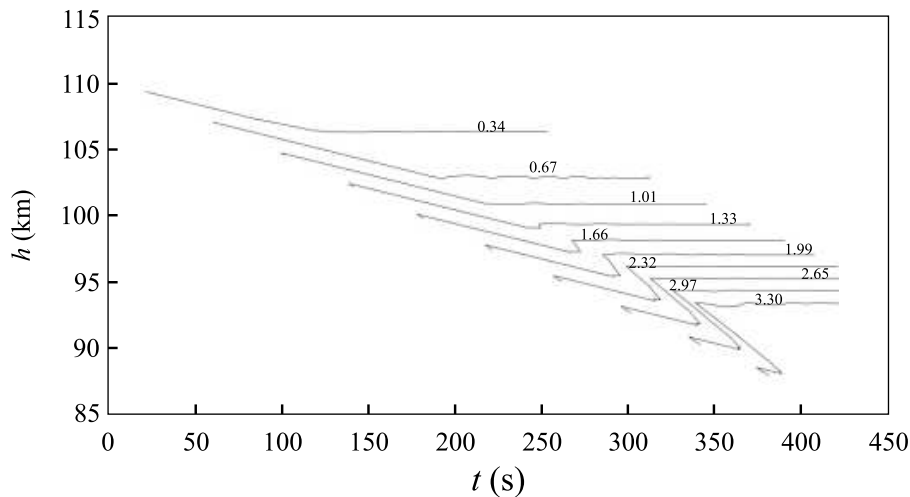


Рис. 2. Временная зависимость высотного распределения пылевых частиц в марсианских мезосферных облаках, формирующихся вследствие седиментации пылевого облака зародышей, первоначально составляющего модельный прямоугольный профиль концентраций на высотах 110–120 км. Начальный размер пылевых частиц облака равен 10 нм, их концентрация – 100 см^{-3} . Попадая в зону конденсации, пылевые частицы начинают увеличиваться в размерах за счет десублимации паров CO_2 . Цифры над кривыми обозначают размеры частиц в микрометрах

в ионосфере Марса. Система уравнений оказывается более простой, чем в случае Земли. Например, рассматриваются ионы только одного типа (CO_2^+), что обусловлено составом атмосферы Марса, в которой углекислый газ составляет около 95 % ее содержания. Кроме того, наши знания об атмосфере Марса менее подробные, чем об атмосфере Земли. Поэтому на данном этапе такое упрощенное описание представляется достаточным. При этом приведенная выше система уравнений описывает особенности, важные для ионосферы Марса, но не учитываемые при описании плазменно-пылевой системы в ионосфере Земли. Например, уравнение (1) содержит слагаемые, характеризующие торможение пылевой частицы за счет налипания на нее молекул конденсата (аналог реактивной силы).

Система уравнений (1)–(11) позволяет определить высотное распределение частиц, составляющих марсианские мезосферные облака. На рисунке 2 представлена иллюстрация такого распределения, формирующегося в результате седиментации пылевого облака зародышей, первоначально составляющего модельный прямоугольный профиль концентраций на высотах 110–120 км. Начальный размер пылевых частиц облака равен 10 нм. Попадая в зону конденсации (зону сильного пересыщения углекислого газа), пылевые частицы начинают увеличиваться в размерах за счет десублимации паров CO_2 . Верхние слои, находящиеся изначально на границе раздела зон с пересыщенными и ненасыщенными парами, эволюционируют медленнее слоев, изначально

но располагавшихся непосредственно в зоне конденсации. По наступлении определенного момента времени (для каждого слоя этот момент времени свой) все частицы достигают характерных размеров, по порядку равных $\sim 0.3\text{--}3 \text{ мкм}$. Характерное время седиментации пылевого облака, согласно расчетам, составляет около нескольких минут. Отметим, что наличие у частицы заряда $|Z_d^a| \sim 10\text{--}100e$ приводит к заметному возмущению заряженной компоненты ионосферной плазмы, поскольку суммарный заряд пылевых частиц становится сопоставимым с равновесными суммарными зарядами электронов и ионов.

Согласно расчетам в рамках приведенной здесь модели пылевые частицы марсианских мезосферных облаков значительно крупнее частиц, составляющих серебристые облака в атмосфере Земли. Это обусловлено тем, что концентрации углекислого газа в мезосфере Марса существенно превышают концентрации водяных паров в земной ионосфере. Однако вычисленные размеры пылевых частиц в мезосфере Марса ($\sim 0.3\text{--}3 \text{ мкм}$) превышают характерные наблюдаемые размеры ($\sim 100 \text{ нм}$) [1]. Данный факт может быть связан с процессами, не учтенными в расчетах на основе системы уравнений (1)–(11). Среди таких процессов важной представляется неустойчивость Рэлея–Тейлора [21], развитие которой должно происходить естественным образом. Действительно, такого рода неустойчивость может возникать на границе раздела в системе “газ + пыль”, находящейся в поле силы тяжести, в ситуации, когда верхнее полупространство занято пылью и газом, а нижнее –

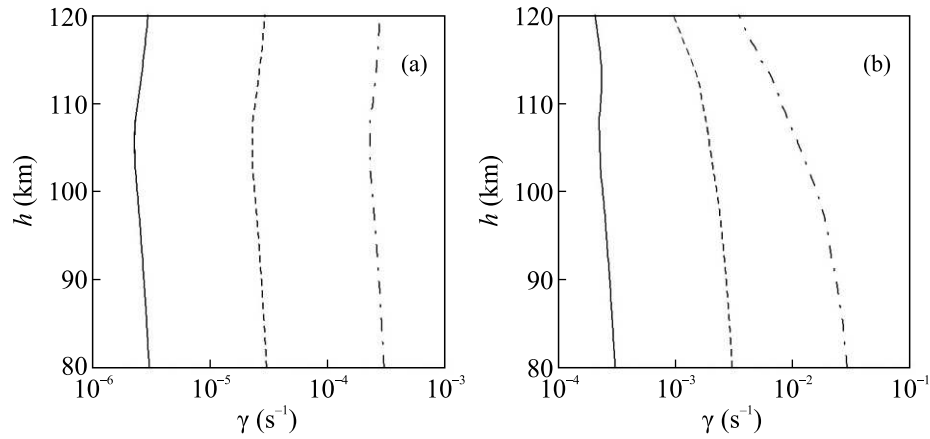


Рис. 3. Зависимости максимального инкремента развития неустойчивости Рэлея–Тейлора γ от высоты h над поверхностью Марса для концентраций пылевых частиц $n_d = 1 \text{ см}^{-3}$ (сплошная кривая), $n_d = 10 \text{ см}^{-3}$ (штриховая кривая), $n_d = 100 \text{ см}^{-3}$ (штрих-пунктирная кривая). Левая панель (a) соответствует размеру пылевых частиц $a = 100 \text{ нм}$, правая (b) – размеру пылевых частиц $a = 1 \text{ мкм}$

только газом [22]. В свою очередь, мезосферные облака имеют резкую нижнюю границу, причем концентрация пылевых частиц ниже этой границы пренебрежимо мала по сравнению с концентрацией пыли над ней. В ситуации, когда верхнее полупространство занято пылью и газом, а нижнее – только газом, и, кроме того, система газа и пыли не ограничена в горизонтальном направлении, развивается неустойчивость, характеризующаяся инкрементом $\tilde{\gamma}$, удовлетворяющим дисперсионному уравнению:

$$\tilde{\gamma}^3 + \tilde{\gamma}^2 \left[\alpha \left(1 + \frac{n_d m_d}{n_{\text{CO}_2} m_{\text{CO}_2}} \right) + \frac{|\mathbf{k}|g}{\alpha} \right] + \tilde{\gamma} |\mathbf{k}|g - \frac{n_d m_d |\mathbf{k}|g \alpha}{2 n_{\text{CO}_2} m_{\text{CO}_2}} = 0, \quad (12)$$

где $\mathbf{k}$ – волновой вектор, $\alpha = 2\sqrt{2/\pi} G n_{\text{CO}_2} T / \rho_d v_{\text{CO}_2}^{th} a$, G – коэффициент порядка единицы, определяемый особенностями взаимодействия нейтралов с поверхностью частицы. Так, например, $G = 1$ в случае полного поглощения или зеркального отражения нейтралов от поверхности частицы при столкновении, и $G = 1 + \pi/8$ в случае полной аккомодации [8]. Дисперсионное уравнение (12) отличается от дисперсионного уравнения, приведенного в работе [22] тем, что (12) получено для случая $\text{Kn} \gg 1$, соответствующего условиям ионосферы Марса, тогда как в работе [22] описана ситуация, соответствующая противоположному неравенству ($\text{Kn} \ll 1$).

Инкремент неустойчивости $\tilde{\gamma}$ при некотором значении $|\mathbf{k}|$ достигает максимума γ . На рисунке 3 приведены зависимости максимального инкремента γ от высоты h для различных концентраций пыли и размеров пылевых частиц. На рисунке 4 представ-

лены зависимости характерного времени развития неустойчивости Рэлея–Тейлора $\tau = \gamma^{-1}$ и времени седиментации пылевых частиц от их размеров для различных высот и концентраций пылевых частиц. В расчетах использовались следующие параметры атмосферы Марса: при $h = 80 \text{ км}$ $T = 130.4 \text{ К}$, $n_{\text{CO}_2} = 6.85 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$; при $h = 90 \text{ км}$ $T = 105.8 \text{ К}$, $n_{\text{CO}_2} = 2.05 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$; при $h = 100 \text{ км}$ $T = 81.2 \text{ К}$, $n_{\text{CO}_2} = 5.48 \times 10^{12} \text{ см}^{-3}$; при $h = 110 \text{ км}$ $T = 82.85 \text{ К}$, $n_{\text{CO}_2} = 6.85 \times 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Из рисунка 4 видно, что время седиментации не превосходит величину $\tau = \gamma^{-1}$ лишь при достаточно малых размерах пылевых частиц. Так, например, при $n_d \gtrsim 100 \text{ см}^{-3}$ это происходит при $a \lesssim 0.5 \text{ мкм}$. Поскольку развитие неустойчивости Рэлея–Тейлора может привести к разрушению плазменно-пылевой структуры, данный факт указывает на возможность существования плазменно-пылевых облаков лишь при малых значениях a (соответствующих субмикронным размерам), что соответствует имеющимся наблюдениям [1]. Кроме того, пылевые частицы меньших размеров сосредоточены на больших высотах (см. рис. 2). Таким образом, имеется ограничение (сверху) на толщину плазменно-пылевого облака, обусловленное возможностью развития неустойчивости Рэлея–Тейлора.

Итак, приведены уравнения модели, описывающей самосогласованным образом плазменно-пылевые структуры в ионосфере Марса. Приведенная система уравнений учитывает особенности, важные для ионосферы Марса, но не включаемые в рассмотрение при описании плазменно-пылевой системы в ионосфере Земли. Например, она учитывает эффекты торможения пылевых частиц за счет

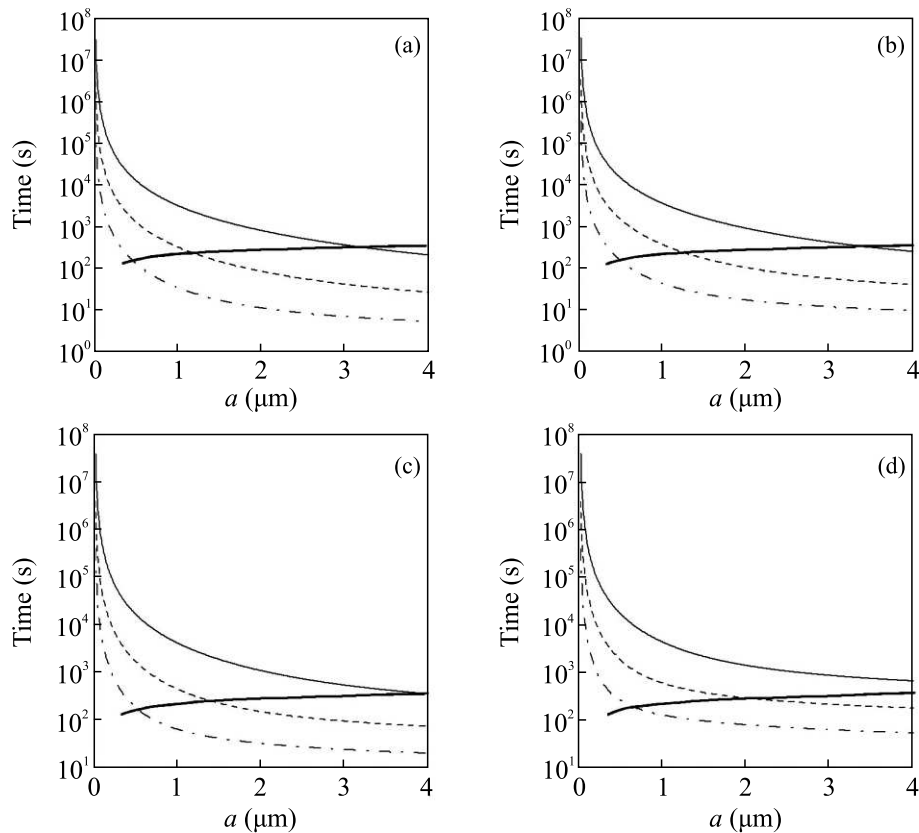


Рис. 4. Зависимости характерного времени развития неустойчивости Рэлея–Тейлора и времени седиментации пылевых частиц от их размеров. Представлены результаты вычислений для высот (a) – 80 км, (b) – 90 км, (c) – 100 км, (d) – 110 км. Тонкие сплошные кривые соответствуют концентрациям пылевых частиц $n_d = 1 \text{ см}^{-3}$, штриховые – $n_d = 10 \text{ см}^{-3}$, штрих-пунктирные – $n_d = 100 \text{ см}^{-3}$. Зависимости времени седиментации пылевых частиц представлены жирными сплошными линиями

налипания на них молекул конденсата (аналог реактивной силы). На основе приведенных уравнений получено высотное распределение пылевых частиц, составляющих марсианские мезосферные облака. Оказывается, что важным фактором, влияющим на формирование плазменно-пылевых облаков, который должен быть учтен, является неустойчивость Рэлея–Тейлора, приводящая к тому, что плазменно-пылевые облака могут существовать лишь при достаточно малых значениях размеров составляющих их пылевых частиц, а также к тому, что имеется ограничение (сверху) на толщину плазменно-пылевого облака.

1. F. Montmessin, J.-L. Bertaux, E. Quémerais, O. Korabiev, P. Rannou, F. Forget, S. Perrier, D. Fussen, S. Lebonnois, A. Réberac, E. Dimarellis, *Icarus* **183**, 403 (2006).
2. https://www.newsru.com/hitech/30may2021/mars_clouds.html.
3. U. von Zahn, G. Baumgarten, U. Berger, J. Fiedler, and P. Hartogh, *Atmos. Chem. Phys.* **4**, 2449 (2004).

4. Б. А. Клумов, Г. Е. Морфилл, С. И. Попель, *ЖЭТФ* **127**, 171 (2005).
5. А. Ю. Дубинский, Ю. С. Резниченко, С. И. Попель, *Физика плазмы* **45**, 913 (2019).
6. Yu. S. Reznichenko, A. Yu. Dubinskii, and S. I. Popel, *J. Phys.: Conf. Ser.* **1556**, 012072 (2020).
7. В. Н. Цытович, *УФН* **167**, 57 (1997).
8. В. Е. Фортов, А. Г. Храпак, С. А. Храпак, В. И. Молотков, О. Ф. Петров, *УФН* **174**, 495 (2004).
9. V. N. Tsytovich, G. E. Morfill, S. V. Vladimirov, and H. M. Thomas, *Elementary Physics of Complex Plasmas*, Springer, Berlin (2008).
10. В. Е. Фортов, Ю. М. Батурин, Г. О. Морфилл, О. Ф. Петров, *Плазменный кристалл, Космические эксперименты*, М.: Физматлит (2015).
11. А. Ю. Дубинский, С. И. Попель, *Письма в ЖЭТФ* **96**, 22 (2012).
12. F. Forget, F. Montmessin, J. L. Bertaux, F. Gonzalez-Galindo, S. Lebonnois, E. Quémerais, A. Réberac, E. Dimarellis, and M. A. Lopez-Valverde, *J. Geophys. Res.* **114**, E01004 (2009).
13. J. L. Fox, M. Benna, P. R. Mahaffy, B. M. Jakosky, *Geophys. Res. Lett.* **42**, 8977 (2015).

14. J.-L. Bertaux, O. Korablev, S. Perrier, E. Quémerais, F. Montmessin, F. Leblanc, S. Lebonnois, P. Rannou, F. Lefèvre, F. Forget, A. Fedorova, E. Dimarellis, A. Reberac, D. Fonteyn, J. Y. Chaufray, and S. Guibert, *J. Geophys. Res.* **111**, E10S90 (2006).
15. J.-L. Bertaux, D. Fonteyn, O. Korablev et al. (Collaboration), *Eur. Space Agency Spec. Publ.*, ESA-SP **1240**, 95 (2004).
16. M. J. Campbell, J. Liesegang, J. D. Riley, and J. G. Jenkin, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **15**, 2549 (1982).
17. М. А. Леонтович, *Введение в термодинамику*, Гос. изд-во технико-теоретической литературы, М., Л. (1952), с. 158.
18. В. А. Клумов, S. I. Popel, and R. Bingham, *Письма в ЖЭТФ* **72**, 524 (2000).
19. F. F. Chen, in *Plasma Diagnostic Techniques*, ed. by R. H. Huddleston and S. L. Leonard, Academic, N.Y. (1965), ch. 4.
20. M. S. Barnes, J. H. Keller, J. C. Forster, J. A. O'Neill, and D. K. Coultas, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 313 (1992).
21. C. Völtz, W. Pesch, and I. Rehberg, *Phys. Rev. E.* **65**, 011404 (2001).
22. Р. С. Савельев, Н. Н. Розанов, Г. Б. Сочилин, С. А. Чивилихин, *Научно-технический вестник Санкт-Петербургского государственного университета информационных технологий, механики и оптики* **3(73)**, 18 (2011).

Взаимодействие пучков тяжелых ионов с электронами плазмы: роль процессов многоэлектронной ионизации

Г. И. Андреев⁺, В. Л. Бычков⁺, В. П. Шевелько^{*1)}

⁺ Физический факультет, кафедра физической электроники,
Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

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

Поступила в редакцию 16 февраля 2023 г.

После переработки 19 февраля 2023 г.

Принята к публикации 19 февраля 2023 г.

Рассмотрены процессы многократной ионизации электронами ионов, находящихся в плазме, и ионов в пучке, проходящего сквозь плазму. На основе экспериментальных данных и теоретических расчетов сечений n -электронной ионизации σ_n исследован вклад скоростей многоэлектронной ионизации $\langle v\sigma_n(v) \rangle$ в полную скорость ионизации как функции электронной температуры плазмы T . Показано, что в случае прохождения ионных пучков сквозь плазму, суммарный вклад скоростей многоэлектронной ионизации в полную скорость определяется соотношением между скоростью ионного пучка v_P и термальной скоростью электронов в плазме v_{th} . Численные расчеты скоростей многоэлектронной ионизации $\langle v\sigma_n(v) \rangle$ выполнены для ионов W^+ при температурах плазмы $T = 1$ эВ–10 кэВ и скоростях ионного пучка $v_P = 0$ –20 а.е., где атомная единица скорости 1 а.е. = $2.2 \cdot 10^8$ см/с.

DOI: 10.31857/S123456782306006X, EDN: qsmqxx

1. Введение. Процессы одно- и многоэлектронной (МЭ) ионизации атомов и ионов электронным ударом

$$X^{q+} + e^- \rightarrow X^{(q+n)+} + (n+1)e^-, \quad n \geq 1,$$

где q – заряд иона, n – число выбитых электронов, играют важную роль в кинетике лабораторной и астрофизической плазмы, эволюции зарядового состояния при взаимодействии атомов и ионов с электронным пучком, динамике пучков тяжелых ионов, проходящих сквозь плазменные мишени и других областях [1–3]. Например, при формировании ионизационного равновесия в нестационарной высокотемпературной (лазерной) плазме МЭ процессы ($n \geq 2$) ответственны за высокотемпературный “хвост” ионизационного распределения, так как многозарядные ионы не успевают образоваться за счет обычной одноэлектронной ступенчатой ионизации. Вклад МЭ ионизации в полное сечение может достигать 30–50 % даже в случае ионизации атомов и ионов при релятивистских энергиях электронов (см. [1]). Особенно существенна МЭ ионизация тяжелых многоэлектронных ионов, имеющих большое число электронных оболочек с близкими значениями энергий связи, поэтому МЭ процессы необходимо учитывать наряду с одноэлектронной ионизацией.

При взаимодействии пучка ионов с атомами и молекулами остаточного газа ускорителя или с плазменной мишенью, как правило, учитываются только процессы одноэлектронной ионизации налетающих ионов, например, для определения вакуумных условий и времен жизни пучков однозарядных ионов [4] или в методе НИБР (Heavy Ion Beam Probe) диагностики плазмы с помощью тяжелых малозарядных ионов типа Cs^+ , Tl^+ , Au^+ [5–8]. В методе НИБР регистрируемый ток вторичных ионов пучка существенно зависит от электронной плотности плазмы и скоростей ионизации $\langle v\sigma(v) \rangle$ электронным ударом:

$$\langle v\sigma(v) \rangle = \int_0^\infty v\sigma(v)f(v,T)dv, \quad (1)$$

где $f(v,T)$ – функция распределения по скоростям электронов в плазме, T – электронная температура.

В случае максвелловского распределения функция $f(v,T)$ имеет вид:

$$f(v,T) = 4\pi v^2 \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{mv^2}{2kT} \right), \quad (2)$$

где m – масса электрона, k – постоянная Больцмана.

Если плазму пересекает пучок ионов со скоростью v_P , то в качестве функции распределения

¹⁾ e-mail: shevelkovp@lebedev.ru

используется так называемая “сдвинутая” функция Максвелла, зависящая от скорости пучка v_P [9]:

$$F(v, v_P, T) = \left(\frac{2m}{\pi kT} \right)^{1/2} \frac{v}{v_P} \times \\ \times \exp \left(-\frac{m(v^2 + v_P^2)}{2kT} \right) \sinh \left(\frac{mvv_P}{kT} \right) = \\ = \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{1/2} \frac{v}{v_P} \left[\exp \left(-\frac{m}{2kT} (v - v_P)^2 \right) - \right. \\ \left. - \exp \left(-\frac{m}{2kT} (v + v_P)^2 \right) \right], \quad (3)$$

где $v = |\mathbf{v}_P - \mathbf{v}_e|$ – скорость ионов в пучке относительно скорости электронов в плазме, $\sinh(x)$ – гиперболический синус. С ростом скорости v_P ширина функции (3) уменьшается, а максимум сдвигается в сторону больших значений v_P , поэтому функцию (3) называют “сдвинутой”. Функции распределения (2) и (3) нормированы на единицу:

$$\int_0^\infty f(v, T) dV = \int_0^\infty F(v, v_P, T) dv = 1. \quad (4)$$

Метод зондирования НВР обычно используется для диагностики плазмы в диапазоне температур $T = 1 \text{ эВ} - 5 \text{ кэВ}$, а энергия налетающего пучка изменяется в пределах от нескольких сотен кэВ до нескольких МэВ. Учет одно- и двух-электронной скоростей ионизации как функции температуры плазмы выполнен в работах [10, 11] для нескольких отдельных скоростей v_P зондирующих ионов Cs^+ и Tl^+ с использованием сдвинутой функции Максвелла.

Настоящая работа посвящена исследованию влияния процессов МЭ ионизации тяжелых ионов электронами плазмы на полные скорости ионизации как функции температуры T и скорости налетающих ионов v_P . Численные расчеты величин $\langle v\sigma(v) \rangle$ выполнены для ионов W^+ (заряд ядра $Z = 74$) для температур плазмы $T = 1 \text{ эВ} - 10 \text{ кэВ}$ и скоростей ионов в пучке $v_P = 0 - 20 \text{ а.е.}$ Случай $v_P = 0$ соответствует МЭ ионизации ионов, находящихся внутри плазмы.

2. Скорости МЭ ионизации ионов в плазме.

Аналитические формулы. Для определения скоростей МЭ ионизации необходимо знание соответствующих сечений в широком диапазоне энергий электронов E . В работе [12] на основе экспериментальных данных и бета-борновской зависимости сечений от энергии получена полуэмпирическая формула для сечений ионизации $n \geq 2$ электронов в виде:

$$\sigma_n = 10^{-18} [\text{см}^2] \frac{a(n) N^{b(n)}}{(I_n/Ry)^2} \left(\frac{u}{u+1} \right)^c \frac{\ln(u+1)}{u+1},$$

$$u = E/I_n - 1, \quad n \geq 2, \quad (5)$$

где u и n – приведенная энергия и число выбитых электронов соответственно, N – полное число электронов мишени, I_n – пороговая энергия ионизации n электронов, $1 \text{ Ry} = 13.606 \text{ эВ}$. Величины I_n определяются по формуле

$$I_n = \sum_{q'=q}^{q+n-1} I_{q', q'+1}, \quad (6)$$

где $I_{q, q+1}$ – потенциалы однократной ионизации иона X^{q+} .

Параметры аппроксимаций $a(n)$ и $b(n)$ зависят от числа выбитых электронов n , а показатель $c = 1.0$ для нейтральных атомов и $c = 0.75$ для положительных и отрицательных ионов. Параметры $a(n)$ и $b(n)$ для ионизации $2 \leq n \leq 10$ электронов приведены в табл. 1.

Таблица 1. Параметры аппроксимации $a(n)$ и $b(n)$ для ионизации $2 \leq n \leq 10$ электронов атомов и ионов [12]

n	$a(n)$	$b(n)$	n	$a(n)$	$b(n)$
2	14.0	1.08	6	0.49	1.96
3	6.30	1.20	7	0.021	2.00
4	0.50	1.73	8	0.0096	2.00
5	0.14	1.85	9	0.0049	2.00
			10	0.0027	2.00

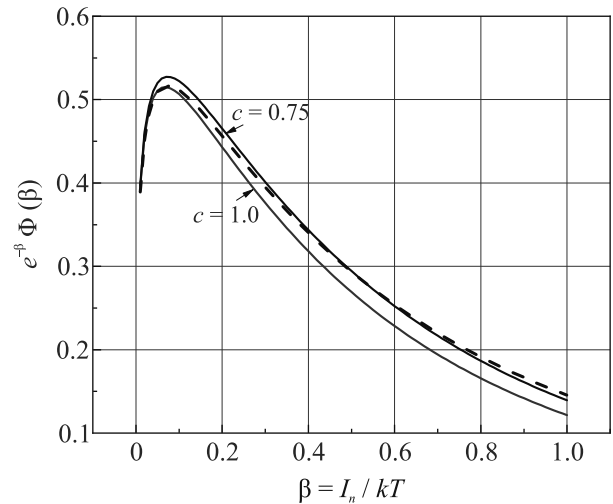


Рис. 1. График функции $e^{-\beta} \Phi(\beta)$ в зависимости от параметра $\beta = I_n / kT$: $c = 1$ – для атомов, $c = 0.75$ – для ионов, штриховая кривая – универсальная функция (11)

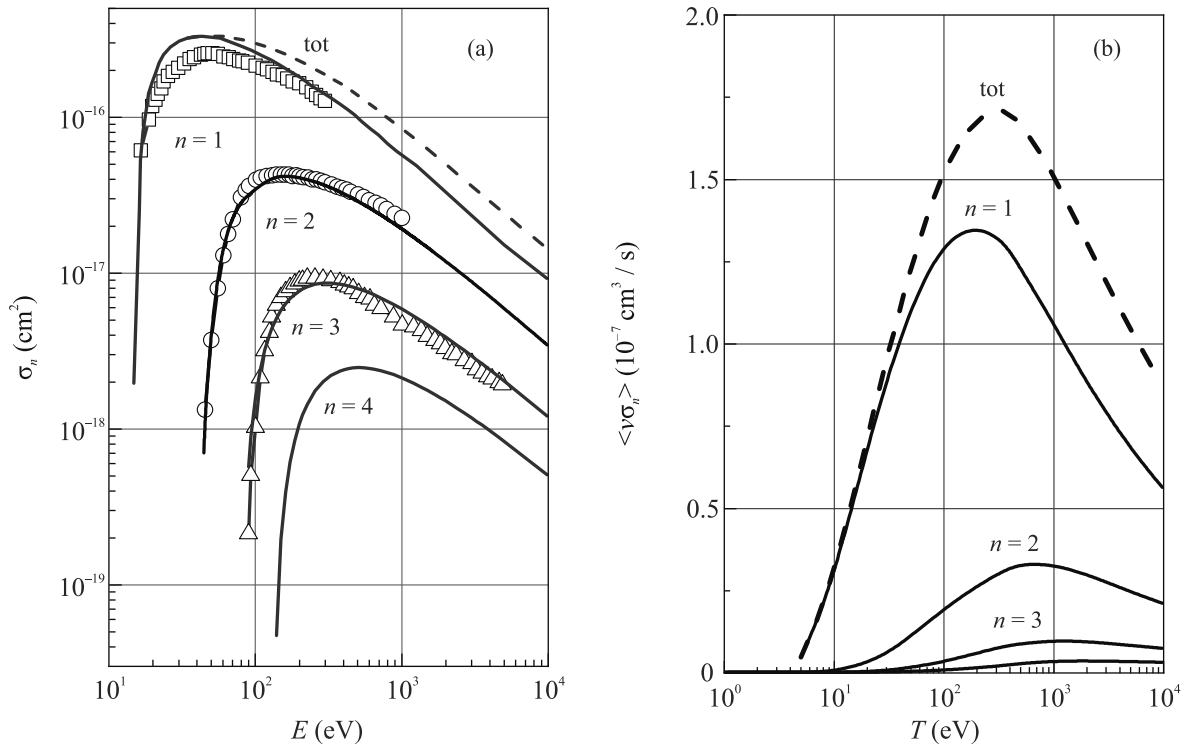


Рис. 2. Сечения σ_n и скорости $\langle v\sigma_n \rangle$ n -электронной ионизации, $n = 1-4$, ионов W^+ . (a) – Сечения ионизации: символы – эксперимент [13, 14], сплошные кривые – расчет: $n = 1$, программа АТОМ [15], $n \geq 2$, формула (8), пунктир tot – полное (суммарное) сечение. (b) – соответствующие скорости ионизации с максвелловским распределением (2) как функции температуры электронов, tot – полная скорость ионизации $\langle v\sigma \rangle_{\text{tot}}$

Сечение (5) максимально при $E_{\text{max}} \approx 4.2I_n$:

$$\sigma_{\text{max}} \approx 2.7 \times 10^{-19} [\text{cm}^2] \frac{a(n)N^{b(n)}}{(I_n/Ry)^2}, \quad E_{\text{max}} \approx 4.2I_n. \quad (7)$$

С сечением (5) и максвелловской функцией распределения (2) скорость МЭ ионизации атомов и ионов, находящихся внутри плазмы, имеет вид:

$$\langle v\sigma_n \rangle = 2.5 \cdot 10^{-10} [\text{cm}^3/\text{c}] a(n) N^{b(n)} \left(\frac{Ry}{I_n} \right)^{3/2} e^{-\beta} \Phi(\beta), \quad n \geq 2, \quad (8)$$

$$\Phi(\beta) = \int_0^\infty \beta^{3/2} \left(\frac{u}{u+1} \right)^c e^{-\beta u} \ln(u+1) du, \quad \beta = \frac{I_n}{kT}. \quad (9)$$

Скорость МЭ ионизации (8) максимальна при $\beta \approx 0.07$:

$$\langle v\sigma_n \rangle_{\text{max}} \approx 1.24 \times 10^{-10} [\text{cm}^3/\text{c}] a(n) N^{b(n)} \left(\frac{Ry}{I_n} \right)^{3/2}, \quad \beta \approx 0.07. \quad (10)$$

На рисунке 1 приведены графики функций $e^{-\beta} \Phi(\beta)$ для атомов ($c = 1$) и ионов ($c = 0.75$) в зависимости от параметра β . Поскольку отличие функций для

атомов и ионов невелико (10–15 %), их можно представить в виде одной приближенной функции

$$e^{-\beta} \Phi(\beta) \approx \beta^{1/2} \frac{\ln(1 + 0.5/\beta)}{1 + 0.25\beta}, \quad \beta = \frac{I_n}{kT}, \quad (11)$$

которая представлена на рисунке 1 пунктирной кривой. Формулы (8)–(11) могут быть использованы для решения задач кинетики плазмы и для оценки вклада процессов многократной ионизации атомов и ионов электронами плазмы.

На рисунке 2а представлены сечения n -электронной ионизации, $n = 1-4$, ионов W^+ (заряд ядра $Z = 74$, число электронов $N = 73$) как функции энергии электронов. Экспериментальные сечения σ_n [13, 14] хорошо согласуются с расчетами, выполненными в настоящей работе для $n = 1$ по программе АТОМ [15] в кулон-борновском приближении с обменом, и для $n = 2-4$ по формуле (5). Энергии связи электронных оболочек ионов W^+ взяты из работы [16], которые дают пороговые энергии ионизации (в эВ): $I_1 = 16.4$, $I_2 = 42.4$, $I_3 = 80.6$ и $I_4 = 132.2$, соответственно. Скорости ионизации $\langle v\sigma_n \rangle$, вычисленные с максвелловским распределением (2), приведены на рис. 2б.

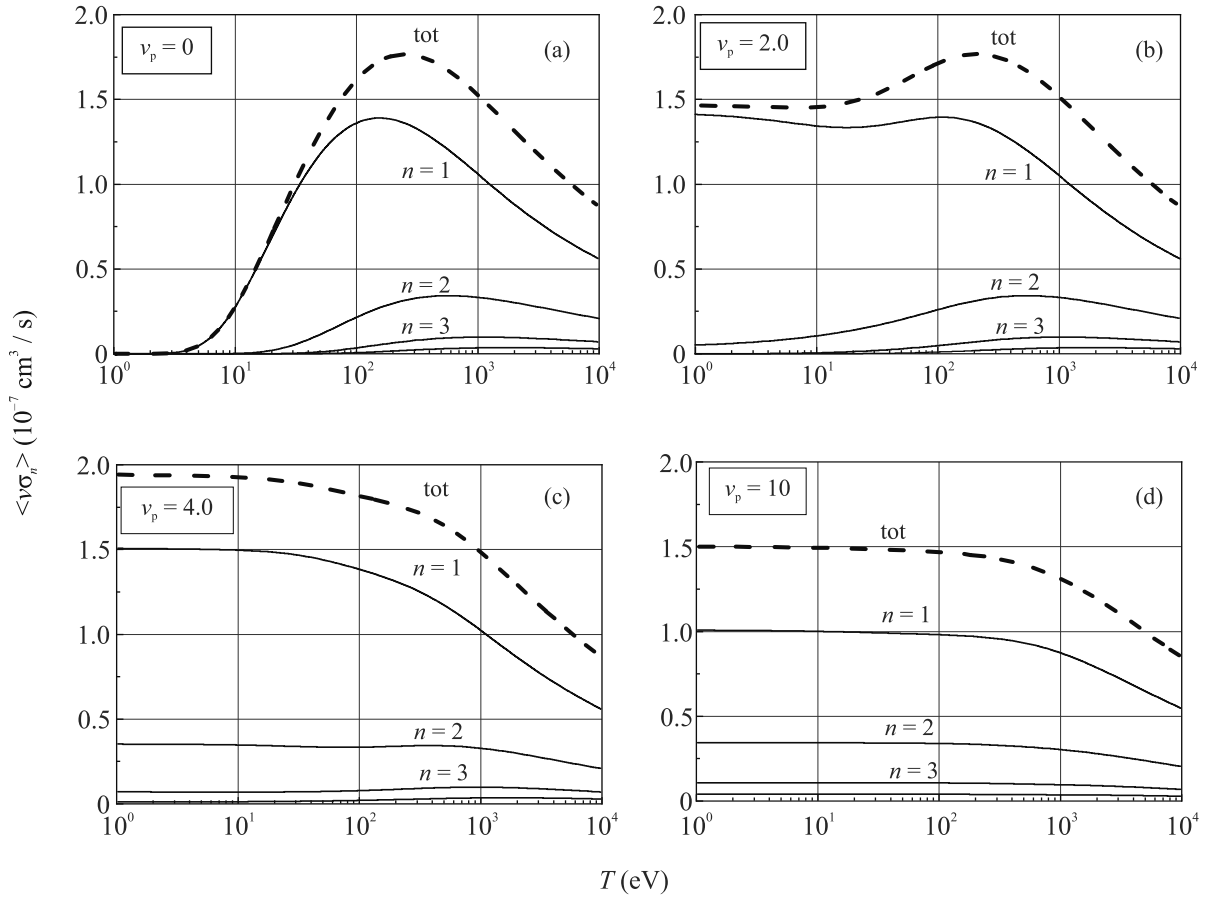


Рис. 3. Парциальные $\langle v\sigma_n \rangle$ и полные $\langle v\sigma \rangle_{\text{tot}}$ скорости МЭ ионизации ионов W^+ , $n = 1-4$, как функции электронной температуры T при различных скоростях ионного пучка v_p (в а.е.), формулы (1), (3); tot – полная (суммарная) скорость ионизации $\langle v\sigma \rangle_{\text{tot}}$

3. Скорости МЭ ионизации ионов в пучке, проходящем сквозь плазму. В этом случае зависимость скоростей ионизации $\langle v\sigma_n \rangle$ от температуры T определяется соотношением между скоростью ионов v_p и термальной скоростью электронов в плазме v_{th} :

$$v_{th} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \approx 1.13 \sqrt{\frac{2kT}{m}}. \quad (12)$$

При малых скоростях ионов $v_p \rightarrow 0$ ($v_p \ll v_{th}$), т.е. при больших температурах

$$T [\text{эВ}] \gg 10(v_p [\text{а.е.}])^2, \quad (13)$$

сдвинутая функция (3) переходит в “обычную” функцию Максвелла, и скорость ионизации $\langle v\sigma_n \rangle$ определяется формулами (1) и (2). В противоположном случае $v_p \gg v_{th}$, т.е. в области относительно малых температур

$$T [\text{эВ}] \ll 10(v_p [\text{а.е.}])^2, \quad (14)$$

функция $F(v, v_p, T)$ переходит в дельта-функцию $F(v, v_p, T) = \delta(v - v_p)$. При этом величины $\langle v\sigma_n \rangle$

практически не зависят от температуры плазмы в области (14) и определяются произведением скорости пучка v_p на эффективное сечение ионизации при этой скорости [17]:

$$\langle v\sigma(v) \rangle \approx v_p \cdot \sigma(v_p), \quad v \approx v_p. \quad (15)$$

При $v_p \sim v_{th}$ скорость ионизации $\langle v\sigma_n \rangle$ определяется общей формулой (1) со сдвинутой функцией Максвелла (3).

На рисунке 3 представлены результаты расчетов скоростей ионизации $\langle v\sigma_n \rangle$, $n = 1-4$, ионов W^+ в пучке, проходящем сквозь плазму с температурой T , при скоростях ионного пучка $v_p = 0-10$ а.е. При $v_p = 0$ (рис. 3а) парциальные ($n = 1-4$), а следовательно, и полные скорости ионизации совпадают с максвелловскими скоростями на рис. 2b при всех значениях температуры плазмы T .

С ростом скорости иона v_p , скорости ионизации $\langle v\sigma_n \rangle$ становятся квази-постоянными величинами, определяемыми уравнением (15), слабо зависящими от температуры плазмы при условии (14). На-

пример, из рис. 3с следует, что при скорости ионов $v_P = 4$ а.е. величины $\langle v\sigma_n \rangle$ квазипостоянны при температурах $T \ll 160$ эВ, а при высоких температурах $T \gg 160$ эВ убывают как максвелловские величины, приведенные на рис. 3а. Из уравнения (15) следует, что в области энергий (14) скорость электрона примерно равна скорости иона $v \approx v_P = 4$ а.е., что соответствует энергии электрона $E \approx Ry(v_P [\text{а.е.}])^2 \approx 218$ эВ. Из рисунка 2а при энергии электрона $E = 218$ эВ сечения МЭ ионизации для $n = 1-4$ равны (в ед. 10^{-16} см²): 1.72, 0.40, 0.08 и 0.013, и соответственно произведения $\langle v\sigma_n \rangle$ (в ед. 10^{-7} см³/с): 1.51, 0.35, 0.071, 0.012, что соответствует величинам $\langle v\sigma_n \rangle$ на рис. 3с.

На практике представляет интерес величина вклада МЭ ионизации в полную скорость процесса, т.е. отношение

$$R = \Sigma_{n \geq 2} \langle v\sigma_n \rangle / \langle v\sigma \rangle_{\text{tot}}. \quad (16)$$

Значения R для ионов W^+ при различных скоростях $v_P = 0-20$ а.е. приведены на рис. 4 как функции

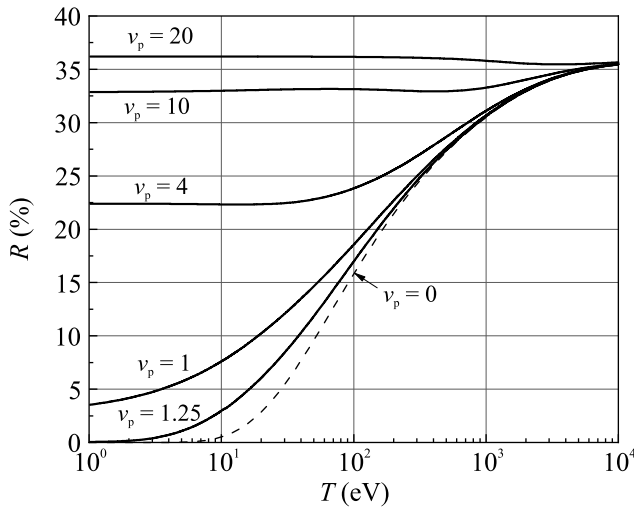


Рис. 4. Вклад МЭ ионизации R (%) как функции электронной температуры плазмы T и скорости v_P пучка ионов W^+ , проходящего сквозь плазму, формула (16). Сплошные кривые – расчет для $v_P = 1.25-20$ а.е., пунктирная кривая $v_P = 0$ соответствует вкладу МЭ ионизации при максвелловском распределении электронов (2)

электронной температуры плазмы T . Случай $v_P = 0$ соответствует максвелловской зависимости R от температуры T (рис. 2б), а кривые с $v_P = 0.1$ и $v_P = 0$ в масштабе рисунка практически совпадают. С ростом скорости ионов v_P вклад МЭ процессов увеличивается и при $v_P = 20$ а.е. достигает предельного зна-

чения, близкого к максвелловскому $R_{\text{max}} \approx 0.36$ при температуре $T > 10$ кэВ.

При температурах $T_e [\text{эВ}] \ll 10 (v_P [\text{а.е.}])^2$ вклад МЭ ионизации согласно (15) равен

$$R = \Sigma_{n \geq 2} \langle v_P \sigma_n(v_P) \rangle / \langle v_P \sigma(v_P) \rangle_{\text{tot}} \approx \Sigma_{n \geq 2} \sigma_n(v_P) / \sigma_{\text{tot}}(v_P), \quad (17)$$

т.е. отношению суммы парциальных сечений с $n \geq 2$ к полному сечению ионизации σ_{tot} при скорости электрона, равной скорости пучка $v = v_P$ или энергии электрона $E_e \approx v_P^2 Ry [\text{эВ}]$. При высоких температурах вклад МЭ ионизации возрастает до предельного значения

$$R_{\text{max}}(v_P) \approx \Sigma_{n \geq 2} \sigma_n(v_P \rightarrow \infty) / \sigma_{\text{tot}}(v_P \rightarrow \infty), \quad (18)$$

определяемого асимптотикой сечений МЭ ионизации в асимптотической области энергий электронов. Из (18) следует, что

$$\sigma_{\text{tot}} = \frac{\sigma_1}{1 - R_{\text{max}}}, \quad v_P \rightarrow \infty, \quad (19)$$

где σ_1 – сечение одноэлектронной ионизации. Если вклад МЭ ионизации мал, $R_{\text{max}} \rightarrow 0$, то полное сечение ионизации $\sigma_{\text{tot}} \approx \sigma_1$, однако с ростом R_{max} отличие σ_{tot} от σ_1 становится существенным, $\sigma_{\text{tot}} \gg \sigma_1$, и использование только одноэлектронных сечений σ_1 может привести к значительной погрешности расчетов.

Величина R_{max} зависит от атомной структуры налетающего иона. Для ионов W^+ получено значение $R_{\text{max}} \approx 36\%$, для ионов W^{2+} оценка по экспериментальным данным сечений МЭ ионизации [14] дает $R_{\text{max}} \approx 38\%$, для однозарядных ионов O^+ , Rb^+ и Cs^+ из экспериментальных данных [18] следует, что $R_{\text{max}} \approx 2.0, 20$ и 30% , соответственно. В настоящее время максимальное значение вклада МЭ ионизации в полное сечение $R_{\text{max}} \approx 50\%$ (т.е. $\sigma_{\text{tot}} \approx 2\sigma_1$) достигнуто в эксперименте [19] для МЭ ионизации нейтральных атомов магния, когда сечения одно- и двух-электронной ионизации в асимптотической области энергий практически равны $\sigma_1 \approx \sigma_2$.

4. Заключение. Исследовано влияние многоэлектронной ионизации на полные скорости ионизации ионов, находящихся внутри плазмы и при прохождении ионного пучка сквозь плазму как функции температуры плазмы T и скорости налетающих ионов v_P . Для ионов в плазме ($v_P = 0$) получена универсальная формула для величин $\langle v\sigma_n(v) \rangle$ при $n \geq 2$, которая может быть использована для решения ряда задач кинетики плазмы. В случае прохождения ионного пучка сквозь плазму зависимость скоростей

ионизации $\langle v\sigma_n(v) \rangle$ от температуры плазмы T и скорости ионного пучка v_P определяется соотношением между величиной v_P и термальной скоростью электронов v_{th} . Показано, что вклад многоэлектронных процессов в полную скорость ионизации растет с ростом скорости ионов v_P , а максимальный вклад равен отношению сечений ионизации $\Sigma_{n \geq 2} \sigma_n(v) / \sigma_{tot}(v)$ в асимптотической области энергий электронов.

Численные расчеты скоростей ионизации величин выполнены для ионов W^+ с зарядом ядра $Z = 74$, однако используемые методы и подходы могут быть применены и для ионов с меньшим зарядом ядра (K^+ , Rb^+ , Cs^+ и т.д.), также используемых в пучковой диагностике современных плазменных установок.

Авторы признательны А.В. Мельникову (НИИ Курчатовский институт) за полезные замечания.

1. V. Shevelko and H. Tawara, *Atomic Multielectron Processes*, Springer, Berlin (1998).
2. M. Hahn, A. Müller, and D.W. Savin, *Astrophys. J.* **850**, 122 (2017).
3. V.P. Shevelko, S.N. Andreev, and I.Yu. Tolstikhina, *Nucl. Instrum. Methods B* **502**, 37 (2021).
4. А.В. Бутенко, А.Р. Галимов, И.Н. Мешков, Е.М. Сыресин, И.Ю. Толстикова, А.В. Тузиков, А.В. Филиппов, Г.Г. Ходжибагиян, В.П. Шевелько, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 784 (2021).
5. A.V. Melnikov, *Electric Potential in Toroidal Plasmas*, Springer, Nature Switzerland (2018).
6. A.V. Melnikov, I.I. Krupnik, L.G. Eliseev et al. (Collaboration), T-10 Team, and TJ-II Team, *Nucl. Fusion* **57**, 072004 (2017).
7. 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).
8. Г.А. Саранчаа, Л.Г. Елисеев, А.В. Мельников, Ф.О. Хабанов, Н.К. Харчев, *Письма в ЖЭТФ* **116**, 96 (2022).
9. T. Peter and J. Meyer-ter-Vehn, *Phys. Rev. A* **43**, 2015 (1991).
10. J.G. Schwelberger and K.A. Connor, *IEEE Trans. Plasma Science* **22**, 418 (1994).
11. Ph.O. Khabanov, L.G. Eliseev, A.V. Melnikov, M.A. Drabinskij, C. Hidalgo, N.K. Kharchev, A.A. Chmyga, A.S. Kozachek, I. Pastord, J.L. de Pablos, A. Cappa, and V.P. Shevelko, *J. Instrum.* **14**, C09033 (2019).
12. C. Bélenger, P. Defrance, E. Salzborn, V.P. Shevelko, H. Tawara, and D.B. Uskov, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30**, 2667 (1997).
13. M. Stenke, K. Aichele, D. Harthumani, G. Hofmann, M. Steidl, R. Volpel, and E. Salzborn, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 2711 (1995).
14. M. Stenke, K. Aichele, D. Harthumani, G. Hofmann, M. Steidl, R. Volpel, V.P. Shevelko, H. Tawara, and E. Salzborn, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 4853 (1995).
15. V.P. Shevelko and L.A. Vainshtein, *Atomic Physics for Hot Plasmas*, Taylor & Francis, N.Y. (1993).
16. T.A. Carlson, C.W. Nestor, Jr., N. Wasserman, and J.D. McDowell, *At. Data* **2**, 63 (1970).
17. I.Y. Tolstikhina, S.N. Andreev, L.A. Vainshtein, and V.P. Shevelko, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **246**, 106944 (2020).
18. H. Tawara and M. Kato, *Electron Impact Ionization Data for Atoms and Ions*, Preprint NIFS-DATA-51, Nagoya, Japan (1999).
19. P. McCallion, M.B. Shah, and H.B. Gilbody, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **25**, 1051 (1992).

Дуализм связи и оптоэлектронные свойства бислойных углеродных структур на основе фазы T12 и пента-графена

А. Н. Токсумаков¹⁾, В. С. Байдышев, Д. Г. Квашнин, З. И. Попов

Институт биохимической физики им. Н. М. Эмануэля РАН, 119334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 14 сентября 2022 г.

После переработки 6 февраля 2023 г.

Принята к публикации 6 февраля 2023 г.

В работе методом теории функционала электронной плотности были исследованы бислойные соединения двумерного аллотропа углерода на основе фазы T12 и пента-графена. При помощи расчета спектров фононных колебаний и молекулярно-динамического моделирования проведена оценка устойчивости рассмотренных двумерных структур при различных типах упаковок и диапазонах температур, продемонстрирована стабильность плоской двумерной структуры до 1350 К. Показано, что соединения на основе бислойного пента-графена в AA' и AB' упаковках имеют минимумы энергии как в состоянии Ван-дер-Ваальсового взаимодействия, так и в виде ковалентно связанных между собой слоев в фазе AA-T12 и T12. Проведен анализ барьера перехода между ковалентно и Ван-дер-Ваальсово связанными AA' и AB' упаковками. Рассчитанные электронные и оптические характеристики показывают, что при переходе от Ван-дер-Ваальсового связывания к ковалентному происходит значительное уменьшение ширины запрещенной зоны.

DOI: 10.31857/S1234567823060071, EDN: qssxjn

Введение. Углерод обладает многообразием аллотропных модификаций [1–3], среди которых большой интерес представляют их двумерные соединения [4, 5], в частности, самый известный и широко изученный двумерный аллотроп – графен [6], представленный в виде отдельно стоящего листа графита, в котором все атомы углерода находятся в sp^2 гибридизованном состоянии, что позволяет стабилизировать единую π -систему и придает ему уникальные электронные свойства. Создание двумерного аллотропа, состоящего из атомов углерода с различным типом гибридизации представляется актуальным как с фундаментальной точки зрения, так и позволит расширить прикладные области применения низкоразмерных форм углерода для электронных устройств с изменяемыми свойствами. Наиболее обсуждаемым и во многом спорным кандидатом является фаза углерода T12 [7] представление которой в виде монослоя позволило предложить гипотетический материал – пента-графен (PG), однослойный гипотетический аллотроп углерода, состоящий из пятичленных колец [4]. Его атомная структура и электронные свойства были подробно изучены при помощи теории функционала электронной плотности (DFT) [8, 9]. Кроме того, с помощью методов молекулярной динамики (MD) изучались тер-

мические свойства данного материала и было заключено, что теплопроводность при комнатной температуре составляет около 167 Вт/мК, что намного ниже по сравнению с графеном [10–12], а термически стабильным он является до температуры 1000 К [4, 13], что также ниже, чем в случае с графеном [14]. Помимо вышеуказанного, PG обладает отрицательным коэффициентом Пуассона (–0.068) и сверхвысокой прочностью, которая может превзойти прочность графена [4]. Также он обладает шириной запрещенной зоны от 2.2 до 3.3 эВ в зависимости от метода расчета [15]. Таким образом, пониженная теплопроводность, наличие ненулевой запрещенной зоны [4, 9], отрицательный коэффициент Пуассона [4] и высокая прочность [4] делает пента-графен привлекательным для широкого спектра различных потенциальных приложений, например, в качестве газовых сенсоров [16, 17]. В работе [15] продемонстрировано, что многослойные соединения пента-графена будут перспективны в применении к наноразмерным электронным и оптоэлектронным устройствам благодаря возможности управлять шириной запрещенной зоны. Также рассматривались термопереносные свойства бислойного и монослойного пента-графена [18]. Кроме того, было показано, что в отличие от случая графена, PG оказался не чувствителен к изменению количества слоев [19]. Предыдущие исследования демонстрируют широкий спектр областей

¹⁾e-mail: adilet.toksumakov@phystech.edu

потенциального применения пента-графена, однако он уступает графену по энергетической стабильности [4], что указывает на то, что такая форма углерода является метастабильным состоянием. Один из возможных путей стабилизации такой структуры – это уменьшение внеплоскостных колебательных степеней свободы путем создания сильной связи с подложкой либо повышение размерности структуры путем создания многослойных структур из PG [20]. В то же время, в исследовании [4] предсказывается возможное получение пента-графена из углерода T12 путем механического отщепления. Примечательно, что в работе [15] рассматриваются ковалентно связанные соединения PG в то время, как в работе [19] принимаются во внимание только Ван-дер-Ваальсово (vdW) связанные структуры, что наталкивает на идею о возможном существовании стабильных структур при различных типах соединения листов пента-графена между собой.

Стоит отметить, что существует ряд работ [21–24], в которых исследуется стабильность пента-графена. Результаты свидетельствуют о том, что пента-графен не является механически стабильным, претерпевая деформации изгиба и скручивания кристаллической структуры в периодическом и ограниченном представлениях. Однако в работе [25] показано, что нанокластеры на основе бислойного пента-графена при АВ упаковке сохраняют идеальную двумерную структуру. В данном случае силы изгиба и растяжения, вызванные перпендикулярными димерами sp^2 разных слоев PG, компенсируют друг друга, а нанокластер сохраняет идеальную двумерную плоскую структуру. Также в исследовании [26] показано, что фаза AA-T12 обладает впечатляющим значением твердости по Виккерсу (≈ 62 ГПа), что аналогично твердости алмаза, а также обсуждается химически индуцированный фазовый переход между этой фазой и пента-графеном.

В данной работе изучен процесс образования и стабильность двухслойных углеродных структур на основе пента-графена, рассматривается термическая и динамическая стабильности двумерных углеродных соединений на основе пента-графена при различных типах упаковки, исследуется изменение электронных и оптических свойств в зависимости от типа связывания между слоями, а также обсуждается барьер перехода между ковалентным и vdW соединениями.

Методы расчета. Исследование проводилось в рамках теории функционала электронной плотности (DFT) [27, 28] с использованием программного па-

кета VASP [29–31]. Применялось приближение обобщенного градиента GGA в параметризации PBE [32] для расчета обменно-корреляционного функционала. Метод проекционно-присоединенных волн PAW [33] проводился по схеме Монкхорста–Пака [34] с использованием сетки точек $20 \times 20 \times 1$. Релаксация атомной структуры проводилась до тех пор, пока максимальное значение межатомных сил не становилось меньше 0.05 эВ/Å, а разброс энергии – меньше 10^{-5} эВ. В неперiodических направлениях была выбрана область вакуума не менее 15 Å. Расчеты фононных спектров проводились с использованием программного пакета PHONOPY [35]. Для исследования стабильности двухслойных структур PG без учета влияния периодических граничных условий был выбран нанокластер размером 3×3 элементарной ячейки (19×19 Å). Исследования стабильности нанокластера проводились методом *ab initio molecular dynamics* (AIMD) при постоянной температуре 1200 K в течение 3 пс. Для расчета оптических свойств применялся метод приближения случайных фаз (RPA) [28] для получения мнимой части диэлектрического тензора ϵ_{Im} , а соотношения Крамерса–Кронига [36] использовались для получения действительной части диэлектрической функции ϵ_{Re} .

Моделирование термической стабильности атомной структуры пента-графена проводилось также методом классической молекулярной динамики в программном пакете LAMMPS [37]. Межатомное взаимодействие описывалось в рамках ReaxFF модели [38], которая показала свою адекватность при моделировании углеродных наноструктур [39]. В MD расчетах средний размер рассматриваемой суперъячейки составлял $(72 \times 72 \times 60)$ Å. В расчетах были использованы периодические граничные условия в плоскости рассматриваемых структур (оси X и Y), вдоль оси Z , по нормали к плоскости структуры, размер ячейки был равен 60 Å, что значительно больше радиуса обрезания потенциала (12 Å). Тем же методом была исследована температурная стабильность без учета периодических граничных условий. Для моделирования был выбран нанокластер круглой формы диаметром 50 Å. Перед нагревом структура оптимизировалась с помощью метода сопряженных градиентов (*conjugate gradient method*), при этом оптимизация проводилась до тех пор, пока величины сил не достигнут 10^{-5} ккал/моль/ангстрем. Для численного интегрирования уравнений движения использовался алгоритм Верле с временным шагом $t = 0.15$ фс. Структуры нагревались от 500 до 6000 K с использованием термостата Носе–Гувера (NVT – ансамбль), в течении 0.5 нс, что соответство-

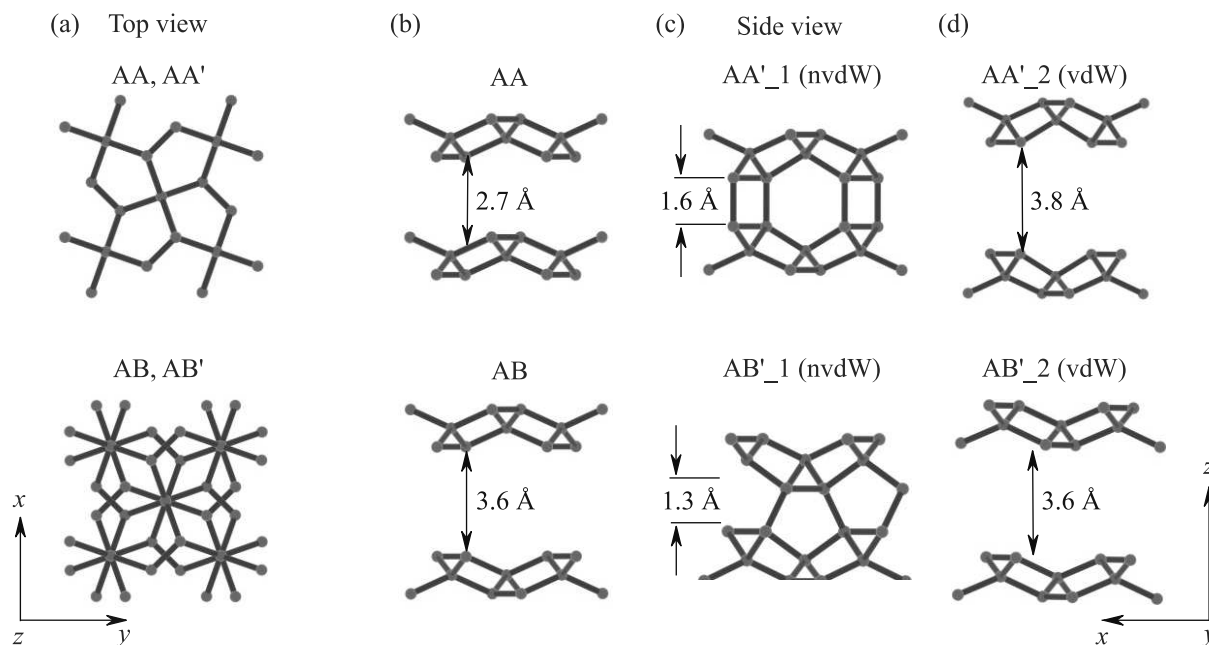


Рис. 1. (Цветной онлайн) Проекция углеродных структур при различных типах упаковок: (a) – вид сверху для всех рассматриваемых структур; (b) – вид сбоку упаковок AA, AB; (c) – вид сбоку упаковок AA'_1, AB'_1; (d) – вид сбоку упаковок AA'_2, AB'_2

вало скорости нагрева 1.1×10^{13} К/с. Отметим, что выбранные временные интервалы соответствуют используемому потенциалу и применяются другими авторами, например, в работе [40].

Результаты и обсуждение.

Структурные характеристики. Вертикальные углеродные соединения на основе PG могут быть представлены в виде различных упаковок слоев друг относительно друга по аналогии с графитом. AA упаковка представляет собой два одинаковых листа PG, расположенных друг над другом, AB – листы пентаграфена, смещенные друг относительно друга на пол периода решетки ($a/2$), AA' – структура с зеркальным отражением структуры листов PG, AB' – зеркально отраженные листы PG, со смещением на $a/2$. Рассчитанные равновесные расстояния между листами PG для всех рассмотренных упаковок соответствуют vdW связыванию (AA – 2.7 Å, AB – 3.6 Å, AA'_2 – 3.8 Å, AB'_2 – 3.6 Å). Для упаковок AA' и AB' равновесные структуры с межплоскостным расстоянием AA'_1 – 1.6 Å, AB'_1 – 1.3 Å и ковалентным связыванием слоев соответствуют фазе AA-T12 и T12 соответственно. Для удобства здесь и далее AA-T12 и T12 будут обозначены как AA'_1 и AB'_1.

Рассчитанные значения энергии связи для структур AA, AB, AA'_2, AB'_2 (рис. 1b,d) находятся в промежутке от 5 до 20 мэВ/атом, что соответствует величинам энергии связи в vdW материалах [14, 41].

В то же время, для структур AA'_1, AB'_1 (рис. 1c) энергия связи 250 и 300 мэВ/атом соответственно, что соответствует энергии ковалентного (nvdW) взаимодействия. Таким образом, в соединениях AA'_1 и AB'_1 образуется ковалентно связанное соединение на основе PG в то время, как в AA, AB, AA'_2, AB'_2 – vdW связывание.

Получено, что только для упаковок AA' и AB' было обнаружено два минимума энергии с различными межплоскостными расстояниями, что указывает на существование двух состояний с vdW и ковалентным связываниями, и может быть сопряжено с наличием барьера перехода между этими состояниями. В силу использования периодических граничных условий, а также заметного различия параметров решетки в плоскости между ковалентной и vdW структурами, расчет барьеров перехода производился путем расчета энергии структур с последовательным увеличением межслоевого расстояния в ковалентной структуре и уменьшения его в vdW структуре без структурной оптимизации. Полученное пересечение зависимостей изменения энергии от межслоевого расстояния (рис. 2a, d) соответствует барьеру перехода. Синими линиями показано изменение энергии структуры в энергетически выгодном ковалентно связанном состоянии при отдалении двух листов пента-графена друг от друга. Оранжевыми линиями – сближение листов PG, начиная с энергетически

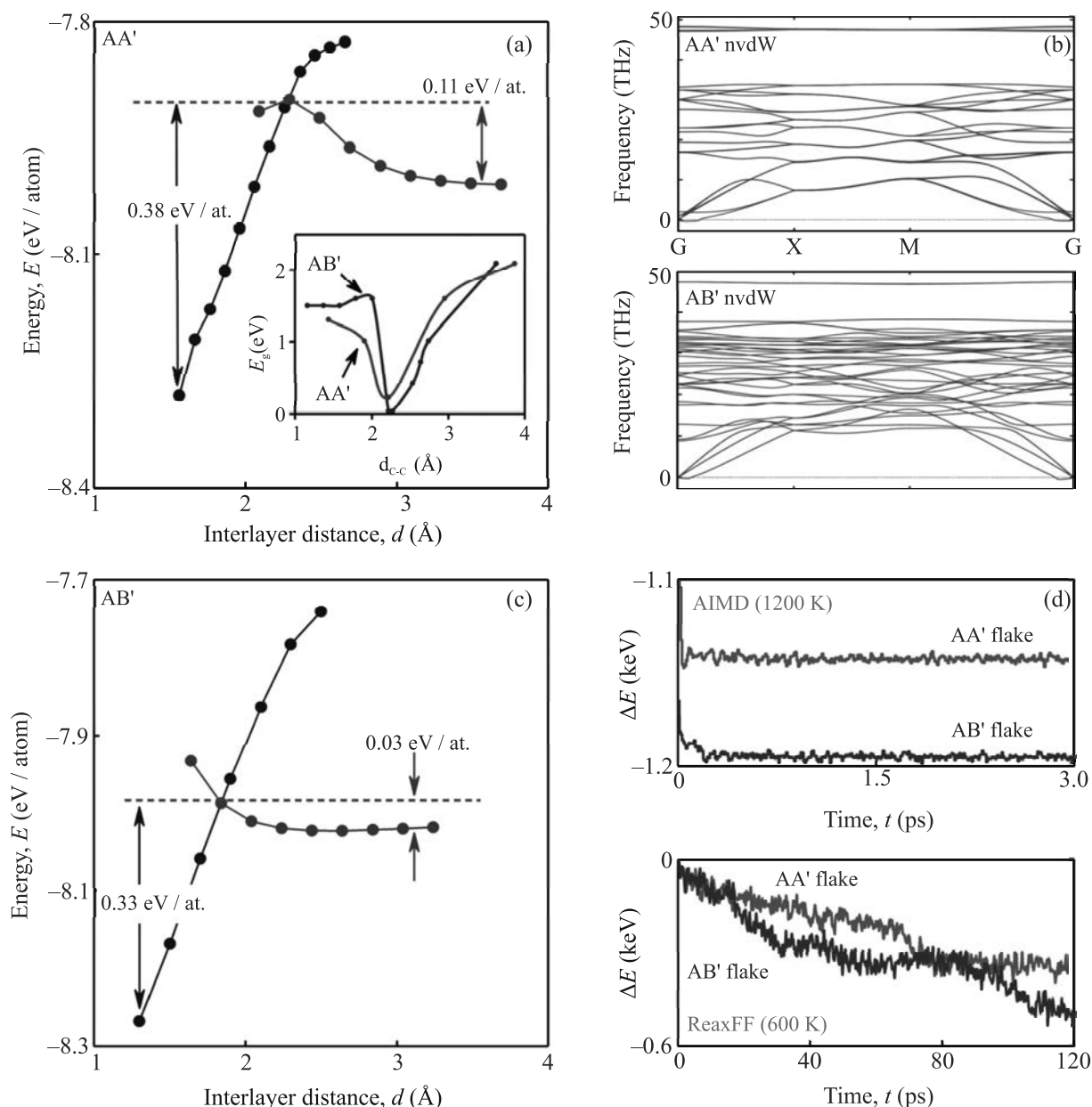


Рис. 2. (Цветной онлайн) Исследование барьера перехода между ковалентным и vdW связываниями в структуре: (a) – AA' и (c) – AB'. Синяя линия отражает зависимости энергии при отдалении листов друг от друга из равновесного положения с ковалентным связыванием, оранжевая – отвечает зависимости энергии при сближении листов PG из vdW состояния. Пунктирной линией обозначен барьер перехода между структурами. Стрелками обозначена величина барьера перехода из соответствующего положения. Также во вставке (a) показано изменение ширины запрещенной зоны в зависимости от расстояния между ближайшими атомами углерода различных листов PG. (b) – Спектры фоновых колебаний периодических ковалентно связанных структур на основе пента-графена. (d) – Зависимость энергии кластера от времени при исследовании методом *ab initio molecular dynamics* при 1200 K, а также методом ReaxFF при 600 K (энергия приведена относительная)

выгодного vdW положения. Таким образом, для упаковки AA' переход из vdW структуры в ковалентную возможен посредством преодоления барьера высотой 0.11 эВ/атом, тогда как для перехода из ковалентно

связанной структуры в vdW необходимо преодолеть барьер в 0.38 эВ/атом (рис. 2a). Полученный барьер перехода из vdW состояния соответствует энергии реакции перехода этилена в циклобутан, где проис-

ходит разрыв двойных связей и переход атомов углерода из sp^2 в sp^3 гибризованное состояние для плоского представления молекулы циклобутана [42]. Аналогично для упаковки АВ' барьер перехода составляет 0.03 и 0.11 эВ/атом из vdW в ковалентную структуру и обратно (рис. 2d). Таким образом, для перехода между данными состояниями необходимо преодолеть энергетический барьер без необходимости в дополнительных условиях, как, например, в случае с алмазами, где требуется функционализация поверхности хлором и бромом или водородом и фтором [43, 44] для снижения барьера перехода в ковалентное состояние и стабилизации полученной пленки. Барьер при таком переходе из многослойного графена в алмаз, тем не менее, выше, чем в случае пента-графена – 0.4 эВ/атом [45]. Кроме того, необходимость функционализации поверхности также требует дополнительной энергии для разрыва сопряжения π -связи углерода.

Динамическая устойчивость рассматриваемых периодических структур (АА', АВ') была оценена с помощью расчета спектров фононных колебаний (рис. 2b). Во всех рассматриваемых структурах, как ковалентно связанных, так и vdW, отсутствуют мнимые моды в фононном спектре, что указывает на их возможную динамическую стабильность. Кроме того, MD моделирование показывает, что для ковалентно связанных структур в АА'_1 и АВ'_1 упаковках температура аморфизации составляет 1350 и 1300 К, соответственно, что выше по сравнению с алмазами, которые сохраняют структурную стабильность до температуры 1200 К [44].

Более того, аналогично исследованию в работе [24] были рассмотрены ковалентно связанные нанокластеры на основе бислойных соединений в АА' и АВ' упаковках. Изучалось поведение структур методом AIMD при температуре 1200 К кластера размером 3×3 элементарных ячейки. Был также применен метод ReaxFF для исследования температурной устойчивости нанокластеров большего размера при температуре 600 К (рис. 2d). В обоих исследованиях нанокластеры сохраняют идеальную планарную структуру в течение всего времени моделирования. В рассматриваемых конфигурациях оба слоя образуют единую структуру с двумя перпендикулярными наборами sp^2 -гибризованных атомов углерода: по два в каждом наборе. Результирующая изгибающая сила, вызванная перпендикулярными sp^2 гибридизациями, создает сильную противоположную реакцию на растяжение из-за значительной конечной толщины двухслойного соединений на основе пента-графена. В результате силы изгиба и растя-

жения компенсируют друг друга, и структура сохраняет идеальную плоскую форму. Таким образом ковалентно связанные слои в АА' и АВ' упаковках удовлетворяют требованию Теоремы сохранения топологии (ТСТ), предложенной П. В. Аврамовым [46]. Зависимость полной энергии нанокластеров на основе пента-графена с размером 3×3 элементарных ячейки в течение 3 пс показана на рис. 2d.

Таким образом, минимум энергии, отсутствие мнимых мод в фононных спектрах, а также устойчивость двумерных нанокластеров при 600 К и 1200 К на основе пента-графена позволяют судить о стабильности рассматриваемых ковалентно связанных углеродных тонких пленок.

Для оценки механических свойств рассматриваемых соединений были рассчитаны упругие постоянные C_{11} и C_{12} , коэффициент Пуассона (ν) и модуль Юнга (E). Полученные данные в сравнении с алмазом, графеном и hP-C18 отражены в табл. 1. Коэффициент Пуассона получен из соотношения:

$$\nu = \frac{C_{12}}{C_{11}}.$$

Модуль Юнга определен согласно выражению:

$$E = \frac{C_{11}^2 - C_{12}^2}{C_{11}} \quad [47].$$

Таблица 1. Механические свойства ковалентно связанных соединений на основе пента-графена в сравнении с алмазом, графеном и hP-C18

	АА'_1	АВ'_1	D(AB) [48]	Графен [49]	hP-C18 [50]
C_{11} , Н/м	512	561	474	349	369
C_{12} , Н/м	-4	21	36	62	85
ν	-0.008	0.037	0.076	0.178	0.23
E , Н/м	512	560	471	338	349

Из приведенных результатов следует, что модули Юнга ковалентных соединений на основе PG заметно выше по сравнению с другими приведенными двумерными аллотропами углерода. Более того, как и в случае монослойного пента-графена, АА'_1 имеет отрицательный коэффициент Пуассона.

Электронные свойства. Для предложенных соединений были рассчитаны электронный зонный структуры для упаковок АА' и АВ'. Ширина запрещенной зоны (E_g) у vdW структур (АА'_2 и АВ'_2) 2.0 эВ, что меньше, чем у монослойного PG (2.2 эВ [15]). Однако, ранее было отмечено, что при увеличении количества слоев в АА упаковке пента-графена при vdW взаимодействии значение запре-

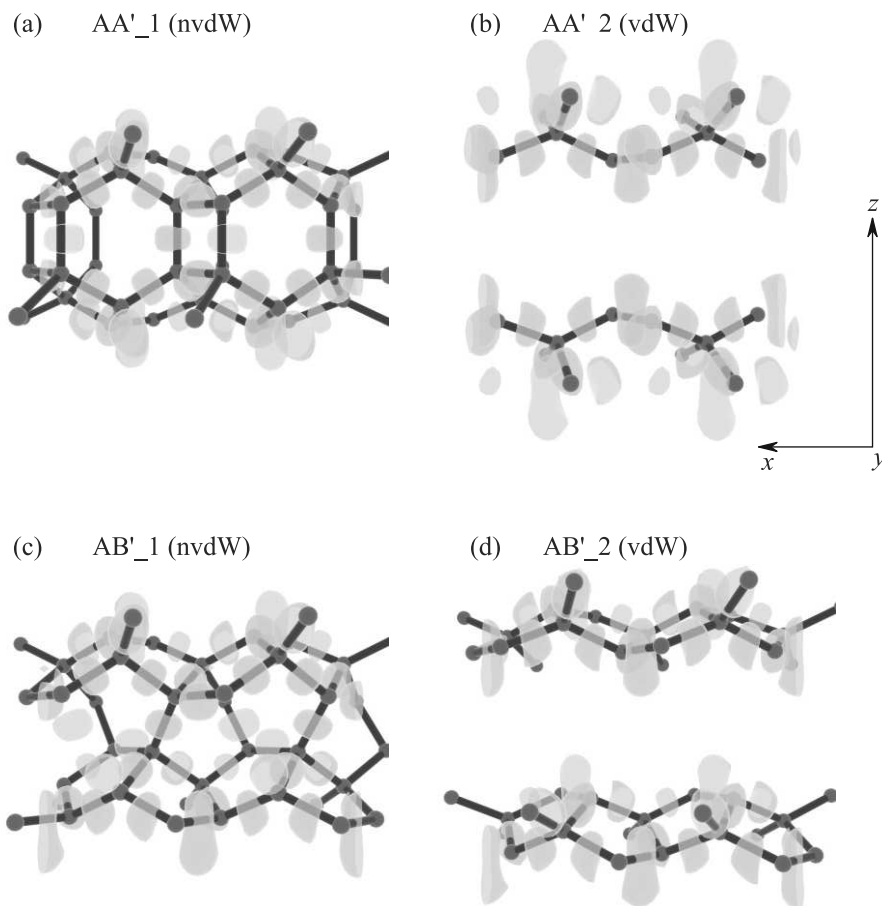


Рис. 3. (Цветной онлайн) Исследование функции локализации электронов (ELF) для структур AA' и AB' при: (a), (c) – ковалентном и (b), (d) – vdW связывании (isovalue = 0.6)

щенной зоны уменьшается до 1.58 эВ [9]. Анализ эволюции ширины запрещенной зоны при переходе от vdW связывания к ковалентному при изменении расстояния между ближайшими атомами углерода соседних листов пента-графена (вставка на рис. 2а) показал уменьшение ширины запрещенной зоны при уменьшении расстояния между ближайшими атомами углерода d_{C-C} до ~ 2.1 Å и дальнейшее увеличение E_g при уменьшении межслоевого расстояния к равновесному, соответствующему ковалентному связыванию атомов углерода из соседних слоев. Это согласуется с эволюцией электронной структуры в слоистых материалах, таких как InSe [51], однако, в рассматриваемых материалах может быть связано с изменением гибридизации атомов углерода. В ковалентно связанных структурах значения ширины запрещенной зоны становятся равными 1.3 и 1.5 эВ для AA'_1 и AB'_1 соответственно, что согласуется с ранее полученными результатами [15].

Бислойные соединения AA' и AB' имеют ширину запрещенной зоны значительно меньшую, чем

в случае с алмазами [5, 44], что может оказаться более предпочтительным для оптоэлектронных приложений.

Затем была рассмотрена функция локализации электронов (ELF) для структуры AA' при ковалентном (рис. 3а) и при vdW (рис. 3б) связываниях. При образовании ковалентного связывания sp^2 гибридные состояния переходят в sp^3 для атомов, участвующих в ковалентном соединении, что отражено на рис. 3а. Стоит отметить, что вытянутые облака локализации электронов для vdW структуры (рис. 3б) соответствуют образованию π -сопряжений между p -орбиталями атомов углерода в sp^2 гибридном состоянии. Аналогично и для AB', ковалентное представление которого показано на рис. 3с, а vdW состояние – на рис. 3д. Примечательно, что в отличие от алмазов, в которых все атомы углерода находятся в sp^3 гибридизации [52], атомы данных соединений находятся как в sp^3 , так и в sp^2 гибридных состояниях при различных типах связывания.

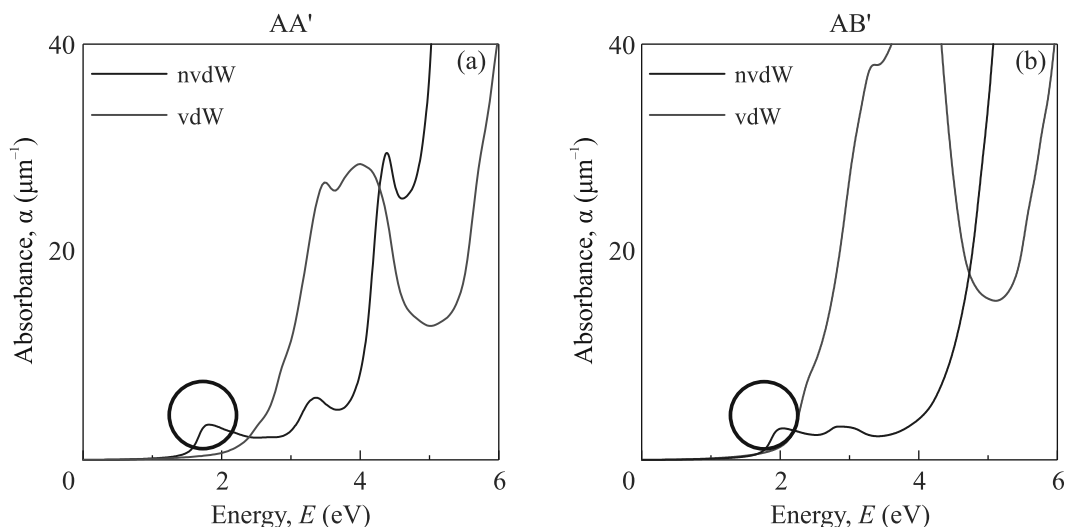


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектр коэффициента поглощения структур AA' и AB' в перпендикулярном направлении для: (a) – AA' и для (b) – AB'. Синим цветом выделено поглощение ковалентно связанного соединения, оранжевым – vdW связанного соединения. Серой окружностью обозначен пик поглощения, возникающий при nvdW связывании

Оптические характеристики. Было рассмотрено оптическое поглощение в перпендикулярном направлении для структур AA' и AB', рассчитанное следующим образом:

$$\alpha = \frac{2\omega}{c} k \quad [53],$$

$$k = \sqrt{\frac{\sqrt{\varepsilon_{\text{Re}}^2 + \varepsilon_{\text{Im}}^2} - \varepsilon_{\text{Re}}}{2}},$$

где k – коэффициент экстинкции, полученный из диэлектрического тензора.

Полученные зависимости поглощения от энергии для AA' и AB' структур при ковалентном (синие линии) и vdW (оранжевые линии) связываниях показаны на рис. 4. Область поглощения для структур с ковалентным связыванием начинается ниже 2 эВ и соответствует красной области видимого диапазона. В то же время при vdW связывании область поглощения начинается с ~ 2 эВ, что согласуется с величиной запрещенных зон для данных структур (2.1 эВ). Таким образом, структура с ковалентным связыванием поглощает в более широком диапазоне, что, в свою очередь, соответствует тому, что величина ее запрещенной зоны при данном типе связывания ниже по сравнению со структурой с vdW связыванием.

Выводы. В работе были рассмотрены тонкие пленки на основе ковалентно связанных слоев пентаграфена в упаковках AA' и AB', изучены их термическая и динамическая стабильности. Показано, что соединения AA' и AB' имеют два минимума энергии: при vdW и при ковалентном соединениях в отличие от AA и AB упаковок. Отсутствие мнимых

мод в спектрах фононных колебаний свидетельствует в пользу устойчивости рассматриваемых структур. Показана стабильность двумерной структуры углеродных нанокластеров конечного размера в упаковках AA' и AB' при температурах 600 и 1200 К, что удовлетворяет требованию стабильности в рамках теоремы сохранения топологии двумерных структур. Детальное изучение барьера перехода между vdW и ковалентно связанными соединениями показало, что последние возможно получить при меньших энергетических затратах по сравнению с образованием тонких алмазных пленок – алмазов. Барьеры перехода из vdW в ковалентные структуры составили 0.11 и 0.03 эВ/атом для AA' и AB' упаковок, тогда как переход из ковалентного соединения в vdW требует преодоления большего барьера (0.38 и 0.33 эВ/атом для AA' и AB' упаковок). Было получено уменьшение ширины запрещенной зоны при уменьшении расстояния между слоями с последующим резким увеличением, связанным с образованием ковалентных sp^3 -связей между соседними листами PG. Кроме того, образование ковалентно связанных тонких пленок на основе пента-графена приводит к появлению пика поглощения с энергией ниже 2 эВ, что соответствует красной области видимого спектра. Полученные физико-химические характеристики свидетельствуют о перспективности создания двумерных ковалентных соединений углерода на основе пентаграфена для применения в элементах оптоэлектронных устройств, способных сохранять свою стабильность в диапазоне высоких температур.

Авторы выражают благодарность доктору физико-математических наук Павлу Вениаминовичу Аврамову за плодотворную дискуссию и ценные советы.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда # 21-73-20183. Ссылка на информацию о проекте: <https://rscf.ru/en/project/21-73-20183/>.

Авторы выражают благодарность Межведомственному суперкомпьютерному центру РАН за предоставление вычислительных ресурсов.

1. E. H. Falcao and F. Wudl, *J. Chem. Technol. Biotechnol.* **82**, 524 (2007).
2. R. Hoffmann, A. A. Kabanov, A. A. Golov, and D. M. Proserpio, *Angewandte Chemie International Edition* **55**, 10962 (2016).
3. B. Y. Valeev, A. N. Toksumakov, D. G. Kvashnin, and L. A. Chernozatonskii, *JETP Lett.* **115**, 10 (2022).
4. S. Zhang, J. Zhou, Q. Wang, X. Chen, Y. Kawazoe, and P. Jena, *PNAS* **112**, 2372 (2015).
5. L. A. Chernozatonskii, P. B. Sorokin, A. G. Kvashnin, and D. G. Kvashnin, *JETP Lett.* **90**, 134 (2009).
6. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, *Science* **306**, 666 (2004).
7. Z. Zhao, F. Tian, X. Dong, Q. Li, Q. Wang, H. Wang, X. Zhong, B. Xu, D. Yu, J. He, H.-T. Wang, Y. Ma, and Y. Tian, *J. Am. Chem. Soc.* **134**, 12362 (2012).
8. H. Einollahzadeh, R. S. Dariani, and S. M. Fazeli, *Solid State Commun.* **229**, 1 (2016).
9. Z. G. Yu and Y.-W. Zhang, *J. Appl. Phys.* **118**, 165706 (2015).
10. W. Xu, G. Zhang, and B. Li, *J. Chem. Phys.* **143**, 154703 (2015).
11. А. И. Подливаев, К. С. Гришаков, К. П. Катин, М. М. Маслов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 182 (2021).
12. A. I. Podlivaev, *JETP Lett.* **111**, 613 (2020).
13. Л. А. Опенков, А. И. Подливаев, *Письма в ЖЭТФ* **107**, 747 (2018).
14. A. I. Podlivaev, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 384 (2022).
15. J. Wang, Z. Wang, R. J. Zhang, Y. X. Zheng, L. Y. Chen, S. Y. Wang, C.-C. Tsao, H.-J. Huang, and W.-S. Su, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **20**, 18110 (2018).
16. M.-Q. Cheng, Q. Chen, K. Yang, W.-Q. Huang, W.-Y. Hu, and G.-F. Huang, *Nanoscale Res. Lett.* **14**, 306 (2019).
17. M. A. Nazir, A. Hassan, Y. Shen, and Q. Wang, *Nano Today* **44**, 101501 (2022).
18. Z. Sun, K. Yuan, X. Zhang, G. Qin, X. Gong, and D. Tang, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 15647 (2019).
19. F. Q. Wang, J. Liu, X. Lie, Q. Wang, and Y. Kawazoe, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 192102 (2017).
20. K. A. Tikhomirova, C. Tantardini, E. V. Sukhanova, Z. I. Popov, S. A. Evlashin, M. A. Tarkhov, V. L. Zhdanov, A. A. Dudin, A. R. Oganov, D. G. Kvashnin, and A. G. Kvashnin, *J. Phys. Chem. Lett.* **11**, 3821 (2020).
21. S. W. Cranford, *Carbon* **96**, 421 (2016).
22. O. Rahaman, B. Mortazavi, A. Dianat, G. Cuniberti, and T. Rabczuk, *FlatChem* **1**, 65 (2017).
23. A. V. Kuklin, H. Agren, and P. V. Avramov, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **22**, 8289 (2020).
24. C. P. Ewels, X. Rocquefelte, H. W. Kroto, M. J. Rayson, P. R. Briddon, and M. I. Heggie, *PNAS* **112**, 15609 (2015).
25. P. V. Avramov, V. A. Demin, M. Luo, C. H. Choi, P. B. Sorokin, B. I. Yakobson, and L. A. Chernozatonskii, *J. Phys. Chem. Lett.* **6**, 4525 (2015).
26. Y. Zhu, S. Zhang, J. Xu, L. Fan, X. Yu, Y. Wei, C. Hu, and Y. Hang, *Diam. Relat. Mater.* **122**, 108829 (2022).
27. P. Hohenberg and W. Kohn, *Phys. Rev.* **136**, B864 (1964).
28. W. Kohn and L. J. Sham, *Phys. Rev.* **140**, A1133 (1965).
29. G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
30. G. Kresse and J. Furthmüller, *Comput. Mater. Sci.* **6**, 15 (1996).
31. G. Kresse and J. Hafner, *Phys. Rev. B* **49**, 14251 (1994).
32. Y. Zhang and W. Yang, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 890 (1998).
33. G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B* **59**, 1758 (1999).
34. H. J. Monkhorst and J. D. Pack, *Phys. Rev. B* **13**, 5188 (1976).
35. A. Togo and I. Tanaka, *Scr. Mater.* **108**, 1 (2015).
36. C. Kittel, *Introduction to solid state physics*, John Wiley, N.Y. (1966).
37. S. Plimpton, *J. Comput. Phys.* **117**, 1 (1995).
38. A. C. T. van Duin, S. Dasgupta, F. Lorant, and W. A. Goddard, *J. Phys. Chem. A* **105**, 9396 (2001).
39. X. Li, H. Mizuseki, S. J. Pai, and K.-R. Lee, *Comput. Mater. Sci.* **169**, 109143 (2019).
40. M. Feng, X. Z. Jiang, Q. Mao, K. H. Luo, and P. Hellier, *Fuel* **254**, 115643 (2019).
41. N. Mounet, M. Gibertini, P. Schwaller, D. Campi, A. Merkys, A. Marrazzo, T. Sohier, I. E. Castelli, A. Cepellotti, G. Pizzi, and N. Marzari, *Nat. Nanotechnol.* **13**, 246 (2018).
42. G. A. Segal, *J. Am. Chem. Soc.* **96**, 7892 (1974).
43. L. A. Chernozatonskii, V. A. Demin, A. G. Kvashnin, and D. G. Kvashnin, *Applied Surface Science* **572**, 151362 (2022).
44. S. Huabing, *J. Mater. Chem.* **9**, 4505 (2021).
45. A. G. Kvashnin, L. A. Chernozatonskii, B. I. Yakobson, and P. B. Sorokin, *Nano Lett.* **14**, 676 (2014).
46. P. V. Avramov and A. V. Kuklin, *New J. Phys.* **24**, 103015 (2022).

47. Y. Ding and Y. Wang, J. Phys. Chem. C **117**, 18266 (2013).
48. L. A. Chernozatonskii, P. B. Sorokin, A. A. Kuzubov, B. P. Sorokin, A. G. Kvashnin, D. G. Kvashnin, P. V. Avramov, and B. I. Yakobson, J. Phys. Chem. C **115**, 132 (2011).
49. X. Wei, B. Fragneaud, C. A. Marianetti, and J. W. Kysar, Phys. Rev. B **80**, 205407 (2009).
50. S. Wang, J. Li, X. Zhu, and M. Wang, Carbon **143**, 517 (2019).
51. J. Shang, L. Pan, X. Wang, J. Li, and Z. Wei, Semicond. Sci. Technol. **33**, 034002 (2018).
52. P. B. Sorokin and B. I. Yakobson, Nano Lett. **21**, 5475 (2021).
53. R. G. Berdiyev and M. E. Madjet, RSC Adv. **6**, 50867 (2016).

Измерение теплопроводности углеродных наностенок методом третьей гармоники

Д. А. Чернодубов^a, Ю. В. Бондарева^b, М. В. Шибалов^c, А. М. Мумляков^c, В. Л. Жданов^d, М. А. Тархов^c,
К. И. Маслаков^e, Н. В. Суетин^f, Д. Г. Квашнин^{g, h1)}, С. А. Евлашин^b

^aНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

^bСколковский институт науки и технологий, 143025 Москва, Россия

^cИнститут нанотехнологий и микроэлектроники РАН, 119991 Москва, Россия

^dНациональный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

^eМосковский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^fНаучно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына, 119991 Москва, Россия

^gИнститут биохимической физики им. Н. М. Эмануэля РАН, 119334 Москва, Россия

^hРоссийский национальный исследовательский медицинский университет им. Н. И. Пирогова, 117997 Москва, Россия

Поступила в редакцию 29 ноября 2022 г.

После переработки 8 февраля 2023 г.

Принята к публикации 8 февраля 2023 г.

Методом химического осаждения из газовой фазы в разряде постоянного тока были получены пленки углеродных наностенок разной толщины. Впервые проведено измерение теплопроводности полученных структур с использованием метода третьей гармоники (3-омега) в диапазоне температур от 280 до 310 К. Показана зависимость теплопроводности стенок от их толщины. При толщине пленки 1 мкм значение теплопроводности углеродных наностенок составляет $6.9 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$. Полученные результаты необходимы для конструирования электрооптических приборов на основе углеродных наностенок.

DOI: 10.31857/S1234567823060083, EDN: qswcql

1. Введение. Тенденция к миниатюризации современных электронных устройств ставит актуальную задачу увеличения эффективности процессов теплоотвода, так как увеличение плотности тепловой мощности при недостаточном теплоотводе может привести к ухудшению характеристик приборов, снижению их работоспособности и даже выходу из строя [1].

Материалы на основе углерода обладают рекордными значениями теплопроводности. Так, теплопроводность алмаза при комнатной температуре достигает $2400 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ [2], равно как и величина теплопроводности низкоразмерных углеродных наноструктур, таких как графен и углеродные нанотрубки, превышает несколько тысяч $\text{Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ [2, 3]. Стоит отметить, что последние теоретические исследования отмечают зависимость теплопроводности между слоями графена от наличия дефектов и деформации [4–6]. Такие высокие значения теп-

лопроводности позволяют использовать углеродные структуры в качестве эффективных теплоотводящих материалов, способствующих улучшению характеристик электронных устройств.

Для достижения высоких значений теплопроводности углеродных материалов требуется обеспечение высокой чистоты и бездефектности выращиваемых структур [3, 7–12]. Например, для аморфного углерода теплопроводность при комнатной температуре может быть на три порядка меньше, около $1 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ [3].

Перспективным классом структур для использования в современной электронике являются углеродные наностенки (Carbon NanoWalls, УНС) [13–21], которые представляют собой углеродные структуры из преимущественно вертикально ориентированных графитоподобных двумерных листов, напоминающих стенки. Толщина получаемых стенок варьируется от 1 до 10 нм [17–19]. Благодаря высокой удельной площади поверхности [11] УНС используются в качестве светопоглотителей [20], элементов мемри-

¹⁾e-mail: dgkvasninn@phystech.edu

сторков [15], в топливных ячейках [21], конденсаторах и суперконденсаторах [16], электродах литий-ионных и солнечных батарей [22, 23] и др. Экспериментальные исследования показывают, что применение УНС и нановолокон увеличивает теплоотвод от чипа на $\sim 10\%$ и тем самым уменьшает температуру в “горячих точках” в ходе работы устройств, в том числе при высоких рабочих мощностях тока [24]. Однако тепловые характеристики таких структур плохо изучены.

Измерение теплопроводности важно для моделирования процессов теплопереноса в УНС. Однако процесс измерения теплопроводности в таких материалах является непростой задачей, в силу сложной морфологии и небольшой толщины УНС. В работе [25] при помощи метода лазерного импульса при комнатной температуре была измерена теплопроводность УНС, выращенных при помощи радиочастотной плазмы с расширяющимся лучом на подложке из плавленого кварца с буферным слоем нитрида алюминия. Полученные значения теплопроводности составили 5, 7, 12 и $18 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ при толщинах 700, 1000, 2200 и 4300 нм соответственно. В силу того, что УНС являются пористыми, необходимо пересчитывать эффективную теплопроводность k_{CNW} с учетом плотности структур. Соотношение истинной и кажущейся плотностей по результатам измерений составило 0.22 и, таким образом, величины эффективной теплопроводности были определены как 20, 32, 55 и $80 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ соответственно толщинам пленок.

Ранее нами было исследовано изменение теплопроводности для пленок УНС на плавленом кварце в диапазоне температур от 4.7 до 96 К. Полученные величины теплопроводности и их температурные зависимости подобны таковым для фуллеритов [26] и фуллеренов [27]. При температурах около 90 К теплопроводность пленок УНС близка к теплопроводности ультра-нано-кристаллических алмазных пленок [3], и составляет $10 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$.

Данная работа посвящена исследованию процессов теплопереноса и измерению поведения теплопроводности УНС на кремниевой подложке в диапазоне комнатных температур, что крайне важно для практической реализации электронных устройств на их основе. Для измерения теплопроводности УНС впервые был использован метод третьей гармоники (3-омега). Получены температурные зависимости теплопроводности для пленок УНС толщиной 400 и 1000 нм.

2. Методы исследования.

2.1. Условия роста пленок. Исследуемые пленки УНС были выращены на кремниевой подлож-

ке при помощи метода химического осаждения из газовой фазы в разряде постоянного тока (Direct Current Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition, DC PECVD) [28]. Для синтеза структур использовалась смесь газов CH_4 и H_2 . Продолжительность роста составила 20 и 60 мин, что соответствует высоте стенок 400 и 1000 нм. На рисунке 1а представлены изображения синтезированных пленок УНС толщиной 400 нм, полученные с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). Для исключения шунтирования нагревателя при измерении теплопроводности после получения пленок, на их поверхность был нанесен слой оксида гафния толщиной 40 нм с использованием атомно-слоевого осаждения (Atomic Layer Deposition, ALD). Пленка оксида гафния осаждалась повторением реакционных серий, включающих в себя подачу металлоорганического прекурсора TDMAN (tetrakis(dimethylamino)hafnium(IV)) и паров H_2O в качестве неметаллического реактанта. Более подробно процесс осаждения диэлектриков описан в работах [16, 29]. Следующим этапом была нанесена пленка золота толщиной 100 нм в качестве нагревателя-измерителя для проведения измерений теплопроводности при помощи метода 3-омега с использованием установки магнетронного распыления (рис. 1б). Детали процесса нанесения золотой пленки на УНС подробно описаны в предыдущей работе [30]. На поверхность золота был нанесен фотополимер S1805 для создания структур нужной формы.

После было проведено экспонирование с использованием контактного шаблона и последующее травление в 1М растворе КОН. Схема наносимых слоев показана на рис. 1с. После создания шаблонов с ширинами $2b = 5, 10, 20, 40$ и 50 мкм и длиной около 2 мм было проведено травление в установке с индуктивно-связанной плазмой (ICP-RIE) в среде Ar ($30 \text{ см}^3/\text{мин}$). Температура столика составляла 15°C , давление в камере 2.5 мТорр, мощность источников ICP и RF 900 Вт и 125 Вт соответственно. Время травления – 5 мин [16]. После создания структур фоторезистивный слой был удален с использованием растворителя. Схематическое изображение структуры с нанесенными нагревателями-измерителями приведено на рис. 1d. На рисунке 1e показан боковой срез структур, а на рис. 1f показано соответствующее распределение элементного состава внутри образца, измеренное при помощи энергодисперсионного анализа.

2.2. Характеризация морфологии и химического состава пленок УНС. Исследования полученных пленок были проведены с использованием сканирующего электронного микроскопа SEM + FIB Helios G4

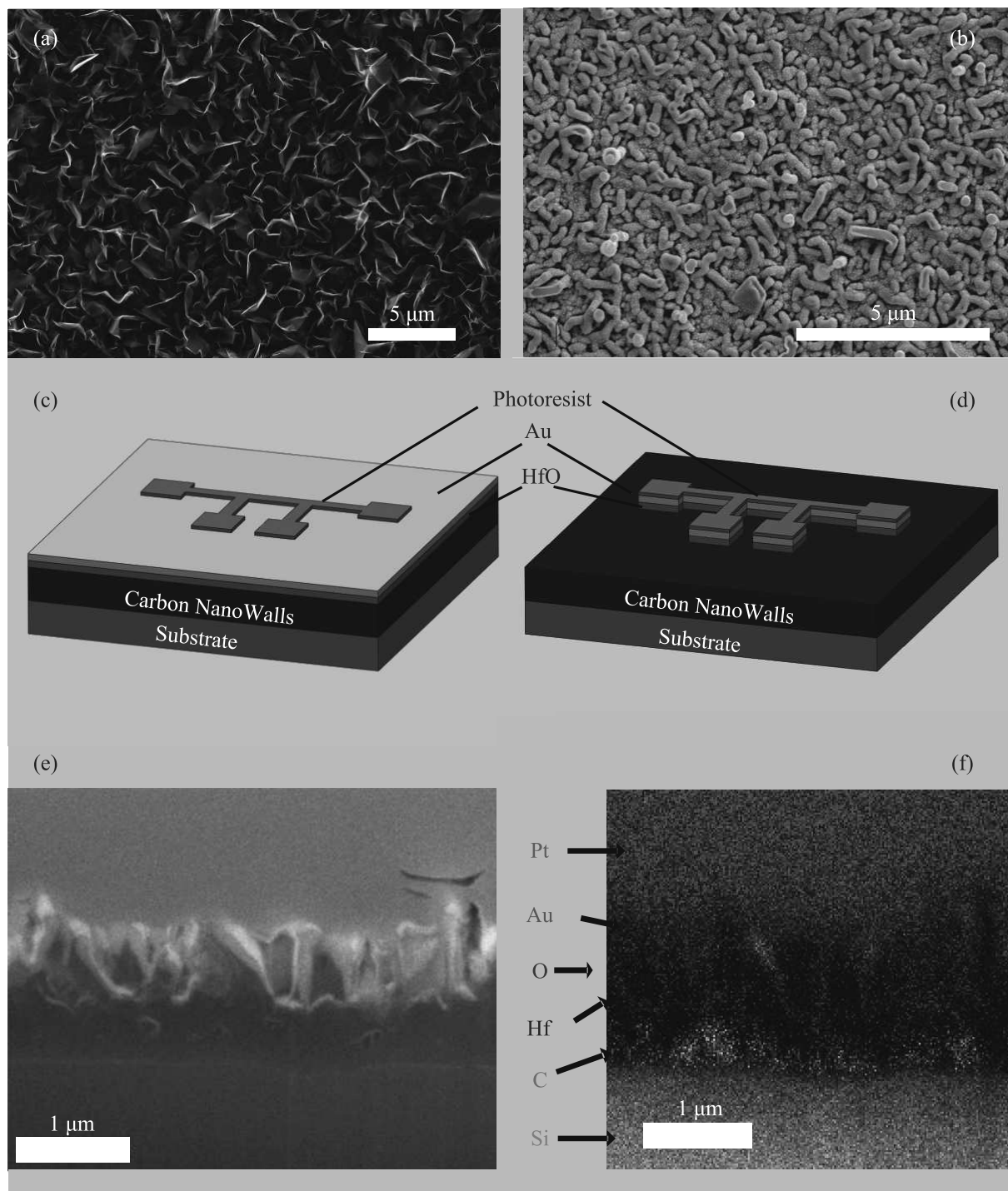


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Изображение СЭМ для образца толщиной 400 нм; (b) – изображение СЭМ для образца покрытого слоем золота; (c) – схематическое изображение нанесенных слоев структуры; (d) – схематическое изображение итогового нагревателя-измерителя на поверхности исследуемого образца; (e) – СЭМ изображение поперечного сечения структур и (f) – карта распределения элементов в поперечном сечении для образца структуры толщиной 400 нм с нанесенными нагревателями-измерителями

Plasma FIB Uхе с энергодисперсионной приставкой EDAX. Исследования особенностей структуры полу-

ченных пленок УНС были проведены с помощью спектроскопии комбинационного рассеяния (КР) све-

та (Thermo Scientific DXR Raman Microscope) и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) Axis Ultra DLD (Kratos Analytical, UK) [28].

2.3. Измерения теплопроводности пленок УНС.

Измерения теплопроводности выполнены методом 3-омега [31]. Его суть заключается в определении зависимости действительной части амплитуды температурных колебаний нагревателя, нанесенного на поверхность образца, от частоты переменного тока, проходящего через этот нагреватель. В качестве нагревателей-термометров использовались пленки золота толщиной 100 нм с ширинами $2b = 5, 10, 20, 40$ и 50 мкм и длиной $l = 2$ мм. Зависимость действительной части амплитуды температурных колебаний от частоты тока, протекающего через нагреватель-измеритель, позволяет определить как теплопроводность объемной подложки по ее наклону, так и теплопроводность тонких слоев, поскольку их наличие изменяет характер теплопереноса в структуре, увеличивая ее тепловое сопротивление. В случае, если толщина измеряемой пленки много меньше ширины нагревателя, можно считать, что тепловой поток не успевает ушириться на пленке и проходит через нее прямым фронтом, увеличивая амплитуду температурных колебаний. Таким образом, задача измерения величины теплопроводности тонкой пленки может быть решена при проведении измерений при помощи двух нагревателей-термометров разной ширины.

Достоинством методики 3-омега является возможность прямого измерения теплопроводности пленок малой толщины (от сотен нанометров) в широком диапазоне температур. Классические методики измерения теплопроводности, такие как метод продольного теплового потока, не позволяют проводить измерения тонких пленок из-за конечного размера термпар или термометров сопротивления, при помощи которых производится измерение градиента температур на образце. Существуют другие современные методики измерения теплопроводности тонких пленок, такие как частотный или временной терморефлектанс (frequency-domain thermoreflectance (FDTR), time-domain thermoreflectance (TDTR)), но по сравнению с методом 3-омега они более сложны в реализации и проигрывают в точности измерений.

Амплитуда температурных колебаний нагревателя ΔT измерялась в диапазоне частот от 1 до 33000 Гц при токе амплитудой 15 мА. Измерения проводились в вакуумированной ячейке, охлаждаемой парами азота. Подробное описание аппаратуры и методики измерений амплитуды температурных коле-

баний от частоты приведено в работе [32]. Из измеренной амплитуды температурных колебаний определялись тепловые сопротивления нагревателей как $R = \Delta T/P$, где P – тепловая мощность, подаваемая на нагреватель. Эффективная теплопроводность k_{eff} тонких пленок в направлении, перпендикулярном слою структур, определялась как [33, 34]:

$$k_{\text{eff}} = \frac{t}{2l} \frac{\frac{1}{b_1} - \frac{1}{b_2}}{\left(R_1 - R_2\right) - \left(\ln \frac{b_2}{b_1}\right) / 2\pi l k_s}, \quad (1)$$

где t – толщина пленки, b_i – полуширины нагревателей, k_s – теплопроводность подложки, которая определялась в этом же эксперименте по наклону зависимости R_i ($i = 1, 2$ для нагревателей шириной 5 и 10 мкм соответственно) от натурального логарифма частоты тока через нагреватели. Поскольку в рамках модели измерения теплопроводности методом 3-омега тонкая пленка вносит постоянный вклад в величину амплитуды температурных колебаний, для определения теплопроводности тонкой пленки нужно провести как минимум два измерения, варьируя один из геометрических параметров системы – проще всего это сделать, используя нагреватели разных ширин.

3. Результаты и обсуждения. На рисунке 2а приведены спектры КР для пленок УНС толщиной 400 нм (черная кривая, снизу) и 1000 нм (синяя кривая, сверху). Для оценки размера нанокристаллических доменов L_a использовалась эмпирическая формула из работы [35]:

$$L_a = (2.4 \times 10^{-10}) \lambda_l^4 \left(\frac{I_D}{I_G} \right)^{-1}, \quad (2)$$

где λ_l – длина волны КР, I_D и I_G – интегральные интенсивности мод КР. На основе полученных спектров были определены интегральные соотношения пиков I_D/I_G , которые составили 0.9 и 1.8 для образцов толщиной 400 и 1000 нм соответственно. Размеры кристаллических доменов составили 10 и 17 нм. Полученные различия в размерах доменов свидетельствуют о разном количестве дефектов на единицу поверхности структур. Наличие дефектов может приводить к адсорбции функциональных групп. Для определения наличия и количества функциональных групп на поверхности образцов использовали РФЭС. Полученные образцы, помимо углерода (~ 99.86 ат. %), содержали очень низкую концентрацию кислорода (0.14 ат. %), которая является порогом чувствительности метода. Образцы, полученные при разных временах синтеза, имели идентичные $C1s$ спектры (рис. 2б). Основной вклад в РФЭС-

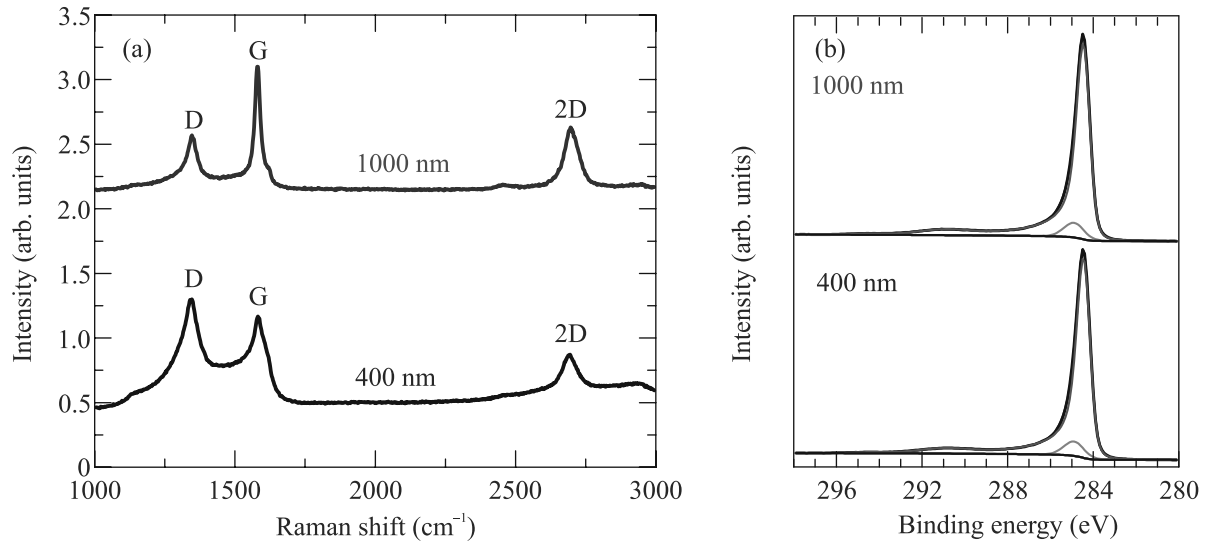


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Спектры КРС и (b) – C1s РФЭС-спектры образцов толщиной 400 и 1000 нм

спектры дает ассиметричная компонента при энергии связи 284.5 эВ с характерными ароматическими спутниками встряски, отвечающая sp^2 -углероду. Доля sp^2 -углерода составляет 92.92 ат. %, также наблюдается компонента (около 6.88 ат. %) при энергии связи 284.9 эВ, которая соответствует sp^3 -углероду [28]. Полученные данные свидетельствуют о том, что в процессе синтеза не происходит изменение химического состава УНС и количество функциональных групп на поверхности остается постоянным.

На рисунке 3а приведены частотные зависимости тепловых сопротивлений нагревателей шириной 5 и 10 мкм, нанесенных на пленку толщиной 400 нм. Из полученных зависимостей следует, что в диапазоне 100–1300 Гц разность тепловых сопротивлений R_1 и R_2 для двух нагревателей разной толщины постоянна, что позволяет определить величину теплопроводности по наклону S зависимости амплитуды температурных колебаний от частоты k_s как [36]

$$k_s = -\frac{P}{2\pi l S}. \quad (3)$$

Величина k_s составила $120 \pm 5 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ при 300 К. На рисунке 3 представлена температурная зависимость теплопроводности k_{eff} двух пленок УНС толщиной $t = 400$ и 1000 нм в диапазоне от 280 до 310 К. Для измерений использовалась пара нагревателей с ширинами 20 и 40 мкм для образца толщиной 1000 нм и ширинами 5 и 10 мкм для образца толщиной 400 нм соответственно. При температуре 300 К теплопроводность двух слоев отличается более чем в 7 раз: $5.9 \pm 0.6 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ для образца толщиной

1000 нм и $0.79 \pm 0.11 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ для образца толщиной 400 нм.

Следует отметить, что измеряемая методом 3-омега амплитуда температурных колебаний определяется полным тепловым сопротивлением между нагревателем и подложкой. Помимо теплового сопротивления тонкой углеродной пленки, в общее сопротивление вклады вносят также граничные тепловые сопротивления между слоями структуры и сопротивления дополнительных слоев (изолирующий слой оксида гафния). Величину теплового сопротивления изолирующего слоя оксида гафния толщиной 40 нм в нашем случае можно оценить как $25 \text{ м}^2 \text{ К/ГВт}$ [37]. Теплопроводность измеряемых УНС с учетом вклада теплового сопротивления, вносимого изолирующим слоем HfO_2 , можно пересчитать как [25]:

$$\kappa_{\text{CNW eff}} = \frac{t}{R_{\text{meas}} - R_{\text{HfO}_2}}, \quad (4)$$

где $R_{\text{meas}} = t/k_{\text{eff}}$ – измеренная величина полного теплового сопротивления, а $R_{\text{HfO}_2} = 40 \text{ нм}$. Тогда величины теплопроводности для двух пленок составляют $6.9 \pm 0.7 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ и $0.82 \pm 0.12 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$ соответственно. В случае пористого материала, каким является УНС, определенная величина эффективной теплопроводности из-за наличия полостей отличается от величины теплопроводности непосредственно углеродной наноструктуры. Для учета вклада пористости в величину теплопроводности воспользуемся приближением эффективной среды, в рамках которой теплопроводность УНС определяется как [38]:

$$\kappa_{\text{CNW}} = \frac{\kappa_{\text{CNW eff}}}{\Phi}, \quad (5)$$

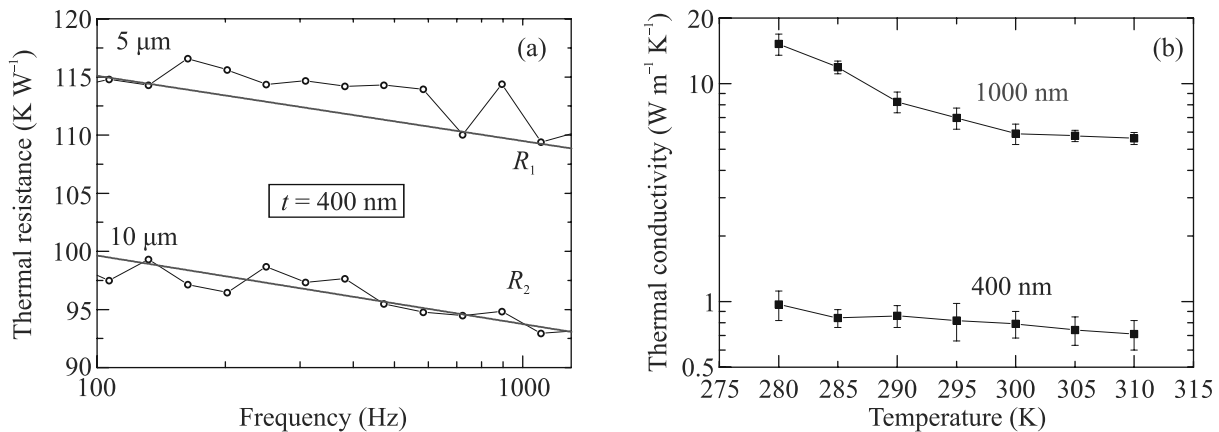


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость теплового сопротивления R от частоты для пары нагревателей толщиной 5 и 10 мкм на пленке толщиной 400 нм при температуре 285 К. (б) – Зависимость теплопроводности пленок толщиной 400 и 1000 нм от температуры

где Φ – доля твердой фазы УНС. В нашем случае она составила ~ 0.3 , тогда величины теплопроводности для двух пленок составляют 23 ± 2.4 и 2.7 ± 0.4 Вт м⁻¹ К⁻¹ соответственно.

Полученные результаты согласуются с результатами предыдущих работ. Так, в работе [25], где измерения УНС проводились с использованием лазерной методики, величина эффективной теплопроводности для слоя УНС толщиной 1000 нм составила 7 Вт м⁻¹ К⁻¹. В нашем случае теплопроводность структур такой же толщины составляет $6.9 \pm \pm 0.7$ Вт м⁻¹ К⁻¹. Значение теплопроводности для более тонких структур отличается: рассчитанная в [25] величина эффективной теплопроводности для слоя толщиной 400 нм составляет около 2 Вт м⁻¹ К⁻¹, что примерно в 2 раза выше измеренного нами значения для подобных пленок. Такое отличие связано со структурным совершенством УНС и их морфологией. Как показано выше, в нашем случае наблюдается изменение размеров нанокристаллических доменов с 10 до 17 нм для структур толщиной 400 и 1000 нм. Соотношение I_D/I_G в работе [33] составляет ~ 1.2 , что соответствует размеру нанокристаллических доменов ~ 10 нм. Также имеются отличия в положении мод 2D и G в соотношениях I_{2D}/I_G . Данное обстоятельство говорит о разном количестве графеновых слоев в единичном листе УНС. Как показано в работе [39], в случае углеродных наноструктур рассеяние фононов на границе в таких материалах не является полностью диффузным, что может заметно отразиться на зависимости теплопроводности от размера структуры. Помимо этого, структуры характеризуются разной плотностью и ориентацией относительно подложки. Ориентация и плотность структур приводит к анизотропии свойств и влияет на тепло-

перенос. Например, в графите теплопроводность в базисной плоскости и вдоль оси c отличаются на два порядка [40].

5. Выводы. В работе впервые измерена теплопроводность углеродных наностенок с использованием метода 3-омега. Показано, что в случае плазмохимического синтеза в разряде постоянного тока теплопроводность возрастает с увеличением толщины структур, что связано с разным структурным совершенством пленок, которое влияет на рассеяние фононов на дефектах. При комнатной температуре теплопроводность углеродных наностенок толщиной 400 и 1000 нм составляет 0.82 ± 0.12 Вт м⁻¹ К⁻¹ и 6.9 ± 0.7 Вт м⁻¹ К⁻¹. Таким образом, теплопроводность углеродных наностенок зависит от толщины пленки. Соответственно, при использовании углеродных наностенок в качестве теплоотводов необходимы более толстые структуры.

Получение и исследование дефектности углеродных наностенок выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда # 22-73-10198.

1. P. Lall, M. Pecht, and E. Hakim, *Influence of Temperature on Microelectronics and System Reliability*, CRC Press, N.Y. (1997).
2. A. Inyushkin, A. Taldenkov, V. Ralchenko, A. Bolshakov, A. Koliadin, and A. Katrusha, *Phys. Rev. B* **97**, 144305 (2018).
3. A. A. Balandin, *Nature Mater* **10**, 569 (2011).
4. А.И. Подливаев, К.С. Гришаков, К.П. Катин, М.М. Маслов, Письма в ЖЭТФ **114**, 172 (2021) [JETP Lett. **114**, 143 (2021)].
5. А.И. Подливаев, К.С. Гришаков, К.П. Катин, М.М. Маслов, Письма в ЖЭТФ **113**, 182 (2021) [JETP Lett. **113**, 169 (2021)].

6. А. И. Подливаев, Письма в ЖЭТФ **115**, 384 (2022).
7. N. D. Orekhov, J. V. Bondareva, D. O. Potapov et al. (Collaboration), Carbon **191**, 546 (2022).
8. N. Orekhov and M. Logunov, Carbon **192**, 179 (2022).
9. V. M. Egorov, A. K. Borisov, and V. A. Marikhin, Technical Physics Letters **48**, 49 (2022).
10. A. N. Enyashin, G. Seifert, and A. L. Ivanovskii, JETP Lett. **80**, 608 (2004).
11. H. Malekpour, P. Ramnani, S. Srinivasan, G. Balasubramanian, D. L. Nika, A. Mulchandani, R. K. Lake, and A. A. Balandin, Nanoscale **8**, 14608 (2016).
12. T. Chen, Y. Huang, L. Wei, T. Xu, and Y. Xie, Carbon **203**, 130 (2023).
13. Y. Wu, B. Yang, B. Zong, H. Sun, Z. Shen, and Y. Feng, J. Mater. Chem. **14**, 469 (2004).
14. M. Hiramatsu and M. Hori, *Carbon Nanowalls: Synthesis and Emerging Applications*, Springer Science & Business Media, Wien (2010).
15. S. Evlashin, M. Tarkhov, D. Chernodubov, A. Inyushkin, A. Pilevsky, P. Dyakonov, A. Pavlov, N. Suetin, I. Akhatov, and V. Perebeinos, Phys. Rev. Appl. **15**, 054057 (2021).
16. A. M. Mumlyakov, M. V. Shibalov, E. R. Timofeeva, I. V. Trofimov, N. V. Porokhov, S. A. Evlashin, P. A. Nekludova, E. A. Pershina, Yu. V. Anufriev, A. M. Tagachenkov, E. V. Zenova, and M. A. Tarkhov, Carbon **184**, 698 (2021).
17. S. Evlashin, S. Svyakhovskiy, N. Suetin, A. Pilevsky, T. Murzina, N. Novikova, A. Stepanov, A. Egorov, and A. Rakhimov, Optical and IR Absorption of Multilayer Carbon Nanowalls, Carbon **70**, 111 (2014).
18. H. J. Cho, H. Kondo, K. Ishikawa, M. Sekine, M. Hiramatsu, and M. Hori, Carbon **68**, 380 (2014).
19. K. Kobayashi, M. Tanimura, H. Nakai, A. Yoshimura, H. Yoshimura, K. Kojima, and M. Tachibana, J. Appl. Phys. **101**, 094306 (2007).
20. V. A. Krivchenko, S. A. Evlashin, K. V. Mironovich, N. I. Verbitskiy, A. Nefedov, C. Wöll, A. Ya. Kozmenkova, N. V. Suetin, S. E. Svyakhovskiy, D. V. Vyalikh, A. T. Rakhimov, A. V. Egorov, and L. V. Yashina, Sci. Rep. **3**, 1 (2013).
21. M. Hiramatsu, S. Mitsuguchi, T. Horibe, H. Kondo, M. Hori, and H. Kano, Jpn. J. Appl. Phys. **52**, 01AK03 (2013).
22. W. Wei and Y. H. Hu, J. Mater. Chem. A **5**, 24126 (2017).
23. V. A. Krivchenko, D. M. Itkis, S. A. Evlashin, D. A. Semenenko, E. A. Goodilin, A. T. Rakhimov, A. S. Stepanov, N. V. Suetin, A. A. Pilevsky, and P. V. Voronin, Carbon **50**, 1438 (2012).
24. Y. Zhang, L. Tan, H. Yin, G. Zhang, and J. Liu, *Experimental Measurements of Thermal Performances of Carbon Nanomaterial with Vertical Structures in Hotspot Heat Dissipation*, in *2019 IEEE 19th International Conference on Nanotechnology (IEEE-NANO)*, Institute of Electrical and Electronics Engineers, Macao, China (2019), p. 370.
25. A. Achour, B. E. Belkerk, K. Ait Aissa, S. Vizireanu, E. Gautron, M. Carette, P.-Y. Jouan, G. Dinescu, L. Le Brizoual, Y. Scudeller, and M.-A. Djouadi, Appl. Phys. Lett. **102**, 061903 (2013).
26. A. Bilusic, S. Gradecak, A. Tonejc, A. Tonejc, J. Lasjaunias, and A. Smontara, Synth. Met. **121**, 1121 (2001).
27. J. Lasjaunias, M. Saint-Paul, A. Bilušić, A. Smontara, S. Gradečak, A. Tonejc, A. Tonejc, and N. Kitamura, Phys. Rev. B **66**, 014302 (2002).
28. S. A. Evlashin, F. S. Fedorov, P. V. Dyakonov et al. (Collaboration), J. Phys. Chem. Lett. **11**, 4859 (2020).
29. A. M. Mumlyakov, M. V. Shibalov, I. V. Trofimov, M. G. Verkholeto, A. P. Orlov, G. D. Diudbin, S. A. Evlashin, P. A. Nekludova, Yu. V. Anufriev, A. M. Tagachenkov, E. V. Zenova, and M. A. Tarkhov, J. Alloys Compd. **858**, 157713 (2021).
30. P. Dyakonov, K. Mironovich, S. Svyakhovskiy, O. Voloshina, S. Dagesyan, A. Panchishin, N. Suetin, V. Bagratashvili, P. Timashev, E. Shirshin, and S. Evlashin, Sci. Rep. **7**, 1 (2017).
31. D. G. Cahill, Rev. Sci. Instrum. **61**, 802 (1990).
32. D. A. Chernodubov and A. V. Inyushkin, Rev. Sci. Instrum. **90**(2), 024904 (2019).
33. J. Alvarez-Quintana and J. Rodriguez-Viejo, Sensors and Actuators A: Physical **142**, 232 (2008).
34. D. A. Chernodubov, I. O. Maiboroda, M. L. Zanaevskiy, and A. V. Inyushkin, Phys. Solid State **62**, 722 (2020).
35. L. G. Cancado, K. Takai, T. Enoki, M. Endo, Y. A. Kim, H. Mizusaki, A. Jorio, L. N. Coelho, R. Magalhães-Paniago, and M. A. Pimenta, Appl. Phys. Lett. **88**, 163106 (2006).
36. C. Dames, Annual Review of Heat Transfer **16**, 7 (2013).
37. M. A. Panzer, M. Shandalov, J. A. Rowlette, Y. Oshima, Y. W. Chen, P. C. McIntyre, and K. E. Goodson, IEEE Electron Device Letters **30**, 1269 (2009).
38. M. T. Barako, A. Sood, C. Zhang, J. Wang, T. Kodama, M. Asheghi, X. Zheng, P. V. Braun, and K. E. Goodson, Nano Lett. **16**, 2754 (2016).
39. D. L. Nika, A. S. Askerov, and A. A. Balandin, Nano Lett. **12**, 3238 (2012).
40. G. A. Slack, Phys. Rev. **127**, 694 (1962).

Генезис коллективных возбуждений в спектрах проводимости высших боридов RB_6 и RB_{12} с кооперативной структурной неустойчивостью¹⁾

М. А. Макрушин^{†*}, П. И. Арсеев[×], К. М. Красилов⁺⁺²⁾, Л. С. Кадыров[°], Е. С. Жукова[°], Н. Е. Случанко⁺

⁺Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

^{*}Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

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

[°]Центр фотоники и двумерных материалов, Московский физико-технический институт (Государственный университет), 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 17 октября 2022 г.

После переработки 13 февраля 2023 г.

Принята к публикации 14 февраля 2023 г.

Для описания аномалий в спектрах динамической проводимости высших боридов RB_6 и RB_{12} с ян-теллеровской структурной неустойчивостью предложена модель, основанная на дипольном характере воздействия согласованных колебаний решетки на электронный транспорт. Представлено сравнение результатов моделирования с экспериментальными спектрами, выполнены оценки параметров кристаллов.

DOI: 10.31857/S1234567823060095, EDN: qszlpr

1. Исследования оптической проводимости редкоземельных (РЗ) высших боридов RB_6 и RB_{12} позволили установить, что наряду с друдевской компонентой $\sigma(\omega)$ в этих металлах в инфракрасной (ИК) области частот $200\text{--}1500\text{ см}^{-1}$ наблюдается дополнительный вклад значительной амплитуды, который может быть описан набором из 2–4 лоренцианов, отвечающих модели “переторможенных осцилляторов” [1–4]. В [5, 6] было показано, что в РЗ додекаборидах обнаруженные в спектрах $\sigma(\omega)$ коллективные моды возникают в условиях кооперативной ян-теллеровской (ЯТ) структурной неустойчивости жесткого борного ковалентного каркаса. В [7] ЯТ статические и динамические искажения были обнаружены в GdB_6 . В [1–4] было показано, что в высших боридов RB_6 и RB_{12} значительная (70–90 %) часть зонных электронов участвует в этих коллективных возбуждениях. Кроме того, для LaB_6 в [1] было высказано предположение об определяющей роли неравновесных носителей заряда в достижении рекордных параметров термоэмиссии электронов в этом материале, традиционно используемом в качестве термокатодов в приборах и устройствах электронной техники [8, 9].

Поскольку феноменологический подход, используемый в [1–4] для моделирования коллективных мод в спектрах $\sigma(\omega)$, весьма ограничен и не учитывает реальных процессов, приводящих к аномалиям свойств RB_6 и RB_{12} , представляется важным предложить теоретическое описание механизмов, обуславливающих возникновение указанных особенностей ИК проводимости. Принимая во внимание, что динамический ЯТ-эффект в высших РЗ боридов наблюдается вдоль выделенного направления (в RB_{12} , например, вдоль тригональной оси [5, 6]), кажется обоснованным использование одномерного приближения.

2. Для описания электронного транспорта воспользуемся уравнением Больцмана в τ -приближении

$$(\partial_t + (F_1 + F_2)\partial_p)(n_0 + \delta n) = -\frac{\delta n}{\tau}, \quad (1)$$

где n_0 – равновесная плотность распределения электронного газа, δn – неравновесная поправка, $F_1 = eE_0 e^{-i\omega t}$ – воздействие внешнего поля на электроны, $F_2 = eE_x$ – дипольная сила, действующая на электроны со стороны ионной компоненты в исследуемых высших боридов. Отметим, что явный вид равновесного распределения n_0 в рамках задачи не имеет значения, важно лишь, что оно стационарное, причем функция достаточно быстро убывает с увеличением импульса.

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

²⁾e-mail: krasikokirill@yandex.ru

Таблица 1. Параметры Друде вклада σ_0 и результата аппроксимации коллективных возбуждений соотношением (6)

	YbB ₆ (L1)	YbB ₆ (L2)	YbB ₆ (L3)	YbB ₆ (L4)	Y ^{nat} B ₆	LuB ₁₂
$\sigma_{DC}, \Omega^{-1} \text{ см}^{-1}$	160				27027	95000
$\gamma_D, \text{ см}^{-1}$	640				135	290
$a, \Omega^{-1} \text{ см}^{-4}$	-7.4×10^7	-2.13×10^9	-1.2×10^9	-6.1×10^9	-3.9×10^{15}	-1.33×10^{14}
$\omega_0, \text{ см}^{-1}$	136.3	281	481	657	528	400
$z, \text{ см}^{-1}$	39	189.6	94	178.1	27012	5366
$\gamma, \text{ см}^{-1}$	75.4	190	234	369.3	2289	965

Для описания динамики диполей используем феноменологическую модель гармонического осциллятора с затуханием в комплексной форме

$$M\ddot{x} + kx + \alpha\dot{x} = qE_0 e^{-i\omega t}, \quad (2)$$

где x – координата (одномерный случай), M и q – масса и заряд диполя, k и α – феноменологические параметры, соответствующие коэффициентам жесткости и трения. Тогда дипольное поле определяется как

$$E_x = Qx = \frac{Qq}{M} \frac{E_0 e^{-i\omega t}}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2iz\omega}, \quad (3)$$

где Q – коэффициент пропорциональности, $\omega_0^2 = \frac{k}{M}$ – квадрат собственной частоты и $z_0^2 = \frac{\alpha}{2\sqrt{kM}}$ – параметр затухания колебаний. Решение уравнения (1) можно получить методом последовательных приближений, в котором обе силы и возмущения плотности рассматриваются, как поправки первого порядка, пропорциональные переменному электрическому полю: $\delta n \sim F \sim E \sim e^{-i\omega t}$. Оставляя слагаемые первого порядка, получаем

$$\left(-i\omega\delta n + (F_1 + F_2)\partial_p(n_0) \right) = -\frac{\delta n}{\tau}. \quad (1a)$$

Решение (1a) дает изменение распределения электронной плотности в виде

$$\delta n = -\tau\partial_p(n_0) \frac{F_1 + F_2}{1 - i\omega\tau}. \quad (4)$$

Реальная часть проводимости, полученная из условия для плотности тока $j(\omega) = \int \delta n(\omega) p dp$, имеет вид

$$\text{Re}[\sigma(\omega)] = \sigma_0(\omega) \left(1 + \frac{(qQ/M)((\omega_0^2 - \omega^2) - 2\tau z\omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4z^2\omega^2} \right), \quad (5)$$

где $\sigma_0(\omega) = \frac{\sigma_{DC}}{1 + \omega^2\tau_D^2}$ – классическая проводимость в модели Друде, σ_{DC} и τ_D – проводимость на постоянном токе и время релаксации свободных носителей заряда соответственно. Поправка к проводимости (см. второе слагаемое в уравнении (5)) для даль-

нейшей аппроксимации экспериментальных кривых, полученных в [1–4], была представлена в виде

$$\text{Re}[\delta\sigma(\omega)] = \frac{a(\gamma(\omega_0^2 - \omega^2) - 2z\omega^2)}{((\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4z^2\omega^2)(\gamma^2 + \omega^2)}, \quad (6)$$

где a – коэффициент пропорциональности, γ – скорость релаксации электронов, взаимодействующих с колебаниями решетки. Подчеркнем, что в обобщенном подходе время релаксации $\tau = 1/\gamma$ в поправке к проводимости, учитывающей взаимодействие, отличается от первоначального τ_D в друдевском вкладе. Отметим также, что предложенная модель позволяет учесть поправки, возникающие в более высоких порядках малости по полю E (см., например, раздел “Estimation of the lattice contribution to the optical conductivity” в дополнительных материалах). В частности, электрон-электронные эффекты и эффекты, возникающие при воздействии электронных плотностей на решетку, проявляются в 3-м и более высоких порядках. Вклады от слагаемых четных порядков отсутствуют в силу импульсной симметрии равновесного распределения электронов n_0 .

3. При моделировании в работе использовались экспериментальные спектры $\sigma(\omega)$, измеренные для LuB₁₂ [1], Gd_xLa_{1-x}B₆ [3] и YB₆ и YbB₆ [4], причем в [1, 3, 4] в результате анализа спектров проводимости путем вычитания друдевской компоненты были выделены вклады, отвечающие коллективным модам в указанных высших боридов. На рисунке 1a, b и c показаны результаты моделирования найденных в [1, 4] для YbB₆, YB₆, LuB₁₂ коллективных возбуждений в спектрах $\delta\sigma(\omega)$ неравновесной поправкой (6) к проводимости. Как видно из рис. 1a (см. также [4]), в спектре $\sigma(\omega)$ легированного полупроводника YbB₆ надежно разрешаются сразу несколько коллективных мод, поскольку в этом случае ЯТ-колебания слабо экранируются вследствие низкой концентрации носителей заряда. В таблице 1 представлены найденные в [1, 4] параметры σ_{DC} и τ_D классической модели Друде и результат моделирования коллективных возбуждений соотношением (6). Отметим, что при аппроксимации фиксировалась частота пика ω_0 , то-

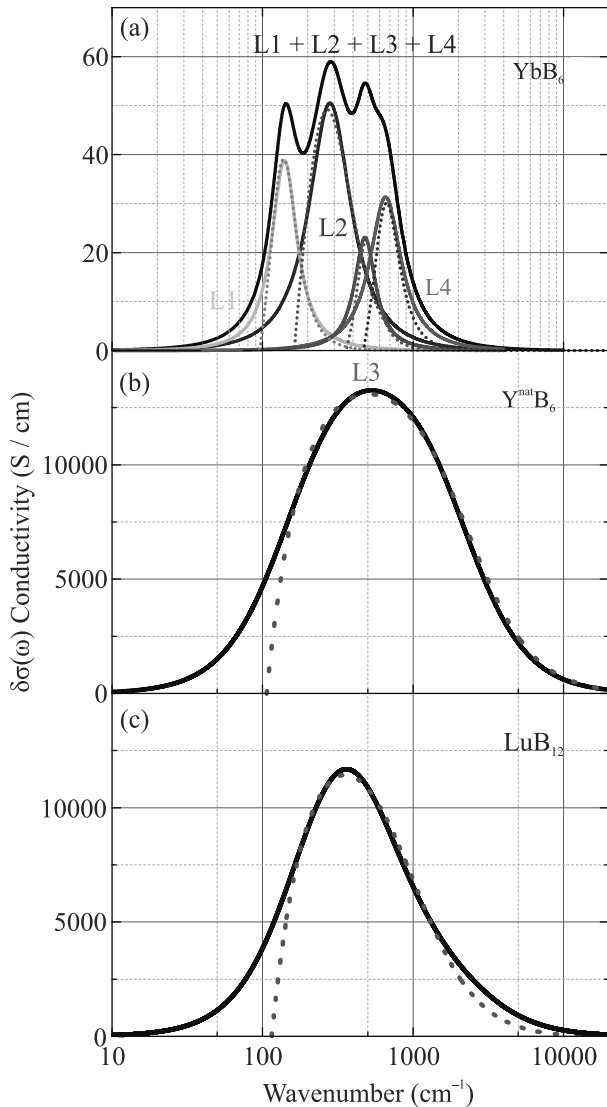


Рис. 1. (Цветной онлайн) Вклады коллективных возбуждений (черные линии), полученные вычитанием Друде компоненты $\sigma_0(\omega)$ из экспериментальных спектров оптической проводимости [1, 4] и модельные кривые (пунктирные линии), отвечающие поправке (6) для: (a) – YbB_6 , (b) – YB_6 и (c) – LuB_{12} . На панели (a) соотношением (6) аппроксимированы все четыре пика в $\delta\sigma(\omega)$

гда как остальные параметры рассматривались как свободные.

На рисунке 2a–f представлены результаты моделирования соотношением (6) коллективных возбуждений в спектрах $\sigma(\omega)$ соединений ряда $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ [3], а на рис. 3 приведены концентрационные зависимости параметров модели.

Очевидно, поправка к проводимости (6) достаточно хорошо описывает экспериментальные спектры в широкой окрестности максимумов $\delta\sigma(\omega)$ (см. рис. 1, 2). Напротив, при низких частотах в моде-

ли (6) дополнительный вклад в результирующую проводимость становится отрицательным. Появление отрицательной поправки в низкочастотной области спектра в данной модели физически соответствует изменению полярности поля введенных диполей при отклике на низкочастотное внешнее поле. Однако отрицательный низкочастотный вклад не может быть по абсолютной величине больше друдевской компоненты, что свидетельствует об ограничениях используемой нами модели. Видимо, для более точной картины необходим учет нелинейности осциллятора, моделирующего ян-теллеровские моды. Также довольно грубым приближением является постулированное описание взаимодействия коллективных мод с электронами через появление дополнительного поля диполей, в то время, как более точно учтенное взаимодействие могло бы приводить к модели с зависящими от частоты эффективными параметрами $Q(\omega)$ и $a(\omega)$.

4. Отметим прежде всего, что в интервале составов $x(\text{Gd}) \sim 2\text{--}10\%$ в $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ наблюдается значительный рост параметров модели (6), что, по-видимому, свидетельствует об образовании колебательно связанных цепочек ионов Gd, приводя к резкому уменьшению размера (массы) борного колебательного кластера и, соответственно, частоты ω_0 коллективной моды. Действительно, при случайном распределении ионов Gd в $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$, используя для оценки ожидаемой концентрации пар РЗ ионов соотношение из комбинаторики $n_{\text{Gd-Gd}} = x(1 - (1 - x)^z)$ ($z = 6$ – координационное число в простой кубической решетке), легко показать, что в диапазоне $x \sim 2\text{--}10\%$ наблюдается значительный рост количества коротких цепочек (пар) ионов Gd в матрице гексаборида (см. Дополнительные материалы), что согласуется с интервалом резких изменений $\omega_0(x)$ (см. рис. 3a).

Учитывая заметные различия постоянных решетки кубической структуры $a_c(\text{GdB}_6) \approx 4.111 \text{ \AA}$ и $a_c(\text{LaB}_6) \approx 4.156 \text{ \AA}$, формирование коротких цепочек ионов Gd в матрице $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ должно приводить к значительным структурным искажениям. Аргументы в пользу искажений решетки GdB_6 были представлены в [6], где было показано, что в этом соединении наблюдается переход к квантовому диффузионному режиму зарядового транспорта, когда длина свободного пробега носителей становится меньше постоянной решетки кубической структуры $a_c(\text{GdB}_6) \approx 4.1 \text{ \AA}$. Подчеркнем также, что в [10, 11] для GdB_6 были найдены максимальные в ряду гексаборидов величины среднеквадратичных атомных смещений и минимальные значения энергии квази-

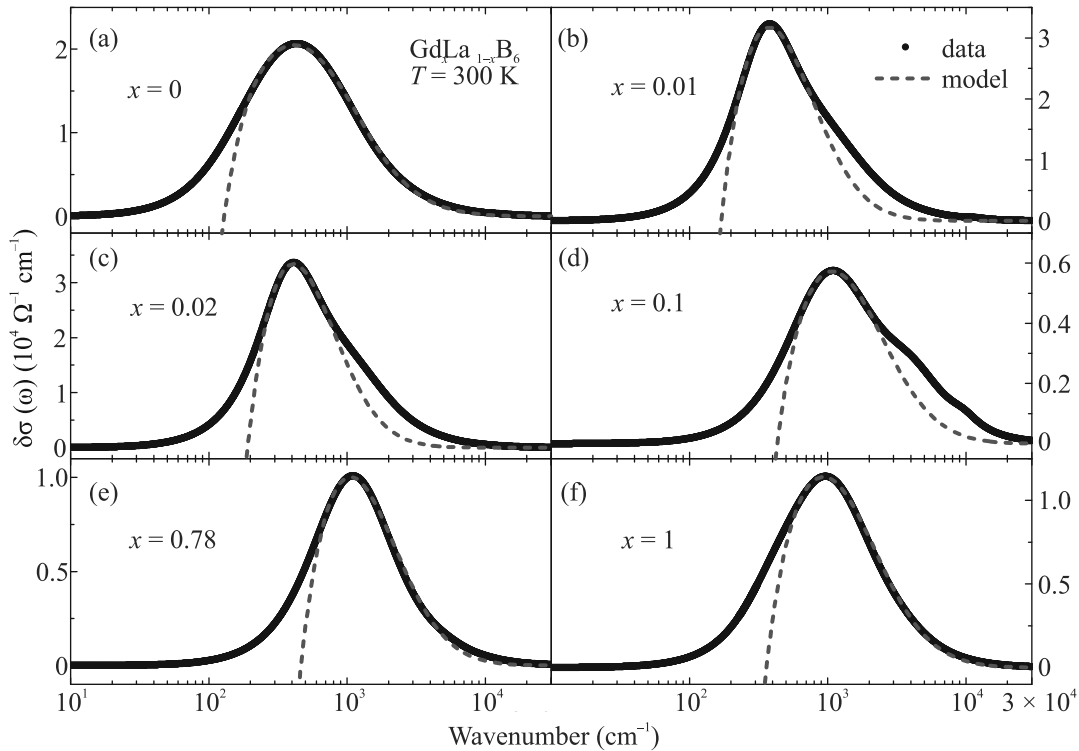


Рис. 2. (Цветной онлайн) Вклад коллективных возбуждений (черные линии), полученный вычитанием Друде компоненты $\sigma_0(\omega)$ из экспериментальных спектров оптической проводимости [3], и модельная кривая (пунктир), отвечающая поправке (6) для $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ различного состава: (a) – LaB_6 , (b) – $x = 0.01$, (c) – $x = 0.02$, (d) – $x = 0.1$, (e) – $x = 0.78$ и (f) – GdB_6

локальной моды РЗ ионов, характеризующие развитие структурной неустойчивости и близость к фазовому переходу 1-го рода. Кроме того, при анализе результатов неупругого рентгеновского рассеяния было показано [12], что уже при $T = 300 \text{ K}$ потенциал в окрестности иона Gd^{3+} становится ангармоническим и наблюдается значительное смягчение фононных мод. В [6, 13–15] были сделаны выводы о разупорядочении РЗ ионов в полостях кубооктаэдров B_{24} жесткого борного каркаса GdB_6 и о формировании колебательно связанных пар Gd-Gd . Таким образом, можно предположить, что именно значительные структурные искажения в решетке $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ в окрестности пар Gd-Gd и обусловленное ими разупорядочение являются причиной резкого изменения частоты коллективной моды в интервале составов $x(\text{Gd}) \sim 2\text{--}10\%$, модифицируя параметры модели (6) для неравновесной поправки к проводимости.

С использованием соотношения (6) из частоты коллективной моды может быть получена оценка параметров колебательного кластера, участвующего в коллективной моде. При этом для расчета приведенной массы осциллятора μ^* в додекабориде LuB_{12} нами использовалось среднее значение силовой кон-

станты $f = 1/2(f_{\text{inter}} + f_{\text{intra}}) \sim 160 \text{ Н} \cdot \text{м}^{-1}$, где f_{intra} и f_{inter} отвечают взаимодействию в борном каркасе в кластерах B_{12} и между ними соответственно [16]. В результате для LuB_{12} с $\omega_0 = 400 \text{ см}^{-1}$ (рис. 1с и табл. 1) было получено значение $\mu^* \sim 60 M_{\text{B}}$ (M_{B} – масса атома бора), отвечающее 5-ти связанным кластерам B_{12} , что в направлении тригональной оси соответствует $\sim 15 \text{ \AA}$ (около 2-х постоянных решетки $a_c(\text{LuB}_{12}) \approx 7.5 \text{ \AA}$). Отметим, что в [17] из анализа спектров комбинационного рассеяния света в LuB_{12} для размера колебательного кластера было получено несколько большее значение $\sim 20 \text{ \AA}$ (~ 3 постоянных решетки). Указанное различие, по-видимому, свидетельствует об ограничениях используемого в настоящей работе одномерного приближения.

Аналогично нами были выполнены оценки приведенной массы колебательного кластера для $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$. При этом значения силовых констант в ряду твердых растворов были получены из условия линейного уменьшения $f(\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6)$ между значениями $f(\text{LaB}_6) = 182 \text{ Н} \cdot \text{м}^{-1}$ и $f(\text{GdB}_6) = 163 \text{ Н} \cdot \text{м}^{-1}$, найденными из анализа спектров комбинационного рассеяния в [18] для межборного взаимодействия в этих кристаллах

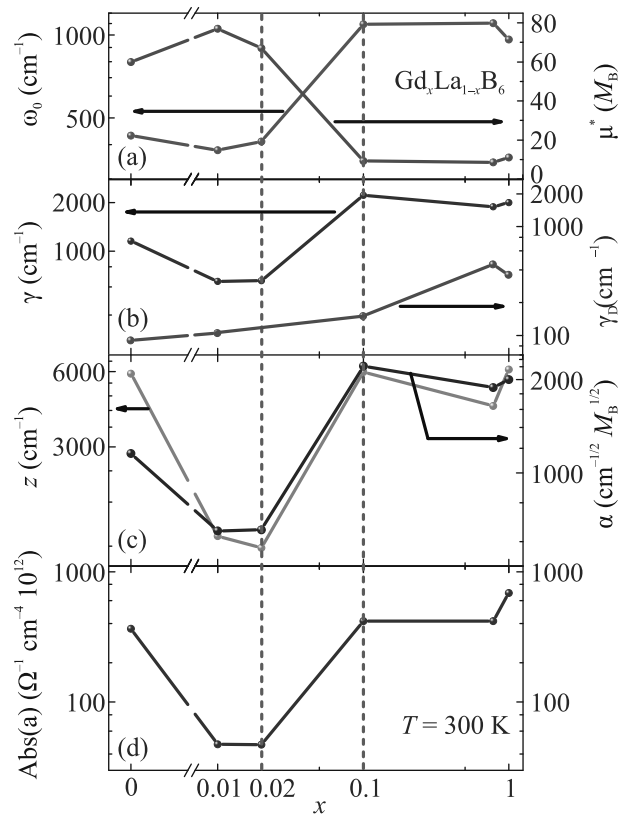


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а)–(д) – Параметры модели (6) для $Gd_xLa_{1-x}B_6$ различного состава x . Диапазон между вертикальными пунктирными линиями показывает область, отвечающую резкому росту концентрации Gd-Gd пар (см. Дополнительные материалы)

гексаборидов. Подчеркнем еще раз, что вычисления носят исключительно оценочный характер, поскольку нами используется одномерная модель без учета межионного взаимодействия в кристалле. Полученные массы μ^* колебательных кластеров приведены на рис. 3а (правая ось), на рис. 3б представлено сравнение скорости релаксации друдеских носителей $\gamma_D(x)$ и $\gamma(x)$ неравновесных электронов, взаимодействующих с колебаниями решетки. Как видно из рис. 3а, рост частоты коллективной моды в интервале составов $x(Gd) \sim 2\text{--}10\%$ отвечает уменьшению массы кластера μ^* в 6–8 раз, свидетельствуя о резком уменьшении его размера (см. также рис. 1 в дополнительных материалах). Отметим также, что в $Gd_xLa_{1-x}B_6$ скорость релаксации в друдеском канале $\gamma_D(x)$ оказывается в 2–5 раз ниже аналогичного параметра $\gamma(x)$, найденного для коллективной моды (см. рис. 3б). Столь значительное различие релаксационных характеристик, очевидно, свидетельствует о сильном электрон-фононном рассеянии в коллективной моде, определяемой поправкой (6). На рисунке 3с, наряду с коэффициентом затуха-

ния z , показаны также полученные нами оценки коэффициента трения α .

В завершении представляет интерес сравнить относительную долю неравновесных носителей, взаимодействующих с ионной компонентой (см. (6)), в общей концентрации электронов проводимости. С этой целью в работе использовалось оптическое правило сумм (см., например, [19]), интегрирование экспериментальных и модельных (6) спектров проводимости выполнялось для соединений LaB_6 , YbB_6 , YbB_6 , GdB_6 , и LuB_{12} . Результаты анализа (см. табл. 2) свидетельствуют об определяющем вкладе от взаимодействующих носителей ($n_{peak}/(n_{Drude} + n_{peak}) > 60\%$) в зарядовый транспорт высших боридов с металлической проводимостью, тогда как для полупроводника YbB_6 доминирующей оказывается друдеская компонента.

Таблица 2. Относительная доля взаимодействующих с колебаниями решетки носителей (n_{peak}) к общему числу электронов проводимости ($n_{Drude} + n_{peak}$)

	LaB_6	YbB_6	YbB_6	GdB_6	LuB_{12}
$n_{peak}/(n_{Drude} + n_{peak})$	65 %	87 %	17 %	63 %	62 %

5. Предложена одномерная модель для описания аномалий в спектрах динамической проводимости гексаборидов редкоземельных и переходных металлов (RB_6) и додекаборида LuB_{12} с кооперативной янтеллеровской структурной неустойчивостью кластеров бора. Используемый подход основан на учете дипольного характера воздействия на электроны проводимости со стороны ионной компоненты, участвующей в согласованных колебаниях борного каркаса. Получено соотношение для поправки к динамической проводимости. Представлено сравнение результатов моделирования с экспериментальными спектрами $\sigma(\omega)$, выполнены оценки размеров колебательных кластеров, скорости релаксации и коэффициента затухания в различных кристаллах RB_6 и RB_{12} .

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда # 22-22-00243.

Авторы признательны В. В. Глушкову и С. В. Демишеву за полезные дискуссии. Ленар Сагдатуллоевич Кадыров благодарит поддержку стипендии Президента Российской Федерации молодым ученым и аспирантам (Конкурс СП-2021).

1. B. P. Gorshunov, E. S. Zhukova, G. A. Komandin, V. I. Torgashev, A. V. Muratov, Yu. A. Aleshchenko, S. V. Demishev, N. Yu. Shitsevalova, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, JETP Lett. **107**, 100 (2018); DOI:10.1134/S0021364018020029.

2. E. S. Zhukova, B. P. Gorshunov, G. A. Komandin, L. N. Alyabyeva, A. V. Muratov, Yu. A. Aleshchenko, M. A. Anisimov, N. Yu. Shitsevalova, S. E. Polovets, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, JETP Lett. **110**, 79 (2019).
3. E. S. Zhukova, B. P. Gorshunov, G. A. Komandin, L. N. Alyabyeva, A. V. Muratov, Yu. A. Aleshchenko, M. A. Anisimov, N. Yu. Shitsevalova, S. E. Polovets, V. B. Filipov, V. V. Voronov, and N. E. Sluchanko, Phys. Rev. B **100**, 104302 (2019).
4. Н. Е. Случанко, Е. С. Жукова, Л. Н. Алябьева, Б. П. Горшунов, А. В. Муратов, Ю. А. Алещенко, А. Н. Азаревич, М. А. Анисимов, Н. Ю. Шицевалова, С. Е. Половец, В. Б. Филипов, ЖЭТФ **163**, 172 (2023).
5. N. B. Bolotina, A. P. Dudka, O. N. Khrykina, and V. S. Mironov, *Crystal structure of dodecaborides: Complexity in simplicity*, in *Rare-Earth Borides*, ed. by D. S. Inosov, Jenny Stanford Publishing, Singapore (2021), ch. 3, p. 293; <https://doi.org/10.48550/arXiv.2010.16239>.
6. O. N. Khrykina, A. P. Dudka, N. B. Bolotina, N. E. Sluchanko, and N. Yu. Shitsevalova, Sol. State Sci. **107**, 106273 (2020).
7. N. B. Bolotina, A. P. Dudka, O. N. Khrykina, V. V. Glushkov, A. N. Azarevich, V. N. Krasnorussky, S. Gabani, N. Yu. Shitsevalova, A. V. Dukhnenko, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, Phys. Rev. B **100**, 205103 (2019).
8. M. Bakr, R. Kinjo, Y. W. Choi, M. Omer, K. Yoshida, S. Ueda, M. Takasaki, K. Ishida, N. Kimura, T. Sonobe, T. Kii, K. Masuda, H. Ohgaki, and H. Zen, Phys. Rev. Special Topics – Accelerators and Beams **14**, 060708 (2011); DOI: 10.1103/PhysRevSTAB.14.060708.
9. M. Trenary, Sci. Tech. Adv. Mat. **13**, 023002 (2012).
10. M. Korsukova, JJAP Series **10**, 15 (1994).
11. Y. Takahashi, K. Ohshima, F. P. Okamura, S. Otani, and T. Tanaka, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 2304 (1999).
12. K. Iwasa, R. Igarashi, K. Saito, C. Laulhe, T. Orihara, S. Kunii, K. Kuwahara, H. Nakao, Y. Murakami, F. Iga, M. Sera, S. Tsutsui, H. Uchiyama, and A. Q. R. Baron, Phys. Rev. B **84**, 214308 (2011).
13. А. В. Семено, М. И. Гильманов, Н. Е. Случанко, Н. Ю. Шицевалова, В. Б. Филипов, С. В. Демишев, Письма в ЖЭТФ **108**, 243 (2018).
14. M. Amara, S. E. Luca, R.-M. Galéra, F. Givord, C. Detlefs, and S. Kunii, Phys. Rev. B **72**, 064447 (2005).
15. A. V. Semeno, M. A. Anisimov, A. V. Bogach, S. V. Demishev, M. I. Gilmanov, V. B. Filipov, N. Yu. Shitsevalova, and V. V. Glushkov, Sci. Rep. **10**, 18214 (2020).
16. H. Werheit, V. Filipov, K. Shirai, H. Dekura, N. Shitsevalova, U. Schwarz, and M. Armbruster, J. Phys.: Condens. Matter **23**, 065403 (2011).
17. Н. Е. Случанко, А. Н. Азаревич, А. В. Богач, И. И. Власов, В. В. Глушков, С. В. Демишев, А. А. Максимов, И. И. Тартаковский, Е. В. Филатов, К. Флахбарт, С. Габани, В. Б. Филиппов, Н. Ю. Шицевалова, В. В. Моцалков, ЖЭТФ **140**, 536 (2011).
18. Z. Yahia, S. Turrell, J. Turrell, and J. P. Mercurio, J. Molecular Struct. **224**, 303 (1990).
19. H. Okamura, M. Matsunami, T. Inaoka, T. Nanba, S. Kimura, F. Iga, S. Hiura, J. Klijn, and T. Takabatake, Phys. Rev. B **62**, R13265 (2000).

Радиационное формирование межслоевых перемычек в двухслойном графене

А. И. Подливаев¹⁾

Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 февраля 2023 г.

После переработки 21 февраля 2023 г.

Принята к публикации 21 февраля 2023 г.

В рамках неортогональной модели сильной связи исследован процесс радиационного формирования межслоевых перемычек в двухслойном графене. Показано, что большинство ($\sim 85\%$) образовавшихся перемычек обладают низкой термической устойчивостью, не допускающей возможности их применения в элементах графеновой электроники, работающих при комнатной температуре. Обнаружены три типа устойчивых перемычек, энергии активации их отжига составили 1.50, 1.52 и 2.44 эВ. Оценки по формуле Аррениуса показали, что эти типы перемычек имеют макроскопические времена жизни при комнатной температуре. Установлено, что процесс радиационного образования перемычек в двухслойном графене имеет существенные отличия от аналогичного процесса в графите.

DOI: 10.31857/S1234567823060101, EDN: qtizwu

Введение. Создание монослоя графита – графена [1] с высокой прочностью [2] и проводимостью [3] стимулировало активный поиск других углеродных планарных структур, состоящих из одного или нескольких атомных слоев. Так, в 2019 году была синтезирована двухслойная структура “графен-борофен” [4]. Дальнейшие исследования доказали высокую устойчивость и упругость этой гетероструктуры, полезной для приложений опто- и акустоэлектроники [5, 6]. В 2009 году был предсказан [7], а в 2019 г. синтезирован [8] при нормальном давлении диамант – двухслойная углеродная наноструктура с межслоевыми ковалентными связями. Теоретические исследования показали, что диамант является перспективным материалом для создания резонансных оптических и оптоэлектронных устройств [9]. Исходным материалом при синтезе диаманта является двухслойный графен (Bilayer Graphene, BG), который может широко применяться при создании элементов графеновой электроники.

Синтез BG с управляемой шириной запрещенной зоны [10] вызвал дополнительный интерес к этому материалу. Две графеновые плоскости BG, повернутые друг относительно друга на угол, равный 1.1° , образуют квазидвумерное вещество, отнесенное авторами работы [11] к категории “странных металлов”. Оно обладает линейной температурной зависимостью проводимости и при низких температурах является сверхпроводником [12, 13]. Возмож-

ность управления межзонной щелью вертикальным электрическим полем делает BG перспективным материалом при создании нового типа транзисторов [14, 15]. Возможно использование BG в качестве датчика влажности [16] и поглотителя некоторых ядовитых газов [17].

Контролируемое формирование ковалентных межслоевых связей существенно расширяет спектр возможных применений BG. Формирование предельно возможного числа связей переводит структуру BG в диамант. В работе [18] в рамках теории функционала плотности (*density functional theory*, DFT) проводилось компьютерное моделирование перфорированного различным образом BG. Граничные атомы отверстий различных слоев BG были ковалентно связаны. Результаты этой работы указывают на возможность манипулирования электронными свойствами графеновых материалов на наноуровне для придания им желаемых свойств. В последующей работе [19] методами *ab initio* были рассчитаны упругие модули биграфеновых наносеток из двухслойного графена со сросшими по краям отверстиями. Показано, что предел прочности на разрыв рассмотренных наносеток выше, чем у графеновых наноструктур, и сравним с прочностью биграфена. Рассмотрено также возможное использование таких наносеток в качестве аккумуляторов для хранения водорода. В работе [20] методом DFT определялась проводимость перфорированных BG лент с межслоевыми перемычками. В настоящей работе посредством статического и динамического

¹⁾e-mail: AIPodlivayev@mephi.ru

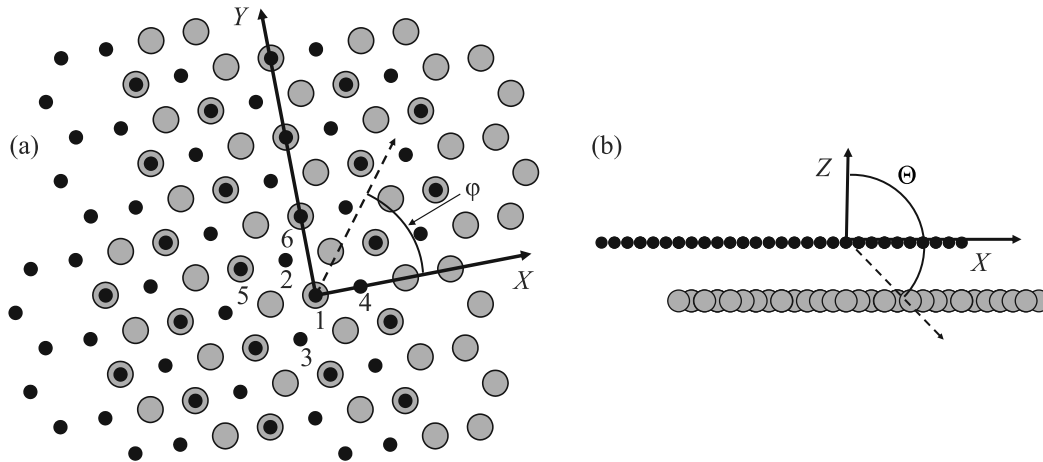


Рис. 1. Расчетная ячейка BG из 128 атомов. Серыми шариками обозначена нижняя графеновая плоскость, черными – верхняя. Вид сверху (a) и боковой вид (b)

моделирования изучается процесс образования межслоевых перемычек в BG под воздействием радиационного облучения, а также термическая устойчивость этих перемычек.

Методы расчета. Для описания межатомного взаимодействия выбрана неортогональная модель сильной связи (*Nonorthogonal Tight-Binding Model* – NTBM, [21]), менее точная, но более быстродействующая, чем первопринципные методы. Программная реализация потенциала NTBM опубликована в работе [22]. Результаты данного подхода хорошо согласуются с результатами DFT для структур, содержащих атомы углерода в состояниях с различными типами гибридизации [23]. Данная модель успешно применялась для исследования множества систем, состоящих из атомов углерода, водорода, азота и кислорода (см., например, работы [24–30] и ссылки в них). Адекватность данного подхода обосновывается также в работе [31]. Введение дисперсионных поправок к этому потенциалу, проведенное в работе [25], позволило адекватно учитывать межслоевое взаимодействие в графите и двухслойном графене. Данная модификация применяется и в настоящей работе.

Для исследования BG использовалась 2×2 сверхъячейка C_{128} , состоящая из двух слоев C_{64} (см. работу [32]). Система декартовых координат выбрана так, что графеновые слои BG перпендикулярны оси Z . На рисунке 1 представлен фронтальный и боковой вид расчетной ячейки с декартовыми и сферическими координатами. Большими серыми шариками обозначены атомы нижней графеновой плоскости, а малыми черными – атомы верхней.

При расчетах использовались периодические граничные условия. Вектора трансляции имеют следу-

ющий вид: $(13.241, 0, 0)$, $(1.918, 13.101, 0)$, $(0, 0, P_Z)$ (Å). Величины периода P_Z в вертикальном направлении при моделировании структуры BG и кристалла графита равны ∞ и 6.7 Å, соответственно.

Ближайшим аналогом BG при изучении радиационных дефектов является графит – элемент атомных реакторов. Радиационные дефекты в графите детально изучались на протяжении нескольких десятков лет. Ключевыми характеристиками процесса образования дефектов являются: E_d – пороговая энергия смещения первично выбитого атома (ПВА) углерода, то есть минимальная кинетическая энергия, получаемая атомом углерода BG от быстрой частицы, при которой образуется устойчивый радиационный дефект; E_{rel} – энергия этого дефекта при нулевой температуре (энергия Вигнера) и E_a – энергия активации отжига данного дефекта. Несмотря на многолетние исследования, данные о характеристиках радиационных дефектов существенно различаются у разных авторов. Наиболее раннее приближение величины $E_d \sim 2E_s$ дано Зейтцем (F. Seitz, 1956 [33]), где E_s – энергия сублимации атома. Для графита величина E_s равна 717 кДж/моль или 7.4 эВ/атом (см., например, [34]). Эта оценка справедлива для адиабатически медленной деформации кристалла в дефектное состояние, а при резком ударе быстрой частицей большая часть кинетической энергии ПВА уходит на нагрев кристалла, поэтому пороговая энергия смещения должна быть больше $(4 \div 5) E_s$ [35]. В обзоре [36] по данным различных источников приведены полный (10 – 60 эВ) и наиболее правдоподобный (15 – 30 эВ) интервалы значения величины E_d . В монографии [35] энергия смещения графита представлена как функция полярного и азимуталь-

ного углов направления движения ПВА. В зависимости от направления, энергия смещения изменяется от 8 до 28 эВ. Усреднение по углам дает значение $E_d = 17$ эВ. В настоящей работе динамическое моделирование образования радиационных дефектов проводилось в рамках микроканонического ансамбля [37]. Применялся алгоритм Верле с временным шагом 0.3 фс.

Начальные координаты атомов соответствовали равновесной структуре ВГ (см. рис. 1). Начальные значения скоростей равнялись нулю, за исключением скорости единственного ПВА. Рассматривались два неэквивалентных варианта – в качестве ПВА выбирался атом с индексом $N_r = 1$ или с индексом $N_r = 2$ (см. рис. 1). Зенитный угол Θ направления начальной скорости ПВА принимал значения $(4/6, 5/6, 6/6) \times \pi$. Азимутальный угол φ принимал значения $(0/4, 1/4, 2/4, 3/4, 4/4) \times \pi$. Начальная кинетическая энергия E_0 ПВА принимала значения 21, 24, 27, 30, 33, 36 и 39 эВ. Если при некотором значении углов Θ и φ дефект не образовывался вплоть до энергии 39 эВ, то исследовались дополнительные варианты с энергиями ПВА $E_0 = 42, 45$ и 48 эВ.

Динамическое моделирование проводилось для 3000 временных шагов, что соответствует реальному времени ~ 1 пс. За это время свободно движущийся атом углерода с энергией $E_0 = 21$ эВ преодолевает расстояние, равное ~ 180 Å, которое более чем на порядок величины превышает поперечные размеры расчетной сверхъячейки. Этого времени достаточно для передачи начальной кинетической энергии ПВА остальным атомам и частичной термализации слоев ВГ. После завершения динамического моделирования система охлаждалась до нулевой температуры методом градиентного спуска, после чего определялись параметры образовавшихся дефектов.

Предполагалось, что температурная зависимость времени отжига радиационного дефекта τ подчиняется закону Аррениуса

$$\tau^{-1}(T) = A \cdot \exp(-E_a/k_B T), \quad (1)$$

где T – температура, k_B – константа Больцмана. Посредством пакета программ [22] исследуются наиболее вероятные траектории движения системы при отжиге дефекта, определяются седловые конфигурации в пространстве обобщенных координат, что позволяет найти энергию активации отжига E_a . Частотный фактор A в формуле (1) определялся по формуле Виньярда (Vineyard [38]) из фононных спектров системы в метастабильном дефектном состоянии и в седловой точке. Определение фононных спектров в длинноволновом приближении представлено, напри-

мер, в монографии [39]. Особенностью применения формулы Виньярда к атомным системам с периодическими граничными условиями является необходимость исключения из фононного спектра трех минимальных по модулю частот, которые соответствуют сдвигу кристалла как единого целого по трем осям декартовых координат.

Результаты и обсуждение. При энергии ПВА $E_0 = 21$ эВ образование дефектов не наблюдалось. Результаты моделирования для начальной кинетической энергии ПВА $24 \leq E_0 \leq 39$ эВ представлены в табл. 1. Ячейки с темным фоном, не содержащие каких-либо данных, соответствуют вариантам, при которых дефекты не наблюдались. Серым полукругом отмечены варианты, при которых межслоевые перемины отсутствуют. Единственный символ в этих ячейках характеризует только форму дефекта. Детальное изучение этих дефектов выходит за рамки данной работы. Символом “decay” отмечены варианты, при которых в верхней графеновой плоскости образуется вакансия на месте, где исходно располагался ПВА. При этом выбитый атом либо проходит сквозь нижнюю графеновую плоскость и удаляется от нее на значительное расстояние, либо передает большую часть своего импульса одному атому нижней плоскости (который, в свою очередь, отделяется от структуры на расстояние, превышающее радиус взаимодействия с атомами ВГ). Индексами Int1 обозначены конфигурации радиационных дефектов, в которых отсутствует межслоевая переминыка и образуются вакансии и междоузлия различной формы в верхней плоскости ВГ. Нижняя плоскость в таких дефектах практически не деформируется. Индексом Int2 обозначены такие конфигурации радиационных дефектов, при которых в верхней плоскости образуется единственный дефект – вакансия. При этом ПВА в данных конфигурациях образуют междоузлия или области локального разупорядочения в нижней плоскости ВГ. В верхних строчках незаштрихованных ячеек табл. 1 приведены две величины – слева Dist (Å) и справа E_{tel} (эВ). Величина Dist – это расстояние от ПВА в конечном дефектном состоянии до центра вакансии в верхней плоскости ВГ. Обозначим радиус-вектор центра вакансии $\mathbf{R}_{vac}$. Если индекс первично выбитого атома $N_r = 1$ (см. рис. 1), то $\mathbf{R}_{vac} = (\mathbf{R}_2 + \mathbf{R}_3 + \mathbf{R}_4)/3$, где $\mathbf{R}_i$ – радиус-вектор соответствующего граничного атома вакансии. Для ПВА с индексом $N_r = 2$, $\mathbf{R}_{vac} = (\mathbf{R}_1 + \mathbf{R}_5 + \mathbf{R}_6)/3$. В нижних строчках ячеек табл. 1 представлена величина энергии активации отжига E_a (эВ) соответствующего дефекта. При удалении ПВА от центра вакансии на расстояние $Dist > 4$ Å энергия активации от-

Таблица 1. Характеристики радиационных дефектов

$\Theta/\pi,$ φ/π	$N_r \backslash E_0$	24 эВ	27 эВ	30 эВ	33 эВ	36 эВ	39 эВ
4/6, 0/4	1			1.93; 9.53 0.54; C3	Int2	decay	
	2		3.41; 12.91 0.71; C2	Int1	5.0; 12.74 C4	8.02; 12.7 C4	7.59; 12.69 C3
4/6, 1/4	1		3.96; 12.4 0.47; C3	3.51; 12.24 0.39; C3	Int2	3.52; 12.24 0.44; C3	Int2
	2	1.79; 9.45 0.08; C3	1.79; 9.45 0.08; C3		Int2	Int2	Int2
4/6, 2/4	1			3.23; 12.12 1.1; C3	Int2	Int2	Int2
	2			3.23; 11.92 1.52; V1	Int2	Int2	Int2
4/6, 3/4	1	1.78; 9.22 0.07; C3		1.91; 9.47 0.06; C3	1.79; 9.40 0.12; C3		3.33; 12.20 0.64; C3
	2		3.23; 11.92 1.52; V1	3.45; 12.00 0.84; C3	5.66; 12.66 C3	Int2	8.22; 12.81 C4
4/6, 4/4	1		3.52; 12.16 1.00; C3	Int1	Int2	decay	
	2			Int2	Int2	Int2	Int2
5/6, 0/4	1		1.78; 9.22 0.07; C3		decay	decay	decay
	2				decay	decay	decay
5/6, 1/4	1				1.92; 9.32 0.26; C3	2.55; 13.80 0.50; **	2.62; 13.23 2.44; V2
	2 *						
5/6, 2/4	1			1.79; 9.45 0.06; C3		Int2	Int2
	2		1.79; 9.22 0.06; C3				Int2
5/6, 3/4	1				Int2	decay	
	2						1.78; 9.22 0.07; C3
5/6, 4/4	1					decay	decay
	2	1.79; 9.40 0.123; C3		2.15; 12.32 1.50; V3		2.15; 12.32 1.50; V3	decay
6/6, 0/4	1				decay	decay	decay
	2		decay	decay	decay	decay	decay

Таблица 2. Характеристики термической устойчивости межслоевых перемычек BG

	E_{rel} (эВ)	E_a (эВ)	A (с^{-1})	τ ($T = 300$ K) (с)	τ ($T = 500$ K) (с)
V1	11.92	1.52	2.3×10^{14}	1.4×10^{11}	9.
V2	13.23	2.44	6.1×10^{14}	1.6×10^{26}	6.4×10^9
V3	12.32	1.50	1.4×10^{15}	1.1×10^{10}	0.93

жиги не вычислялась, поскольку вакансию и образовавшийся из ПВА междоузельный атом (далее, МА) можно рассматривать как изолированные, не взаимодействующие дефекты. Примером удаленных друг от друга на расстояние $5 \text{ \AA}$ вакансии и междоугового МА является вариант $N_r = 2$, $E_0 = 33 \text{ эВ}$, $\Theta/\pi = 4/6$, $\varphi/\pi = 0/4$. При этом МА имеет форму, аналогичную форме спиро междоузлия (*spiro interstitial*), представленной в работе [40]. В данной форме МА ковалентно связан с двумя атомами верхней графеновой плоскости и двумя атомами нижней плоскости. Название этот дефект получил из-за сходства с молекулой спиропентена [41]. В таблице 1 конфигурации, содержащие МА, ковалентно связанный с двумя атомами верхней и двумя атомами нижней плоскости, обозначаются символом “С4”. В образующихся конфигурациях МА наблюдаются некоторые различия величин углов между связями и длинами связей. В данной ситуации корректнее, видимо, говорить не о гибридизации междоузельных атомов, а об их координационных числах (С2, С3 и С4 в зависимости от числа ковалентных связей). В варианте $N_r = 2$, $E_0 = 33 \text{ эВ}$, $\Theta/\pi = 4/6$, $\varphi/\pi = 0/4$ МА при перемещении по ближайшим междоузельным метастабильным положениям так же, как и в работе [40], проходит через седловые конфигурации, в которых ковалентно связан с одним атомом одной из графеновых плоскостей и с двумя атомами другой плоскости. Далее МА, ковалентно связанный с графеновым окружением, таким образом имеет форму буквы Y (в предшествующих работах обозначен как “Y-lid”, см., например, [40] или обзор [42]) и далее маркируется символом “С3”. Расчет в рамках NTBM [25] показал, что энергетический барьер E_{dif} , определяющий диффузию МА по ближайшим междоузельным метастабильным положениям, равен 1.15 эВ для структуры BG и 1.17 эВ для аналогичного дефекта в графите. В работе [40] величина $E_{\text{dif}} = 1.1 \text{ эВ}$, а в более ранних работах [43] и [44] – 1.25 и 1.13 эВ , соответственно. Энергия Вигнера E_{rel} также слабо различается в структуре BG и графите. Величина $E_{\text{rel}} = 12.74$ и 12.68 эВ в структуре BG и графите соответственно. Это значение E_{rel} коррелирует с данными, приведенными в обзоре [42], где энергия пары Френкеля лежит в интервале $10.6\text{--}13.7 \text{ эВ}$ в за-

висимости от расстояния между вакансией и МА. Однако, если статические характеристики дефекта E_{dif} и E_{rel} для структуры BG и графита почти совпадают, то динамические характеристики Dist удаления ПВА от центра вакансии при одинаковых начальных скоростях ПВА в структуре BG и в графите заметно различаются. Величины $\text{Dist} = 5$ и $7.4 \text{ \AA}$ для структуры BG и графита соответственно. Большая длина пробега ПВА при каналировании между графеновыми плоскостями может быть обусловлена тем, что при вертикальном смещении атомов плоскости жесткость графита выше, чем жесткость структуры BG (вертикальному смещению атома в структуре BG препятствуют атомы только одной соседней плоскости, а в графите – атомы двух соседних плоскостей). Большая жесткость графита подавляет процесс торможения (передачи энергии ПВА окружающим атомам), и это увеличивает длину пробега ПВА.

Из данных табл. 1 следует, что радиационные дефекты с междоуговыми перемычками по величине энергии активации отжига могут быть разбиты на две неравные группы. К первой группе относятся дефекты с величиной $E_a \leq 1.1 \text{ эВ}$. Эта группа ввиду низкой термической устойчивости не представляет интереса для создания элементов графеновой электроники. Действительно, для варианта из табл. 1 с параметрами $N_r = 1$, $E_0 = 30 \text{ эВ}$, $\Theta/\pi = 4/6$, $\varphi/\pi = 2/4$, $E_a = 1.1 \text{ эВ}$ частотный фактор, определенный по формуле Виньярда [38], $A = 2.5 \times 10^{13} \text{ с}^{-1}$. В этом случае выражение (1) дает время отжига $\tau(T = 300 \text{ K}) = 33 \text{ ч}$. Такая низкая термическая устойчивость не позволяет создавать элементы электроники, работающие при комнатных температурах.

Ко второй группе относятся дефекты с величиной $E_a \geq 1.5 \text{ эВ}$. Эта группа обладает высокой термической устойчивостью. В табл. 2 для второй группы дефектов приведены характерные времена отжига при температурах $T = 300$ и 500 K . Ячейки, соответствующие дефектам второй группы в табл. 1, обведены жирной рамкой, а в нижней строке помещен идентификатор дефекта (V1, V2 или V3). Поскольку конфигурация дефектов V1, V2 и V3 будет представлена в соответствующих рисунках, координационные числа для них в табл. 1 не приводятся.

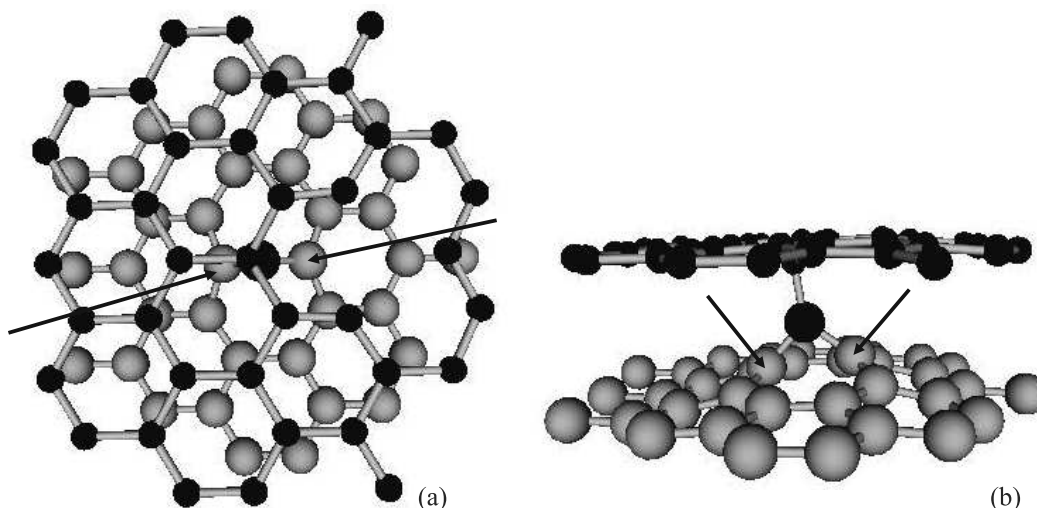


Рис. 2. Фрагмент структуры BG из 75 атомов, содержащий дефект V1. Вид сверху (a) и боковой вид (b)

Символом “*” в табл. 1 отмечена строка $N_r = 2$, $\Theta/\pi = 5/6$, $\varphi/\pi = 1/4$, для которой величина $E_d > 39$ эВ. При этих параметрах дефектообразование происходит при начальной энергии ПВА $E_0 = 42$ эВ. Образовавшаяся конфигурация имеет координационное число C3, величины Dist, E_{rel} и E_a равны 2.55 Å, 13.96 и 1.12 эВ соответственно. При значениях величин $E_0 = 45$ и 48 эВ образовавшиеся дефекты характеризуются марками “Int2” и “decay” соответственно. Конфигурация, отмеченная в табл. 1 символом “*”, близка по форме к дефекту V3 и будет описана ниже одновременно с этим дефектом.

Полное число обнаруженных дефектов с координационными числами C2, C3 и C4 равно 1, 22 и 3 соответственно. Несмотря на большое количество дефектов с координационным числом C3, эти дефекты не определяют свойства BG при комнатной температуре, поскольку имеют низкую энергию активации отжига. Величину E_a , лежащую в интервале $0.5 < E_a \leq 1.1$ эВ имеют 5 дефектов, а величину $E_a \leq 0.5$ эВ – 15 дефектов. Высокой термической устойчивостью обладают только межслоевые перемычки, обозначенные в табл. 1 и 2 как V1, V2 и V3.

Фронтальный и боковой виды дефекта V1 представлены на рис. 2a, b. Малыми черными кружками представлены атомы верхней плоскости, содержащей вакансию. Большими серыми кружками – атомы нижней плоскости. Большой черный кружок – МА (ПВА в начальный момент времени). На рисунке 2 видно, что радиационное повреждение получила не только верхняя графеновая плоскость, в которой образовалась вакансия. Повреждена также и нижняя плоскость, в которой ПВА разорвал одну ко-

валентную связь (между атомами, которые указаны стрелками). В результате в нижней плоскости образовались два смежных кольца из семи атомов. Расчет, проведенный для графита при тех же начальных условиях, при которых образовались дефекты типа V1 в структуре BG показывает, что при этом образуются дефекты, практически совпадающие с дефектом V1. Форма этих дефектов не отличается от представленной на рис. 2. Величины Dist и E_{rel} равны 3.51 Å и 12.14 эВ, что не существенно отличается от данных табл. 1 для дефекта V1.

Наиболее устойчивый дефект V2 с энергией активации $E_a = 2.44$ эВ имеет форму, представленную на рис. 3. Обозначение атомов аналогично принятому на рис. 2. На рисунке 3 видно, что повреждена нижняя плоскость, в которой ПВА разорвал одну ковалентную связь, в результате чего образовались два смежных кольца из семи и одиннадцати атомов. При этом ПВА образовал межслоевую перемычку. Расчет, проведенный для графита при тех же начальных условиях, при которых образовались дефекты типа V2 в структуре BG показывает, что при этом образуется дефект, обозначенный выше символом Int2, существенно отличающийся от дефекта V2 (межслоевая перемычка в нем отсутствует).

Форма дефекта V3 представлена на рис. 4. Обозначения атомов аналогичны рис. 2 и 3. Конфигурация V3 имеет общие черты с конфигурацией, отмеченной в табл. 1 символом “*”. В верхней плоскости располагается вакансия. ПВА образует межслоевую перемычку с ближайшим атомом нижней плоскости. Однако в конфигурации “*” перемычка перпендикулярна графеновым слоям, а в дефекте V3 располо-

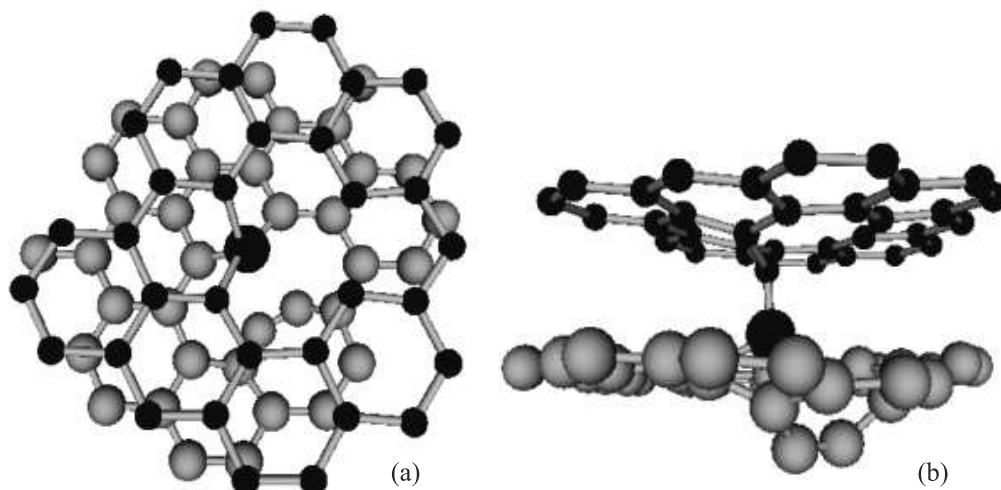


Рис. 3. Фрагмент структуры BG из 72 атомов, содержащий дефект V2. Вид сверху (a) и боковой вид (b)

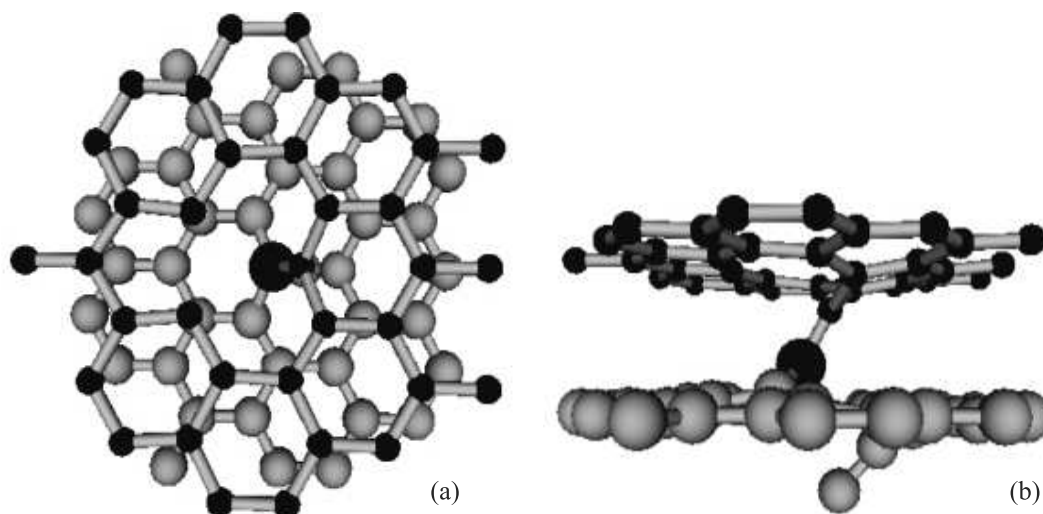


Рис. 4. Фрагмент структуры BG из 75 атомов, содержащий дефект V3. Вид сверху (a) и боковой вид (b)

жена под углом $\sim \pi/6$ к “поверхности” верхней плоскости. В нижней плоскости образуется десятиатомное кольцо и присоединенный к нему атом с координационным числом, равным единице. Расчет, проведенный для графита при тех же начальных условиях, при которых образовались дефекты типа V3 в структуре BG, показывает, что образуются аналогичные дефекты.

Заключение. При моделировании процесса радиационного формирования и статических характеристик межслоевых перемычек было получено 33 метастабильных конфигурации. Две идентичные конфигурации (обозначенные в работе как V3) имели энергию активации отжига $E_a = 1.50$ эВ и еще две (V1) – $E_a = 1.52$ эВ. Наиболее устойчивая конфигурация V2 имела энергию активации $E_a = 2.44$ эВ.

Остальные межслоевые перемычки имели низкую энергию активации отжига $E_a \leq 1.1$ эВ, т.е. оказались неустойчивыми при комнатной температуре. Сопоставление процессов радиационного образования дефектов в двухслойном графене и в графите показало, что при равных начальных скоростях ПВА в BG формируется дефект V2 с межслоевой перемычкой, а в графите перемычка не возникает. Также в BG и в графите различаются баллистические длины пробегов ПВА при движении их между графеновыми плоскостями.

Характерной чертой всех обнаруженных устойчивых перемычек является существенное повреждение вблизи перемычки как нижней, так и верхней графеновых плоскостей. В связи с этой особенностью в дальнейшем представляет интерес исследова-

ние процесса радиационного формирования перемычек в несимметричной двухслойной структуре (графен) + (графен со множеством дефектов).

Автор благодарен К. П. Катину за обсуждение результатов работы.

Работа выполнена при поддержке программы НИЯУ МИФИ Приоритет 2030.

1. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, *Science* **306**, 666 (2004).
2. А. Е. Галашев, О. Р. Рахманова, *УФН* **184**, 1045 (2014).
3. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos, and A. A. Firsov, *Nature* **438**, 197 (2005).
4. X. Liu and M. C. Hersam, *Sci. Adv.* **5** (2019); <https://doi.org/10.1126/sciadv.aax6444>.
5. A. I. Kochaev, K. P. Katin, M. M. Maslov, and R. M. Meftakhutdinov, *J. Phys. Chem. Lett.* **11**, 5668 (2020).
6. A. I. Kochaev, M. M. Maslov, K. P. Katin, V. Efimov, and I. Efimova, *Materials Today Nano*. **20**, 100247 (2022).
7. Л. А. Чернозатонский, П. Б. Сорокин, А. Г. Квашнин, Д. Г. Квашнин, *Письма в ЖЭТФ* **90**, 144 (2009).
8. P. V. Bakharev, M. Huang, M. Saxena, S. W. Lee, S. H. Joo, S. O. Park, J. Dong, D. C. Camacho-Mojica, S. Jin, Y. Kwon, M. Biswal, F. Ding, S. K. Kwak, Z. Lee, and R. S. Ruoff, *Nature Nanotechnol.* **15**, 59 (2019).
9. L. A. Chernozatonskii, K. P. Katin, V. A. Demin, and M. M. Maslov, *Appl. Surf. Sci.* **537**, 148011 (2021).
10. T. Ohta, A. Bostwick, T. Seyller, K. Horn, and E. Rotenberg, *Science* **313**, 951 (2006).
11. Y. Cao, D. Chowdhury, D. Rodan-Legrain, O. Rubies-Bigorda, K. Watanabe, T. Taniguchi, T. Senthil, and P. Jarillo-Herrero, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 076801 (2020).
12. Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, *Nature* **556**, 43 (2018).
13. G. E. Volovik, *Письма в ЖЭТФ* **107**, 537 (2018).
14. Y. Zhang, T. Tang, and C. Girit, *Nature* **459**, 820 (2009).
15. G. Fiori and G. Iannaccone, *IEEE Electron Device Letters* **30**, 261 (2009).
16. M.-C. Chen, C.-L. Hsu, and T.-J. Hsueh, *IEEE Electron Device Letters* **35**, 590 (2014).
17. Y. Tang, Z. Liu, and Z. Shen, *Sens. Actuators B* **238**, 182 (2017).
18. L. A. Chernozatonskii, V. A. Demin, and Ph. Lambin, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 27432 (2016).
19. А. А. Артюх, Л. А. Чернозатонский, *Письма в ЖЭТФ* **109**(7), 481 (2019).
20. В. А. Демин, Д. Г. Квашнин, П. Ванчо, Г. Марк, Л. А. Чернозатонский, *Письма в ЖЭТФ* **112**, 328 (2020).
21. M. M. Maslov, A. I. Podlivaev, and K. P. Katin, *Molecular Simulation* **42**, 305 (2016).
22. K. P. Katin, K. S. Grishakov, A. I. Podlivaev, and M. M. Maslov, *J. Chem. Theory Comput.* **16**, 2065 (2020).
23. K. P. Katin and M. M. Maslov, *J. Phys. Chem. Solids* **108**, 82 (2017).
24. Л. А. Опенев, А. И. Подливаев, *Письма в ЖЭТФ* **109**, 746 (2019).
25. А. И. Подливаев, К. С. Гришаков, К. П. Катин, М. М. Маслов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 182 (2021).
26. А. И. Подливаев, К. С. Гришаков, К. П. Катин, М. М. Маслов, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 172 (2021).
27. А. И. Подливаев, К. П. Катин, *Письма в ЖЭТФ* **92**, 54 (2010).
28. М. М. Маслов, К. П. Катин, А. И. Авхадиева, А. И. Подливаев, *Химическая физика* **33**, 27 (2014).
29. А. И. Подливаев, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 384 (2022).
30. K. P. Katin and M. M. Maslov, *Molecular Simulation* **44**, 703 (2018).
31. Ю. С. Нечаев, Е. А. Денисов, Н. А. Шурыгина, А. О. Черетаева, Е. К. Костинова, С. Ю. Давыдов, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 372 (2021).
32. А. И. Подливаев, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 728 (2020).
33. F. Seitz and J. S. Koehler, *Solid State Physics* **2**, 305 (1956).
34. *Химическая энциклопедия*, под ред. И. Л. Кнунянц, в 5 т., Сов. энц., М. (1988) т. 1, 623 с.
35. Е. И. Жмуриков, И. А. Бубненко, В. В. Дремов, С. И. Самарин, А. С. Покровский, Д. В. Харьков, *Графит в науке и ядерной технике*, Новосибирск (2013), 159 с.; <https://arxiv.org/ftp/arxiv/papers/1307/1307.1869.pdf>.
36. B. Farbos, H. Freeman, T. Hardcastle, J.-P. Da Costa, R. Brydson, A. J. Scott, P. Weisbecker, C. Germain, G. L. Vignoles, and J.-M. Leyssale, *Carbon* **120**, 111 (2017); <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2017.05.009>.
37. E. M. Pearson, T. Halicioglu, and W. A. Tiller, *Phys. Rev. A* **32**, 3030 (1985).
38. G. V. Vineyard, *J. Phys. Chem. Solids*. **3**, 121 (1957).
39. А. М. Косевич, *Основы механики кристаллической решетки*, Наука, М. (1972).
40. A. A. El-Barbary, *Appl. Surf. Science* **426**, 238 (2017).
41. R. H. Telling, C. P. Ewels, A. A. El-Barbary, and M. I. Heggie, *Nat. Mater.* **2**(5), 333 (2003); <https://doi.org/10.1038/nmat876>.
42. S. B. Isbill, A. E. Shields, D. J. Mattei-Lopez, R. J. Kapsimalis, and J. L. Niedziela, *Comput. Mat. Sci.* **195**, 110477 (2021).
43. L. M. Brown, A. Kelly, and R. M. Mayer, *Philos. Mag.* **19**, 721 (1969).
44. W. N. Reynolds and P. A. Thrower, *Philos. Mag.* **12**, 573 (1965).

Исследование нематики антиферромагнитного состояния в EuFe_2As_2 с помощью магнитных и магниторезонансных измерений

Ю. И. Таланов⁺¹⁾, И. И. Гимазов⁺, Р. Б. Заринов⁺, К. С. Перваков*, В. А. Власенко*, В. М. Пудалов*,
Г. Б. Тейтельбаум⁺

⁺ Казанский физико-технический институт им. Е. К. Завойского, 420029 Казань, Россия

* Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, Центр высокотемпературной сверхпроводимости и квантовых материалов им. В. Л. Гинзбурга, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 февраля 2023 г.

После переработки 21 февраля 2023 г.

Принята к публикации 21 февраля 2023 г.

С помощью спектроскопии электронного парамагнитного резонанса и SQUID-магнитометрии получено прямое свидетельство возникновения магнитных доменов в монокристалле EuFe_2As_2 в состоянии антиферромагнитного упорядочения. Резонансные спектры ионов европия регистрировались в интервале температур от 4 до 200 К. Используя уравнение для резонансного поля антиферромагнетика, учитывающего влияние обменного поля и поля анизотропии, проведен анализ угловой зависимости спектра при температуре 4.8 К при вращении кристалла вокруг оси c . Анализ данных показал, что EuFe_2As_2 является антиферромагнетиком с легкой плоскостью анизотропии. Кроме того, в плоскости ab обнаружены оси легкого намагничивания второго порядка для каждого из двух типов магнитных доменов, связанных со структурным переходом и образованием двойников. Магнитная анизотропия, обусловленная обменным взаимодействием ионов европия с ионами железа, свидетельствует о возникновении нематического магнитного упорядочения в базисной плоскости. Из угловой зависимости резонансных полей получена оценка величины обменного поля и поля анизотропии.

DOI: 10.31857/S1234567823060113, EDN: qtjxuo

1. Введение Сверхпроводящие пниктиды железа (*iron based superconductors*, IBS) с редкоземельными ионами, такие как, например, $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$, привлекают повышенное внимание вследствие взаимной игры магнитного упорядочения спиновых моментов европия и железа со сверхпроводящим спариванием делокализованных электронов Fe и As [1–4]. В результате взаимного влияния различных механизмов в них возникает нетривиальное сверхпроводящее состояние, а также магнитное упорядочение с необычными анизотропными свойствами.

Родительское соединение EuFe_2As_2 является несверхпроводящим и стехиометрическим, что значительно упрощает проблему и позволяет подробно исследовать только ее магнитную сторону. Действительно, согласно результатам нейтронографии, а также магнитного и резонансного рентгеновского рассеяния [5, 6] в EuFe_2As_2 при температурах ниже 190 К в плоскостях ab возникает антиферромагнитное упорядочение спинов $3d$ электронов Fe (в виде соизмеримой волны спиновой плотности, SDW). Согласно этим же данным при еще более

низкой температуре $T_N = 19$ К слои атомов Eu, с ферромагнитным упорядочением спинов внутри слоя в плоскости ab , образуют слоистую антиферромагнитную (AFM) трехмерную структуру типа А (более подробно см. ниже). Возможное магнитное упорядочение спинов Eu в интервале температур 19–190 К пока остается дискуссируемым вопросом.

Помимо упомянутых “сильных” эффектов (AFM, SDW) и сильной анизотропии магнитного упорядочения типа “легкая плоскость”, в пниктидах железа имеется более тонкий эффект магнитного двойникования, который в сверхпроводящих IBS приводит к нематической сверхпроводимости, а в EuFe_2As_2 – к анизотропии магнитных свойств в, казалось бы, изотропной плоскости ab . Двойникование кристаллической решетки и возникновение магнитных доменов при низких температурах в EuFe_2As_2 было обнаружено из нейтронографии [5].

В настоящей работе с помощью измерений спинового резонанса мы впервые наблюдали нематическую структуру AFM состояния при температурах $T < 19$ К и получили ее количественные характеристики. Благодаря комбинации магниторезонансных и магнитных измерений в кристалле EuFe_2As_2 мы

¹⁾ e-mail: talanov@kfti.knc.ru

установили положение и направление осей легкого намагничивания и получили оценку величины обменного поля H_E , а также поля анизотропии H_A в области температур $T < 19$ К.

Кристаллическая и магнитная структура EuFe_2As_2 . Кристаллическая структура EuFe_2As_2 ниже температуры $T_m = 190$ К претерпевает фазовый переход из тетрагональной в орторомбическую, т.е. происходит нарушение вращательной симметрии (C_4 переходит в C_2). Ввиду очень малого возникающего различия ($\sim 0.6\%$) длин элементарных векторов a и b , образуются структурные двойники, в которых оси a повернуты на 90° относительно соответствующих осей двойников другого типа. Ниже T_m направление намагничивания устанавливается вдоль осей a в каждом из структурных доменов, создавая тем самым магнитные домены [5]. Вследствие большого магнитного момента ионов европия и сильной спин-решеточной связи, магнитное поле оказывает значительное влияние на эти домены. Достаточно слабое магнитное поле ($H < 1$ Тл) приводит к их перераспределению [7–10].

Как упомянуто выше, ионы Eu^{2+} , обладающие большими магнитными моментами $\mu_{\text{Eu}} \approx 7\mu_B$ [11] и связанные обменным взаимодействием ($J \approx 0.1$ мЭВ [7]) образуют ферромагнитно-упорядоченные слои. Связь между слоями европия осуществляется через посредство ионов железа Fe^{2+} , с которыми ионы европия также связаны сильным обменом [7]. В результате, при температурах ниже $T_N = 19$ К возникает антиферромагнитное упорядочение А-типа между слоями европия, в котором направление намагниченности слоев поворачивается на угол π от слоя к слою, оставаясь в плоскости ab . Кроме того, спиновые моменты ионов европия оказываются сильно связанными с кристаллической решеткой, что приводит к анизотропии магнитных параметров EuFe_2As_2 , несмотря на то, что прямая спин-решеточная связь ионов Eu^{2+} отсутствует вследствие отсутствия у ионов европия орбитального момента. В работах [7, 8] предложено теоретическое описание этой анизотропии через биквадратичное взаимодействие, за пределами Гейзенберговской модели, между локализованными электронами Eu и электронами, привносимыми в зону из атомных $3d$ -орбиталей Fe [6, 7].

Для изучения магнетизма EuFe_2As_2 применялись различные методы: измерения намагниченности и магнитосопротивления [10, 11]; нейтронография [5, 12]; магнитострикция и магнитооптика [9]; спектроскопия рентгеновского магнитного кругового дихроизма [8, 12] и другие. Весьма ценную информацию о магнитных взаимодействиях в этом материале дает

метод электронного спинового резонанса (ЭСР) [13]. Его преимущество заключается в том, что он позволяет получать сведения о локальных взаимодействиях. При его использовании ионы Eu^{2+} являются одновременно и объектами исследования и локальными зондами, “измеряющими” величины внутренних полей: магнитную индукцию B , обменное (молекулярное) поле H_E и поле анизотропии H_A . Для проверки достоверности, полученные из анализа данных ЭСР значения внутренних полей необходимо сравнить с оценками таких магнитных параметров, как обменный интеграл J и константа анизотропии K . Эти оценки делаются на основе магнитных измерений, дающих усредненные по объему величины этих характеристик. В соответствии с этими соображениями, для изучения структуры нематического магнитного упорядочения в данной работе и была использована комбинация магниторезонансных и магнитных измерений.

Образцы и экспериментальная техника. Исследованные кристаллы EuFe_2As_2 выращивались из раствора в расплаве методом, подробно описанным в работе [14]. Чистота исходных элементов была следующей: Eu 99.95 %, Fe 99.98 %, As 99.9999 %. Для исследований ЭСР от выращенного кристалла отщеплялась тонкая пластинка с размерами $2.5 \times 1.6 \times 0.1$ мм³.

Исследования проводились на двух спектрометрах ЭСР X-диапазона. Один из них, Bruker BER-418s, имеет прямоугольный полый резонатор с основной модой TE_{102} и собственной частотой около 9.4 ГГц. Второй – Bruker Eleksys E-580 с цилиндрическим диэлектрическим резонатором ER4118MD5 (мода TE_{011} , собственная частота ~ 9.7 ГГц). Резонатор помещается в криостат Oxford CF935, позволяющий изменять температуру от 2 до 300 К. Прибор оснащен программируемым одноосным гониометром Bruker ER218PG1 (диапазон изменения угла 0 – 360° , точность установки 0.5°), который размещается на резонаторе. Диапазон изменения магнитного поля: от 0 до 1.7 Тл.

4. Результаты и обсуждение. Имеющиеся в кристалле EuFe_2As_2 парамагнитные ионы Fe^{2+} должны давать сигналы в спектре ЭСР. Однако, сильный антиферромагнитный обмен между ионами железа ($J_{\text{Fe-Fe}} \approx 30$ – 40 мЭВ [15]) и их спиновая релаксация через электроны проводимости уширяют резонансный сигнал настолько, что его обнаружение становится невозможным.

В отличие от железа, ионы европия остаются парамагнитными (неупорядоченными) в широком диапазоне температур $T > T_N$, и сигнал ЭСР от этих

ионов хорошо наблюдается (см., например, [13, 14, 16, 17]). Его основные параметры таковы: положение соответствует g -фактору 1.97, ширина изменяется в пределах от 0.07 до 0.13 Тл, форма сигнала асимметричная (форма линии Дайсона [18]). Асимметрия обусловлена скин-эффектом и связана с примешиванием дисперсии в сигнал поглощения. Поэтому для получения точного значения резонансного поля H_R и ширины сигнала δH требуется его моделирование функцией, представляющей собой смесь дисперсии и поглощения лоренцевой формы [18, 19].

Кроме того, ввиду большой ширины сигнала, сравнимой с величиной резонансного поля, необходимо учитывать вклад, обусловленный циркулярно-поляризованным микроволновым полем с направлением вращения, противоположным основному микроволновому полю, формирующему резонансный сигнал. Аналитические выражения, предложенные в работе [20] для описания сигнала ЭСР в данных условиях, использовались в нашей работе для определения параметров сигнала.

На рисунке 1 представлена температурная зависимость резонансного поля $H_R(T)$, величина которо-

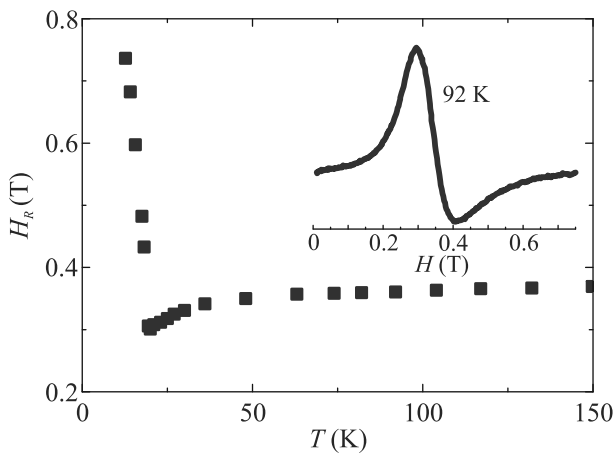


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурная зависимость резонансного поля ионов Eu^{2+} в кристалле EuFe_2As_2 . Ориентация кристалла в магнитном поле $H \parallel ab$. На вставке в качестве примера показан сигнал ЭСР, наблюдаемый при температуре 92 К

го определялась описанным выше способом. Видно, что при приближении к точке магнитного перехода T_N со стороны высоких температур сигнал ЭСР смещается в сторону низких полей. Это свидетельствует о влиянии размагничивающего поля, величина которого пропорциональна намагниченности образца. Согласно теоретическим расчетам Ч. Киттеля [21], в параллельной ориентации (когда внешнее поле па-

раллельно плоскости тонкого образца) размагничивающее поле суммируется с внешним, что приводит к уменьшению величины внешнего поля, требуемого для создания резонансного условия $\omega = \gamma \tilde{H}$ ($\gamma = g\mu_B/\hbar$ – гиромагнитное отношение, g – g -фактор парамагнитного иона, μ_B – магнетон Бора, $\hbar$ – постоянная Планка, $\tilde{H}$ – суммарное поле). В нашем случае параллельная ориентация соответствует условию $H \parallel ab$. Это условие и реализуется в эксперименте, результаты которого показаны на рис. 1.

При переходе в упорядоченное состояние с понижением температуры до значений $T < T_N$ резонансный сигнал сильно уширяется, но остается наблюдаемым. Кроме того, он раздваивается (рис. 2). Это

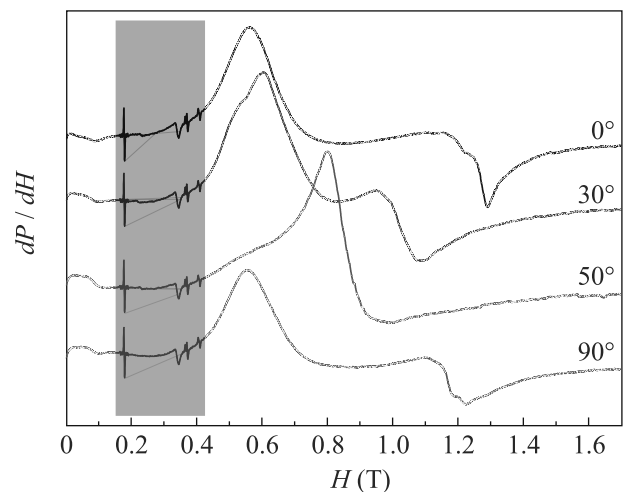


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры ЭСР ионов Eu^{2+} , полученные при температуре 4.8 К и разных ориентациях кристалла EuFe_2As_2 в магнитном поле. Поле лежит в плоскости ab , кристалл вращается вокруг оси c . Начало отсчета угла соответствует положению $H \parallel a$ для одного из доменов. Сигналы в затемненной области, обусловленные частями резонатора, не зависят от угла

расщепление соответствует наблюдавшемуся ранее в работе [14], в которой была измерена зависимость резонансной частоты от поля при постоянной температуре. Оба сигнала быстро смещаются в сторону высоких полей при понижении температуры.

На рисунке 1 в области температур $T < T_N$ показано положение только одного из сигналов – низкополевого. Смещение в высокие поля не соответствует действию размагничивающего поля и свидетельствует о возникновении иного механизма зависимости $H_R(T)$. Есть основания предполагать, что в этой области положение сигнала определяется полем анизотропии H_A , величина которого растет с понижением температуры [8]. Наличие двух сигналов говорит

о том, что есть две группы ионов Eu^{2+} с различным локальным окружением. Если сдвиг сигналов определяется полем анизотропии, значит величина H_A – разная для двух разных групп ионов, или они имеют разные оси анизотропии. Последнее предположение хорошо согласуется с наличием магнитных доменов [10], связанных со структурными двойниками, у которых оси a (и оси магнитной анизотропии) повернуты на 90° относительно друг друга, как отмечалось выше.

Смещение двух сигналов при вращении кристалла вокруг оси c (поле при этом постоянно остается в плоскости ab) происходит независимо друг от друга (см. рис. 2). Форма спектра периодически повторяется. Сигналы расходятся на максимальное расстояние 0.6–0.7 Тл при значениях углов $\varphi = n \cdot \frac{\pi}{2}$ (n – целое число, $\varphi = 0$ соответствует $H \parallel a$ одного из двойников). Когда $\varphi \approx n \cdot \frac{\pi}{4}$, сигналы сходятся и сливаются в один. Если предположить, что каждый из двух типов доменов имеет свою ось магнитной анизотропии второго порядка, направленную вдоль кристаллографической оси a , то можно представить угловую зависимость резонансных полей двух сигналов в виде суперпозиции двух одинаковых функций с периодом 180° , сдвинутых на 90° относительно друга, как это показано на рис. 3. Надо отметить,

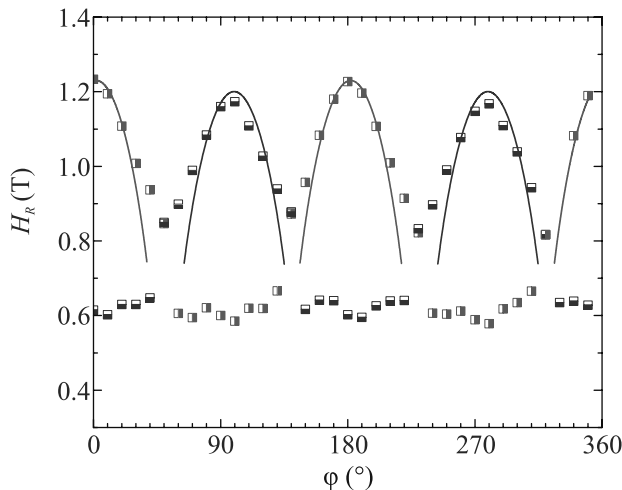


Рис. 3. (Цветной онлайн) Угловая зависимость резонансных полей сигналов ЭСР ионов Eu^{2+} , зарегистрированных при температуре 4.8 К при вращении кристалла EuFe_2As_2 вокруг оси c . Поле лежит в плоскости ab . Наполовину закрашенные квадраты – экспериментальные величины, сплошные кривые вычислены с использованием выражения (2) с параметрами $H_0 = 0.33$ Тл и $H_E \cdot H_A = 0.34$ Тл²

что в работе [13] сообщалось о наличии очень слабой ($\Delta H \ll 10$ мТл) 90° модуляции величины резонанс-

ного поля при $T > T_N$. Авторы [13] объяснили её наличие влиянием кристаллических полей.

Кристаллическая структура EuFe_2As_2 , в которой ионы европия образуют слои (см., например, [5]), предполагает наличие плоскостей легкого намагничивания. 180 -ти-градусная внутрислойная анизотропия говорит о том, что помимо “легких плоскостей” при $T < T_N$ формируются еще и оси легкого намагничивания, совпадающие с более длинной осью a , как следует из нейтронографических данных [5]. Наличие магнитных доменов приводит к удвоению числа легких магнитных осей, и, следовательно, период повторения спектра становится равным 90° (рис. 3). Для описания угловой зависимости и оценки величины поля анизотропии было использовано уравнение (4.3.11) из книги А. Г. Гуревича [22], которое устанавливает связь резонансного поля с H_A и H_E для случая анизотропии в легкой плоскости намагничивания:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_R^2 - 4H_E H_A \cos(2\varphi). \quad (1)$$

В левой части этого уравнения $H_0 = \omega/\gamma$ – магнитное поле, которое создает зеемановское расщепление уровней энергии, равное по величине кванту электромагнитного поля $\hbar\omega$ ($\omega = 2\pi\nu$, ν – частота спектрометра). В правой части – комбинация полей, участвующих в создании резонансного условия: внешнее, в котором наблюдается сигнал ЭСР, H_R ; произведение обменного поля H_E на поле анизотропии H_A и на косинус удвоенного угла φ между направлениями оси анизотропии и внешнего поля. Это уравнение можно переписать, чтобы выделить наблюдаемую величину H_R в явном виде:

$$H_R = \sqrt{H_0^2 + 4H_E H_A \cos(2\varphi)}. \quad (2)$$

Отметим, что уравнение (2) не имеет решения, когда $\cos(2\varphi) < 0$ и $H_0^2 < |4H_E H_A \cos(2\varphi)|$, т.е. в области малых полей.

Используя уравнение (2) нам удалось описать верхнюю часть угловой зависимости резонансного поля, где выполняются условия, написанные выше (см. рис. 3). Путем подбора параметров таким образом, чтобы расчетная кривая совпадала с экспериментальной зависимостью, можно найти величину произведения обменного поля H_E и поля внутрислойной анизотропии H_A . При температуре 4.8 К оно оказалось примерно равным 0.34 Тл². Чтобы выделить из этого произведения значение поля анизотропии, необходимо использовать результаты магнитных (нерезонансных) измерений, а также лите-

ратурные данные о величине обменного взаимодействия.

Полученная при $T = 4.2$ К зависимость намагниченности исследованного кристалла EuFe_2As_2 от величины внешнего поля приведена на рис. 4. Эта за-

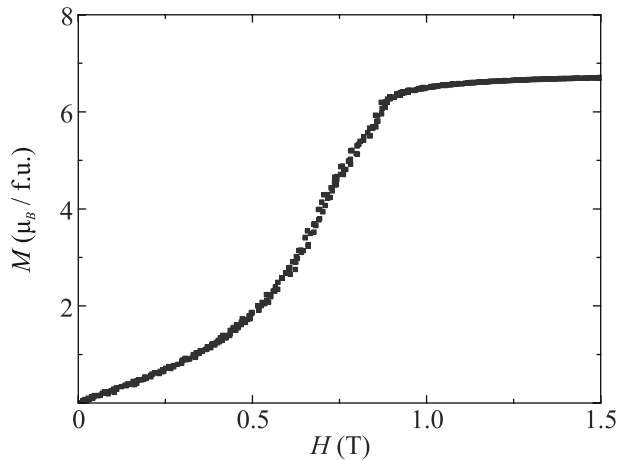


Рис. 4. (Цветной онлайн) Намагниченность кристалла EuFe_2As_2 (в единицах μ_B /формульную единицу) в зависимости от величины внешнего поля при температуре 4.2 К. Поле параллельно плоскости ab . Видно, что насыщению намагниченности при $H \approx 1$ Тл предшествует затянутый метамгнитный переход (в диапазоне 0.4–0.7 Тл) типа “spin canting” [11]

висимость позволяет оценить величину намагниченности насыщения M_s и получить значение обменного поля, используя соотношение $H_E = \lambda M_s$ ($\lambda = \frac{J}{\mu_B}$) [22]. Мы использовали величину обменного интеграла $J = 0.093$ мэВ из работы [7], где она была рассчитана по данным магнитных измерений на кристалле EuFe_2As_2 , аналогичном нашему. Приняв величину намагниченности насыщения $M_s = 6.7 \mu_B$ (рис. 4) мы получили значение $H_E \simeq 10.5$ Тл и соответственно $H_A \simeq 32$ мТл. Чтобы понять, насколько реальна полученная нами величина H_A и сравнить ее с литературными данными, необходимо перевести поле анизотропии в константу анизотропии K , используя соотношение $H_A = \frac{K}{M_s}$. Перевод дает значение $K \simeq 1.2 \cdot 10^{-5}$ эВ при $T = 4.8$ К. Этот результат вполне сравним с оценкой константы анизотропии, сделанной в работе [7] на основе измерений намагниченности при температуре 4.2 К: $K = 7.4 \cdot 10^{-6}$ эВ.

Отметим, что малая величина поля анизотропии по сравнению с обменным полем ($H_A/H_E \simeq 0.003$) хорошо согласуется с исследованной ситуацией. А именно, обменное взаимодействие происходит в слое ионов европия, непосредственно между ними. В отличие от него, поле анизотропии формируется опосредованно, при участии ионов железа, расположен-

ных в соседнем слое, через биквадратичное взаимодействие [8]. Поэтому анизотропия в направлении оси c может быть большой, а в плоскости – малая.

В заключение отметим, что в настоящей работе было проведено исследование магнитных взаимодействий, которые определяют магнитную структуру кристалла EuFe_2As_2 в магнитоупорядоченном состоянии при $T < 19$ К. Исследование выполнено методами магнитометрии и спектроскопии ЭСР на частоте около 10^{10} Гц. Возникающее в этой области температур поле анизотропии приводит к большому смещению резонансного сигнала в высокие поля. Кроме того, сигнал расщепляется на две компоненты, соответствующие двум группам магнитных доменов, развернутых на 90° друг относительно друга. Чтобы разобраться в особенностях магнитной структуры EuFe_2As_2 , при $T = 4.8$ К была измерена и проанализирована угловая зависимость резонансных полей при вращении образца вокруг оси c (направление внешнего поля $H \parallel ab$).

На основе проведенного анализа сделаны следующие выводы: (1) соединение EuFe_2As_2 при температуре $T < 19$ К является антиферромагнетиком с плоскостью легкого намагничивания, совпадающей с кристаллографической плоскостью ab ; (2) в этой плоскости также возникает анизотропия с периодом повторения 180° , связанная с существованием осей легкого намагничивания, параллельных кристаллографической оси a ; (3) наличие магнитных доменов, связанных с кристаллографическими двойниками, приводит к возникновению двух угловых зависимостей с периодом 180° , сдвинутых на 90° друг относительно друга. Наличие оси второго порядка в каждом домене можно рассматривать как нематическое упорядочение. Теоретическая аппроксимация угловой зависимости позволяет сделать оценки величины обменного поля $H_E \simeq 10.5$ Тл и поля анизотропии $H_A \simeq 32$ мТл при $T = 4.8$ К. Последняя величина хорошо согласуется с оценкой константы анизотропии, сделанной на основе магнитометрических данных [7].

Настоящая работа выполнялась в рамках госзадания ФИЦ КазНЦ РАН. Измерения намагниченности проведены с использованием оборудования Центра коллективного пользования ФИАН в Центре высокотемпературной сверхпроводимости и квантовых материалов им. В. Л. Гинзбурга Физического института имени П. Н. Лебедева РАН при поддержке Российского научного фонда, грант # 21-72-20153.

Измерения ЭСР частично выполнены с использованием оборудования Распределенного коллективного спектро-аналитического Центра изучения строе-

ния, состава и свойства веществ и материалов ФИЦ КазНЦ РАН. Авторы благодарны А. И. Смирнову за обсуждение результатов.

1. T. K. Kim, K. S. Pervakov, D. V. Evtushinsky et al. (Collaboration), Phys. Rev. B **103**, 174517 (2021).
2. Т. К. Ким, К. С. Перваков, А. В. Садаков и др. (Collaboration), УФН **192**(7), 790 (2022).
3. V. S. Stolyarov, K. S. Pervakov, A. S. Astrakhantseva, I. A. Golovchanskiy, D. V. Vyalikh, T. K. Kim, S. V. Ereemeev, V. A. Vlasenko, V. M. Pudalov, A. A. Golubov, E. V. Chulkov, and D. Roditchev, J. Phys. Chem. Lett. **11**, 9393 (2020).
4. D. Collomb, S. J. Bending, A. E. Koshelev, M. P. Smylie, L. Farrar, J.-K. Bao, D. Y. Chung, M. G. Kanatzidis, W.-K. Kwok, and U. Welp, Phys. Rev. Lett. **126**, 157001 (2021).
5. Y. Xiao, Y. Su, M. Meven, R. Mittal, C. M. N. Kumar, T. Chatterji, S. Price, J. Persson, N. Kumar, S. K. Dhar, A. Thamizhavel, and Th. Brueckel, Phys. Rev. B **80**, 174424 (2009).
6. A. L. Wysocki, K. D. Belashchenko, and V. P. Antropov, Nat. Phys. **7**, 485 (2011).
7. J. Maiwald, I. I. Mazin, and P. Gegenwart, Phys. Rev. X **8**, 011011 (2018).
8. J. J. Sanchez, G. Fabbris, Y. Choi, Y. Shi, P. Malinowski, Sh. Pandey, J. Liu, I. I. Mazin, J.-W. Kim, Ph. Ryan, and J.-H. Chu, Phys. Rev. B **104**, 104413 (2021).
9. S. Zapf, C. Stingl, K. W. Post, J. Maiwald, N. Bach, I. Pietsch, D. Neubauer, A. Löhle, C. Clauss, S. Jiang, H. S. Jeevan, D. N. Basov, P. Gegenwart, and M. Dressel, Phys. Rev. Lett. **113**, 227001 (2014).
10. Y. Xiao, Y. Su, S. Nandi, S. Price, B. Schmitz, C. M. N. Kumar, R. Mittal, T. Chatterji, N. Kumar, S. K. Dhar, A. Thamizhavel, and Th. Brückel, Phys. Rev. B **85**, 094504 (2012).
11. Sh. Jiang, Y. Luo, Zh. Ren, Z. Zhu, C. Wang, X. Xu, Q. Tao, G. Cao, and Zh. Xu, New J. Phys. **11**, 025007 (2009).
12. J. Herrero-Martin, V. Scagnoli, C. Mazzoli, Y. Su, R. Mittal, Y. Xiao, Th. Brueckel, N. Kumar, S. K. Dhar, A. Thamizhavel, and L. Paolasini, Phys. Rev. B **80**, 134411 (2009).
13. E. Dengler, J. Deisenhofer, H.-A. Krug von Nidda, S. Khim, J. S. Kim, K. H. Kim, F. Casper, C. Felser, and A. Loidl, Phys. Rev. B **81**, 024406 (2010).
14. I. A. Golovchanskiy, N. N. Abramov, V. A. Vlasenko, K. Pervakov, I. V. Shchetinin, P. S. Dzhumaev, O. V. Emelyanova, D. S. Baranov, D. S. Kalashnikov, K. B. Polevoy, V. M. Pudalov, and V. S. Stolyarov, Phys. Rev. B **106**, 024412 (2022).
15. Myung Joon Han, Quan Yin, W. E. Pickett, and S. Y. Savrasov, Phys. Rev. Lett. **102**, 107003 (2009).
16. F. A. Garcia, E. M. Bittar, C. Adriano, T. M. Garitezi, C. Rettori, and P. G. Pagliuso, J. Phys.: Conf. Ser. **273**, 012093 (2011).
17. M. Ikeda and M. Hagiwara, J. Korean Phys. Soc. **62**, 2007 (2013).
18. F. J. Dyson, Phys. Rev. **98**, 349 (1955).
19. S. E. Barnes, Adv. Phys. **30**, 801 (1981).
20. J. P. Joshi and S. V. Bhat, J. Magn. Reson. **168**, 284 (2004).
21. C. Kittel, Phys. Rev. **73**, 155 (1948).
22. А. Г. Гуревич, *Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках*, Наука, М. (1973).

Перенос секретных ключей в квантовой сети с доверенными промежуточными узлами и шифрованием блочным шифром

С. Н. Молотков¹⁾

Академия криптографии Российской Федерации, 121552 Москва, Россия

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 16 января 2023 г.

После переработки 15 февраля 2023 г.

Принята к публикации 15 февраля 2023 г.

Технология квантовой криптографии позволяет распределять ключи на отдельных сегментах сети в конфигурации точка-точка, далее ключи на отдельных сегментах используются для защиты трафика между любыми узлами сети, напрямую не связанных квантовым каналом. В этой связи возникает вопрос о согласовании (продвижении) ключей по отдельным сегментам сети. В работе рассматривается вопрос о переносе независимого ключа через доверенные узлы квантовой сети, между которыми имеются ключи, полученные в результате квантового распределения ключей. Квантовые ключи используются для шифрования переносимого ключа. Шифрование переносимого ключа возможно как блочным шифром, так и одноразовым блокнотом. Показано, что трудоемкость (сложность перебора) по поиску продвигаемого по сети ключа зависит от неидеальности внешнего ключа и квантовых ключей, а также от неидеальности – средней вероятности коллизий блочного шифра. В случае шифрования переносимого ключа одноразовым блокнотом трудоемкость зависит только от неидеальности переносимого ключа и ключей шифрования. При идеальных ключах сохраняется идеальность переносимого ключа. В случае блочного шифра даже при идеальных ключах переносимый ключ перестает быть идеальным в меру отличия блочного шифра от одноразового блокнота. Показано также, что чем больше коллизий имеет блочный шифр, соответственно, покрывает меньшее множество шифр-текстов, тем меньшее число шагов перебора требуется для нахождения ключа.

DOI: 10.31857/S1234567823060125, EDN: qtpvtf

1. Введение. Базовым в квантовой криптографии является распределение ключей между передатчиком и приемником в конфигурации точка-точка. В существующих квантовых сетях (см., например, [1]) происходит обмен секретными ключами, полученными при квантовом распределении ключей, между узлами непосредственно не соединенных квантовым каналом. Такой обмен производится через промежуточные узлы.

Волоконные системы квантовой криптографии гарантируют секретность ключей, если длина каждого сегмента сети не превышает некоторой критической длины. Одним из способов увеличить дальность квантового распределения ключей является распределение ключей через промежуточные доверенные узлы. В этом случае длина каждого отрезка сети выбирается такой, чтобы вероятность ошибки за счет потерь в линии была меньше критической. При этом на каждом i -м отрезке мы получа-

ем свой квантовый ключ²⁾ k_i , обладающий свойством ε_i -секретности [2, 3]. В такой конфигурации сети пара квантовых ключей k_i, k_{i+1} присутствует (известна) на промежуточном узле, поэтому промежуточные узлы должны быть доверенными – пара ключей на каждом промежуточном узле должна быть недоступна подслушивателю.

Возникает вопрос, как получить общий секретный ключ между любой парой узлов, связанных в квантовой сети через промежуточные доверенные узлы.

Возможны два способа получения общего ключа.

1) Перенос *квантового* ключа, полученного на крайнем левом узле.

2) Перенос *внешнего* ключа, сгенерированного отдельно на крайнем левом узле.

В первом случае *квантовый* ключ, полученный на крайнем левом узле, играет роль *внешнего* ключа для следующего узла и, тем самым, оба способа

¹⁾e-mail: sergei.molotkov@gmail.com

²⁾Для краткости для битовой строки k_i используем термин – квантовый ключ, что отражает тот факт, что ключ получен в результате квантового распределения ключей.

становятся, по существу, идентичными по постановке задачи.

Если бы *внешний* ключ, а также *квантовые* ключи, возникающие при квантовом распределении ключей (КРК), были бы идеальными, т.е. отвечали бы равновероятному выбору, и неизвестными третьей стороне, то решение задачи *переноса* ключа с сохранением свойства равновероятности было бы довольно простым.

Однако ключи при квантовом распределении не являются идеальными. Все, что удастся доказать про данные ключи, так это то, что ключи близки к идеальным в смысле определенного критерия – ключи являются ϵ -секретными [2, 3].

Принципиальный вопрос, который возникает при переносе или *согласовании* неидеальных ключей, звучит так – каким будет общий ключ, который возникнет в результате продвижения по сети? Иначе говоря, если исходные ключи являются ϵ -секретными, то сколь секретным будет ключ при продвижении через несколько промежуточных узлов?

Поскольку согласованный ключ будет использоваться в дальнейшем для шифрования, то возникает еще один принципиальный вопрос – как изменится сложность нахождения ключа, который возник при продвижении через несколько доверенных узлов? В данной работе будут даны ответы на эти вопросы.

При переносе ключа между доверенными узлами происходит шифрование переносимого ключа на общих ключах, сгенерированных на сегментах при квантовом распределении ключей. Возможны различные способы шифрования переносимого ключа.

Первый способ состоит в шифровании переносимого ключа одноразовым блокнотом на квантовых ключах на отдельных сегментах квантовой сети.

Второй способ состоит в шифровании переносимого ключа блочным шифром с использованием квантовых ключей на каждом сегменте.

После продвижения общего ключа по сети данный ключ используется для шифрования (защиты) трафика при передаче аудио и видео информации как, например, в сети [1].

Поскольку могут использоваться оба способа для шифрования переносимого ключа, то важно знать, как изменится трудоемкость по поиску проталкиваемого ключа через сегменты квантовой сети, когда шифрование внешнего ключа осуществляется на квантовых ключах на сегменте при шифровании блочным шифром и шифрованием одноразовым блокнотом? Какие характеристики блочного шифра нужно знать, чтобы ответить на предыдущий вопрос?

Одним из методов нахождения злоумышленником общего перенесенного ключа является опробование различных ключей с целью определения истинного ключа. Число шагов полного или частичного перебора ключей определяется трудоемкостью перебора.

Для более четкой постановки задачи удобно предварительно рассмотреть следующий пример (полное рассмотрение см. ниже).

Естественно, после продвижения ключа по сети, ключ в дальнейшем будет использоваться для шифрования сообщений при помощи алгоритма шифрования $\mathcal{F}$. Причем ключ используется неоднократно. “Качество” ключа, точнее близость вероятности распределения ключа к равновероятному, определяет сложность нахождения ключа.

Пусть в алгоритме шифрования $\mathcal{F}$ используется перенесенный ключ k . Данный ключ переносится между узлами с использованием шифрования на квантовом ключе k_1 на сегменте. Нарушитель “видит” зашифрованный $c(k_1, k)$ ключ k (c – алгоритм шифрования – одноразовый блокнот или блочный шифр). Если подслушиватель сможет найти ключ шифрования k_1 , то узнает и переносимый ключ, расшифровывая шифр-текст $k = c^{-1}(k_1, c(k_1, k))$, где c^{-1} – функция расшифрования.

Опробовав различные ключи шифрования k_1 , подслушиватель будет получать различные ключи $k = c^{-1}(k_1, c(k_1, k))$.

Вопрос – как нарушитель узнает, что ключ $k = c^{-1}(k_1, c(k_1, k))$ действительно истинный ключ?

Консервативно при использовании шифров считается, что возможна атака известный открытый текст – шифр-текст. Подслушиватель “подскачивает” известный открытый текст $message$, получает шифр-текст $cipher$, при этом ключ шифрования k неизвестен и его требуется найти.

Зашифрованный текст есть $cipher = \mathcal{F}(k, message)$ ($cipher, message$ – битовые строки). Теперь подслушиватель знает $message$ и $cipher$ – цель найти ключ k , который есть $k = c^{-1}(k_1, c(k_1, k))$ при данном ключе опробования k_1 . Подслушиватель опробует последовательно ключи k_{1_i} до тех пор, пока не будет совпадения входа и выхода $cipher = \mathcal{F}(k_i, message)$, начиная с ключа с максимальной вероятностью. При полном переборе истинный ключ будет найден с вероятностью успеха равной единице (см. подробности ниже).

Таким образом, критерий истинности ключа k работает опосредованно через опробуемые квантовые ключи шифрования k_1 на сегменте.

После нахождения ключа, все последующие сообщения, зашифрованные на этом ключе, будут прочитаны подслушивателем.

Возможны ситуации, когда подслушиватель перебирает только часть наиболее вероятных ключей. При этом вероятность успеха – нахождения истинного ключа будет меньше единицы. Вероятность успеха может быть фиксирована заранее какими-то требованиями.

Отклонение вероятности распределения ключей от идеального равномерного распределения, а также побочная информация подслушивателя о ключах, могут уменьшить число шагов перебора (трудоемкость) для нахождения истинного ключа при различных атаках на алгоритм шифрования (атаки с известным открытым текстом, с избранным открытым текстом и т.д.).

Даже при предварительном рассмотрении можно увидеть разницу при шифровании переносимого ключа одноразовым блочным и блочным шифром. При шифровании одноразовым блочным шифром равенство $c^{-1}(k_1, c(k_1, k)) = c^{-1}(k_1, c(k'_1, k))$ возможно только при $k'_1 = k_1$, так как невозможны коллизии различных шифр-текстов на разных ключах шифрования (см. ниже). При шифровании блочным шифром равенство $c^{-1}(k_1, c(k_1, k)) = c^{-1}(k_1, c(k'_1, k))$ возможно и при $k'_1 \neq k_1$ – имеются коллизии шифр-текстов. Этот факт приводит к тому, что эффективное пространство перебора ключей k_1 уменьшается (даже при идеальных ключах), т.е., чтобы найти переносимый ключ, достаточно найти любой из ключей шифрования k_1 , для которых удовлетворяется $c^{-1}(k_1, c(k_1, k)) = c^{-1}(k_1, c(k'_1, k))$.

Имея в виду выше сказанное, для краткости далее будем называть опосредованный поиск ключа k как поиск проталкиваемого ключа.

В работе будет показано, что трудоемкость частичного перебора по поиску проталкиваемого внешнего ключа при шифровании блочным шифром выражается через следовое расстояние. Следовое расстояние в свою очередь выражается через инварианты (характеристики) блочного шифра. Такими инвариантами блочного шифра являются вероятности различных коллизий (парных, тройных и т.д.). Под коллизиями блочного шифра мы понимаем число совпадений шифр-текстов, которое имеет место при шифровании одного открытого текста на разных ключах.

2. Трудоемкость частичного перебора при шифровании внешнего ключа блочным шифром. Для секретных ключей, используемых в различных алгоритмах шифрования, предъявляются

требования, которые формулируются не в терминах абстрактного следового расстояния между матрицами плотности, а в терминах сложности нахождения ключа.

К. Шенноном [4] был введен критерий практической секретности криптосистемы, который понимается как *“The average amount of work to determine the key for a cryptogram...”*. В зависимости от ситуации, возможны различные определения среднего объема работы (трудоемкости) по определению ключа. Само понятие трудоемкости фактически связано с перебором (опробованием) ключей до определения истинного ключа. Причем перебор может быть как полным – по всему пространству ключей, так и частичным – по части ключевого пространства [5, 6]. Такой перебор может иметь место как в отсутствии (дополнительной) побочной информации о ключе, так и при наличии побочной информации.

Применительно к ключам, полученным в результате квантового распределения ключей, побочная информация у Евы о ключе возникает при измерениях над квантовой системой, коррелированной с истинным ключом легитимных пользователей. В работах [5, 6] была установлена прямая связь между критерием секретности, основанном на различимости пары квантовых состояний, и критерием, использующим понятие трудоемкости.

Для вычисления трудоемкости по определению перенесенного ключа требуется знать распределение вероятностей ключей и наблюдаемых переменных. Наблюдаемые переменные Ева получает в результате измерений над квантовой системой, коррелированной с ключами на отдельном сегменте квантовой сети и над квантовым регистром, который содержит зашифрованный продвигаемый ключ.

После расшифрования легитимные пользователи имеют общий проталкиваемый ключ k , а Ева, в результате измерений над своей квантовой системой, имеет битовую строку y , коррелированную с истинным ключом k_1 . Кроме этого, Ева имеет битовую строку $c_1 = c(k_1, k)$ – зашифрованный ключ k . Шифр-текст передается по открытому каналу между сегментами сети. Случайные величины c_1 и y можно рассматривать как совокупные наблюдения (побочные переменные) над ключом k , к которому Ева не имеет прямого доступа.

Сразу отметим, что в качестве шифрования $c(k_1, k)$ может использоваться как блочный шифр, так и одноразовый блочный шифр. В этом случае будем обозначать зашифрованный ключ как $cOTR(k_1, k)$.

В реальной ситуации Ева не имеет прямого доступа к продвигаемому ключу k , но имеет побочную

информацию о ключе – случайную величину (битовую строку) $y \in \{0, 1\}^n$, коррелированную с квантовым ключом k_1 , и битовую строку $c_1(k_1, k) \in \{0, 1\}^n$ – продвигаемый ключ k , зашифрованный блочным шифром на ключе k_1 , полученным при квантовом распределении на сегменте.

Удобно перевыразить проталкиваемый ключ k через “видимый” шифр-текст $c_1(k_1, k)$ как $k = d(k_1, c_1)$, здесь d – функция расшифрования – однозначная при заданном ключе k_1 и шифр-тексте c_1 .

В случае одноразового блокнота шифрование сообщения (в нашем случае продвигаемого ключа k) требует длины ключа шифрования (у нас это k_1) не менее длины сообщения. Если длина ключа (сообщения) k 256 бит, то длина k_1 тоже 256 бит.

Если иметь в виду длину ключа для блочных шифров (например, “Кузнечик”), то длина ключа шифрования у него 256 бит. Сообщения шифруются блоками по 128 бит на одном и том же ключе k_1 в 256 бит. В этом случае сообщение k разбивается на два блока $k = (k_{128}^{(1)} || k_{128}^{(2)})$, где $k_{128}^{(1)}$ – первые 128 бит, $k_{128}^{(2)}$ – вторые. Длина шифр-текста на выходе есть $c_1(k_1, k) = c_1(k_1, k_{128}^{(1)}) || c_1(k_1, k_{128}^{(2)})$ – блоки конкатенируются (просто записываются один за другим – символ $||$). Здесь $c_1(k_1, k) = c_1(k_1, k_{128}^{(1)})$ – первый блок шифр-текста длиной 128 бит, $c_1(k_1, k_{128}^{(2)})$ – второй блок шифр-текста в 128 бит. Полная длина после конкатенации шифр-текста $c_1(k_1, k)$ равна 256 бит, также как и для одноразового блокнота.

В итоге длина ключа шифрования k_1 в одноразовом блокноте и блочном шифре одинаковы, длина шифруемого сообщения – продвигаемого ключа k , также одинакова, и шифр-тексты $c_1(k_1, k)$ также одинаковы, что позволяет сделать сравнение близости одноразового блокнота и блочного шифра.

Длина ключа шифрования 256 бит является достаточно типичной для многих современных шифров, длина блока шифрования в 128 бит также типична. При других соотношениях всегда можно привести одноразовый блокнот и блочный шифр к единому “знаменателю” для сравнения близости.

Наблюдения Евы $y, c_1(k_1, k)$ и продвигаемый ключ k связаны совместным распределением вероятностей $P_{K_1 K Y C_1}^{\text{cip}}(k_1, d(k_1, c_1), y, c_1)$. Индекс cip отражает факт шифрования продвигаемого ключа блочным шифром. Длина шифр-текста $c_1(k_1, k)$ совпадает с длиной ключа k_1 и k .

Вероятность $P_{K_1 K Y C_1}^{\text{cip}}(k_1, d(k_1, c_1), y, c_1)$ является функцией трех независимых переменных (k_1, y, c_1) . Напомним, что ключ шифрования k_1 недоступен Еве и подлежит определению.

Введем обозначение

$$P_{(K_1 K) Y C_1}^{\text{cip}}(k_1, y, c_1) = P_{K_1 K Y C_1}^{\text{cip}}(k_1, d(k_1, c_1), y, c_1). \quad (1)$$

Пусть $|K| = 2^n$, а ключи k_1 изначально упорядочены, например, в лексикографическом порядке. Обозначим условную вероятность

$$P_{(K_1 K) Y C_1}^{\text{cip}}(k_1 | y, c_1) = \frac{P_{(K_1 K) Y C_1}^{\text{cip}}(k_1, y, c_1)}{P_{Y C_1}^{\text{cip}}(y, c_1)}, \quad k_1 = \overline{1, K} \quad (2)$$

– апостериорное распределение ключей при условии, что в результате наблюдений получена пара (y, c_1) . Предположим в пользу Евы, что Ева, имея побочную информацию (y, c_1) , может вычислить и упорядочить вероятности (1) в виде

$$P_{(K_1 K) Y C_1}^{\text{cip}}(k_1 | y, c_1) \geq P_{(K_1 K) Y C_1}^{\text{cip}}(k_2 | y, c_1) \geq \dots \geq P_{(K_1 K) Y C_1}^{\text{cip}}(k_N | y, c_1). \quad (3)$$

Здесь k_m – ключ из множества $K = \{1, 2, \dots, K\}$, оказавшийся в ряду (3) на m -м месте, $m = \overline{1, K}$, при этом $\{k_1, k_2, \dots, k_K\}$ является перестановкой исходных ключей $\{1, 2, \dots, K\}$, зависящей исключительно от пары (y, c_1) .

Далее Ева опробует $1 \leq M \leq |K|$ первых наиболее вероятных ключей, это так называемый усеченный алгоритм U .

Здесь необходимы пояснения. В каждом акте КРК случайно возникает ключ k_1 на сегменте с распределением вероятностей $P_{K_1}(k_1)$. В каждом акте КРК Ева имеет в своем распоряжении квантовую систему $\rho_E^{k_1}$, “привязанную” к ключу k_1 . Над данной системой Ева делает измерения, результатом измерения является случайная битовая строка y – побочная переменная, неформально неточный “слепок” ключа k_1 . Различные сеансы КРК описываются квантовым ансамблем – матрицей плотности $\rho_{K_1 E}$.

Таким образом, в рассмотренном массовом эксперименте, Ева будет получать истинный ключ шифрования с некоторой вероятностью успеха, затрачивая определенную среднюю работу на нахождение ключа на один эксперимент.

Обозначим

$$p_m = \sum_{y, c_1} P_{(K_1 K) Y C_1}^{\text{cip}}(k_m | y, c_1) P_{Y C_1}^{\text{cip}}(y, c_1) \quad (4)$$

– среднюю вероятность оказаться истинному ключу шифрования k_1 на m -м месте.

Неформально среднее по распределению вероятностей можно понимать как среднее по серии экспериментов, в каждом из которых случайная величина (или величины), по которой происходит усреднение, принимает одно значение в каждом акте

с некоторой вероятностью. Если ключ после M опробований не найден, то Ева переходит к следующему эксперименту по поиску ключа после нового сеанса КРК, в котором возникает новый ключ k_1 . При этом у Евы, в результате измерения своей квантовой системы $\rho_E^{k_1}$, привязанной к новому ключу k_1 после КРК, возникнет новая случайная пара (y, c_1) . Уже для данной новой пары (y, c_1) Ева опять упорядочивает условные вероятности (3) (так как (y, c_1) имеют новые значения) и начинает опробование ключей. Для вероятности нахождения ключа на m -м месте необходимо усреднить по всем значениям случайной величины – случайной пары (формула (4)).

Для усеченного алгоритма U вычисляются следующие характеристики:

○ средняя вероятность успеха (нахождения ключа шифрования) – вероятность попасть случайному ключу k_1 в переборное множество – множество наиболее вероятных ключей, которые опробовываются,

$$\pi_U(M) = \sum_{m=1}^M p_m = \sum_{m=1}^M \sum_{y, c_1} P_{(K_1 K)}^{\text{cip}}(k_m | y, c_1) P_{Y C_1}^{\text{cip}}(y, c_1), \quad (5)$$

○ средняя сложность (в опробованиях) – среднее число актов – шагов опробования внутри переборного множества опробования

$$S_U(M) = (1 - \pi_U(M)) M + \pi_U(M) \sum_{m=1}^M m \frac{p_m}{\pi_U(M)}, \quad (6)$$

○ средняя трудоемкость нахождения ключа шифрования – среднее число шагов (актов) опробования

внутри переборного множества, нормированное на вероятность успеха – вероятность ключу попасть в переборное множество

$$Q_U(M) = \frac{S_U(M)}{\pi_U(M)} = \frac{\left(1 - \sum_{m=1}^M p_m\right) M + \sum_{m=1}^M m p_m}{\sum_{m=1}^M p_m}. \quad (7)$$

Определяется Q_{U, π_0} – минимальная средняя сложность для усеченных алгоритмов, приводящих к нахождению ключа с вероятностью успеха, не меньшей π_0 :

$$Q_{U, \pi_0} = \min_{\{M: \sum_{m=1}^M p_m \geq \pi_0\}} Q_U = \min_{\{M: \sum_{m=1}^M p_m \geq \pi_0\}} \frac{\left(1 - \sum_{m=1}^M p_m\right) M + \sum_{m=1}^M m p_m}{\sum_{m=1}^M p_m}. \quad (8)$$

В работах [5, 6] было показано, что средняя сложность Q_{U, π_0} удовлетворяет неравенству

$$Q_{U, \pi_0} \geq \left(1 - \frac{2\delta_1}{\pi_0}\right) \left(\frac{|\mathcal{K}|(1 - 8\delta_1) + 1}{2}\right), \quad (9)$$

где

$$\delta_1 = \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{|\mathcal{K}|} \left| p_m - \frac{1}{|\mathcal{K}|} \right|. \quad (10)$$

Далее, поскольку

$$\sum_{c_1 \in \{0,1\}^n} \sum_{y \in \{0,1\}^n} \frac{1}{|\mathcal{K}|^2} P_Y(y) = \frac{1}{|\mathcal{K}|}, \quad (11)$$

то, с учетом (3), (4), и перестановочности $\{k_1, k_2, \dots, k_K\}$, получаем

$$\begin{aligned} \delta_1 &= \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{|\mathcal{K}|} \left| p_m - \frac{1}{|\mathcal{K}|} \right| = \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{|\mathcal{K}|} \left| \sum_{c_1 \in \{0,1\}^n} \sum_{y \in \{0,1\}^n} \left(P_{Y C_1}^{\text{cip}}(y, c_1) P_{(K_1 K)}^{\text{cip}}(k_m | y, c_1) - \frac{1}{|\mathcal{K}|^2} P_Y^{\text{OTP}}(y) \right) \right| = \\ &\leq \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{|\mathcal{K}|} \sum_{c_1 \in \{0,1\}^n} \sum_{y \in \{0,1\}^n} \left| P_{(K K_1) Y C_1}^{\text{cip}}(k_m, y, c_1) - \frac{1}{|\mathcal{K}|^2} P_Y^{\text{OTP}}(y) \right| = \\ &= \frac{1}{2} \sum_{k_1 \in \{0,1\}^n} \sum_{y \in \{0,1\}^n} \sum_{c_1 \in \{0,1\}^n} \left| P_{K_1 K Y C_1}^{\text{cip}}(k_1, d(k_1, c_1), y, c_1) - P_{U_K U_1 Y C_1}^{\text{OTP}}(k_1, d_{\text{OTP}}(k_1, c_{\text{OTP}}), y, c_1) \right| \leq \\ &\leq \frac{1}{2} \|\rho_{K_1 K E C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_K U_1 E C_1}^{\text{OTP}}\|_1, \end{aligned} \quad (12)$$

где в (13) следовое расстояние $\|\rho\|_1 = \text{Tr}\{\rho\}$.

Индекс U_K в (13) символизирует равновероятное распределение идеальных продвигаемых ключей k (аббревиатура от Uniform). Аналогично индекс U_{K_1} отвечает равновероятному распределению квантовых ключей k_1 .

Для связи матриц плотности $\rho_{K_1KEC_1}^{\text{cip}}$ и $\rho_{U_{K_1}U_KEC_1}^{\text{OTR}}$ и распределениями вероятностей в (1)–(5), (12) воспользуемся результатами работы [6]. Следовое расстояние между распределениями вероятностей (13) мажорируется следовым расстоянием между соответствующими матрицами плотности (см. подробности вывода в [6]).

Далее $\rho_{K_1KEC_1}^{\text{cip}}$ – матрица плотности после реального квантового распределения ключей с наличием Евы (E), и продвижением ε_K -секретного внешнего ключа k , который зашифровывается блочным шифром $c(k_1, k)$ на реальном ε_{K_1} -секретном ключе после реального квантового распределения ключей.

$\rho_{U_{K_1}U_KEC_1}^{\text{OTR}} = \rho_{U_{K_1}U_KC_1}^{\text{OTR}} \otimes \rho_E$ – матрица плотности после идеального квантового распределения ключей без Евы (E) при проталкивании идеального внешнего ключа $k \in U_K$, который зашифровывается идеальным шифром (одноразовым блокнотом – ОТР) $c_{\text{OTR}}(k, k_1)$ на идеальном ключе $k_1 \in U_{K_1}$ после идеального квантового распределения ключей без Евы. Матрица плотности Евы ρ_E определим чуть ниже.

Остается мажорировать операторное следовое расстояние в (13).

Последовательно, используя неравенство треугольника, получаем

$$\begin{aligned} & \|\rho_{K_1KEC_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1}U_KEC_1}^{\text{OTR}}\|_1 \leq \\ & \leq \|\rho_{K_1KEC_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1}U_KC_1}^{\text{cip}}\|_1 + \\ & + \|\rho_{U_{K_1}U_KC_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1}U_KEC_1}^{\text{OTR}}\|_1, \end{aligned} \quad (14)$$

здесь матрицы плотности $\rho_{U_{K_1}U_KC_1}^{\text{cip}} = \rho_{U_{K_1}U_KC_1}^{\text{cip}} \otimes \rho_E$ – матрица плотности после идеального квантового распределения ключей без Евы (E), далее проталкивания реального идеального внешнего ключа $k \in U_K$, который зашифровывается блочным шифром $c(k_1, k)$ на идеальном $k_1 \in U_{K_1}$ ключе после идеального квантового распределения ключей без Евы. Матрица плотности Евы ρ_E определим чуть ниже.

2.1. Определение матриц плотности до и после зашифрования. Определим матрицы плотности, фигурирующие в предыдущих разделах.

Матрица плотности, отвечающая реальным ρ_K и идеальным ρ_{U_K} внешним проталкиваемым ключам, имеет вид

$$\rho_{U_K} = \sum_k P_K(k) |k\rangle_{KK} \langle k|, \quad (15)$$

$$\rho_K = \sum_k P_{U_K}(k) |k\rangle_{KK} \langle k|, \quad P_{U_K}(k) = \frac{1}{2^n} = \frac{1}{|\mathcal{K}|}. \quad (16)$$

Следовое расстояние между реальными и идеальными внешними ключами есть

$$\frac{1}{2} \|\rho_K - \rho_{U_K}\|_1 = \frac{1}{2} \sum_k |P_K(k) - P_{U_K}(k)| < \varepsilon_K, \quad (17)$$

Внешний продвигаемый по сети ключ является ε_K -секретным [2, 3].

Матрицы плотности до зашифрования после реального (ρ_{K_1E}) и идеального ($\rho_{U_{K_1}} \otimes \rho_E$) квантового распределения ключей имеют вид

$$\rho_{K_1E} = \sum_{k_1} P_{K_1}(k_1) |k_1\rangle_{K_1K_1} \langle k_1| \otimes \rho_E^{k_1}, \quad (18)$$

$$\begin{aligned} \rho_{U_{K_1}} &= \sum_{k_1} P_{U_{K_1}}(k_1) |k_1\rangle_{K_1K_1} \langle k_1|, \\ P_{U_{K_1}}(k_1) &= \frac{1}{2^n} = \frac{1}{|\mathcal{K}|}. \end{aligned} \quad (19)$$

$$\rho_E = \text{Tr}_{K_1} \{\rho_{K_1E}\} = \sum_{k_1} P_{K_1}(k) \rho_E^{k_1}. \quad (20)$$

Следовое расстояние между матрицами плотности (18) и (19) имеет вид

$$\frac{1}{2} \|\rho_{K_1E} - \rho_{U_{K_1}} \otimes \rho_E\|_1 < \varepsilon_{K_1}, \quad (21)$$

т.е. ключи после квантового распределения ключей на сегменте являются ε_{K_1} -секретными.

Матрицы плотности до зашифрования, с учетом пустого регистра C_1 , куда будет записан результат зашифрования, принимают вид:

$$\begin{aligned} \rho_{K_1KEC_1} &= \rho_K \otimes \rho_{K_1E} \otimes |0\rangle_{C_1C_1} \langle 0|, \\ \rho_{U_{K_1}U_KEC_1} &= \rho_{U_K} \otimes \rho_{U_{K_1}} \otimes \rho_E \otimes |0\rangle_{C_1C_1} \langle 0|. \end{aligned} \quad (22)$$

Зашифрование блочным шифром и одноразовым блокнотом описывается унитарными операторами, имеем

$$\begin{aligned} \rho_{K_1KEC_1}^{\text{cip}} &= U_{\text{cip}}(\rho_{K_1KEC_1}) U_{\text{cip}}^+ = \\ &= \sum_k \sum_{k_1} P_K(k) P_{K_1}(k_1) |k\rangle_{KK} \langle k| \otimes |k_1\rangle_{K_1K_1} \langle k_1| \otimes \rho_E^{k_1} \otimes |c_1(k_1, k)\rangle_{C_1C_1} \langle c_1(k_1, k)|, \end{aligned} \quad (23)$$

и

$$\begin{aligned} \rho_{U_{K_1} U_K E C_1}^{\text{cip}} &= U_{\text{cip}} (\rho_{U_{K_1} U_K E C_1}) U_{\text{cip}}^+ = \\ &= \left(\frac{1}{|\mathcal{K}|} \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_k \sum_{k_1} |k\rangle_{KK} \langle k| \otimes |k_1\rangle_{K_1 K_1} \langle k_1| \otimes |c_1(k_1, k)\rangle_{C_1 C_1} \langle c_1(k_1, k)| \right) \otimes \rho_E. \end{aligned} \quad (24)$$

Напомним, что при реализации унитарного (обратимого) вычисления – зашифрования используются вспомогательные (мусорные) регистры, которые по окончании вычисления, переводятся обратно в исходное нулевое состояние и которые для экономии обозначений опускаем.

Матрица плотности после зашифрования одноразовым блокнотом имеет вид

$$\begin{aligned} \rho_{U_{K_1} U_K E C_1}^{\text{OTP}} &= U_{\text{OTP}} (\rho_{U_{K_1} U_K E C_1}) U_{\text{OTP}}^+ = \\ &= \left(\frac{1}{|\mathcal{K}|} \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_k \sum_{k_1} |k\rangle_{KK} \langle k| \otimes |k_1\rangle_{K_1 K_1} \langle k_1| \otimes |c_{\text{OTP}}(k_1, k)\rangle_{C_1 C_1} \langle c_{\text{OTP}}(k_1, k)| \right) \otimes \rho_E. \end{aligned} \quad (25)$$

Далее, используя несколько раз неравенство треугольника для следового расстояния, получаем

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \|\rho_{K_1 K E C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K E C_1}^{\text{OTP}}\|_1 &\leq \\ &\leq \frac{1}{2} \|\rho_{K_1 K E C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K E C_1}^{\text{cip}}\|_1 + \frac{1}{2} \|\rho_{U_{K_1} U_K E C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K E C_1}^{\text{OTP}}\|_1 = \\ &= \frac{1}{2} \|U_{\text{cip}} (\rho_{K_1 K E C_1} - \rho_{U_{K_1} U_K E C_1}) U_{\text{cip}}^+\|_1 + \frac{1}{2} \|(\rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{OTP}}) \otimes \rho_E\|_1 = \\ &= \frac{1}{2} \|\rho_K \rho_{K_1 E} - \rho_{U_K} \otimes \rho_{U_{K_1}} \otimes \rho_E\|_1 + \frac{1}{2} \|(\rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{OTP}}) \otimes \rho_E\|_1 \leq \\ &\leq \frac{1}{2} \|\rho_K - \rho_{U_K}\|_1 + \frac{1}{2} \|\rho_{K_1 E} - \rho_{U_{K_1}} \otimes \rho_E\|_1 + \frac{1}{2} \|\rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{OTP}}\|_1 \leq \\ &\leq (\varepsilon_K + \varepsilon_{K_1}) + \frac{1}{2} \|\rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{OTP}}\|_1. \end{aligned} \quad (26)$$

2.2. Оценка следового расстояния блочного шифра до одноразового блокнота. Остается оценить последнее слагаемое в (26). Прямые вычисления дают

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \|\rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_{K_1} U_K C_1}^{\text{OTP}}\|_1 &= \\ &= \frac{1}{2} \frac{1}{|\mathcal{K}|} \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_k \sum_{k_1} \text{Tr}_{C_1} \{ |c_1(k_1, k)\rangle_{C_1 C_1} \langle c_1(k_1, k)| - |c_{\text{OTP}}(k_1, k)\rangle_{C_1 C_1} \langle c_{\text{OTP}}(k_1, k)| \} = \\ &= \frac{1}{|\mathcal{K}|} \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_k \sum_{k_1} \sqrt{1 - |c_1 \langle c_1(k_1, k) | c_{\text{OTP}}(k_1, k) \rangle_{C_1}|^2}. \end{aligned} \quad (27)$$

При каждом k определим множества:

$\mathcal{K}_\perp(k)$ – множество значений шифр-текстов при данном сообщении k , которые отсутствуют – не достигаются ни при одном ключе k_1 .

$\mathcal{K}_1(k)$ – множество значений шифр-текстов при данном сообщении k , которые имеют место только при одном ключе k_1 .

$\mathcal{K}_2(k)$ – множество значений шифр-текстов при данном сообщении k , которые имеют место при двух ключах k_{1_1} и k_{1_2} .

...

$\mathcal{K}_L(k)$ – множество значений шифр-текстов при данном сообщении k , которые имеют место при L ключах $k_{1_1}, k_{1_2}, \dots, k_{1_L}$, $L \leq |\mathcal{K}|$.

При шифровании одноразовым блокнотом для каждого открытого текста (k) и каждого ключа ключа (k_1) имеется только одно значение шифр-текста – все множество шифр-текстов покрывается однократно (рис. 1). На рисунке 1 для иллюстрации показаны множества без коллизий и только множества парных и тройных коллизий.

Множество $\mathcal{K}_\perp$, это множество шифр-текстов, которые отсутствуют при шифровании блочным шифром.

Важно отметить, что выбирается реализация одноразового блокнота ближайшая, в смысле следового расстояния, к блочному шифру. Иначе говоря, такая реализация, при которой при каждом открытом тексте значения шифр-текстов для одноразового блокнота и блочного шифра совпадают на максимально возможном множестве значений ключей (рис. 1). Для остальных значений ключей шифр-тексты для блочного шифра недоступны – пространство $\mathcal{K}_\perp$.

Используя связь следового расстояния и фиделити [7], получаем

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_{k_1} \text{Tr}_{C_1} \{ |c_1(k_1, k)\rangle_{C_1 C_1} \langle c_1(k_1, k)| - \\ & - |c_{OTP}(k_1, k)\rangle_{C_1 C_1} \langle c_{OTP}(k_1, k)| \} = \\ & = \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_{k_1} \sqrt{1 - |c_1 \langle c_1(k_1, k) | c_{OTP}(k_1, k) \rangle_{C_1}|^2}. \\ & = \frac{1}{|\mathcal{K}|} |\mathcal{K}_\perp(k)| = \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_{i=2}^L (i-1) |\mathcal{K}_i(k)| = \frac{|\mathcal{K}_{\text{coll}}(k)|}{|\mathcal{K}|} = \end{aligned} \quad (28)$$

Поясним вычисления по формуле (28). Пусть шифруемый текст k фиксирован, и ключ шифрования есть k_1 .

Пусть множество ключей $\mathcal{K}_1$, для которых существует единственный шифр-текст, то скалярное произведение в (28) на всех ключах из данного множества $|c_1 \langle c_1(k_1, k) | c_{OTP}(k_1, k) \rangle_{C_1}| = 1$ равно единице, поэтому данное слагаемое не дает вклад в сумму по k_1 .

Пусть множество пар ключей $\mathcal{K}_2$, для каждой пары которых существует общий шифр-текст при шифровании блочным шифром. Выберем такую пару ключей $k_{1,1}$ и $k_{1,2}$. На одном из ключей, например, $k_{1,1}$ шифр-тексты для блочного шифра и одноразового блокнота совпадают, скалярное произведение в (28) $|c_1 \langle c_1(k_{1,1}, k) | c_{OTP}(k_{1,1}, k) \rangle_{C_1}| = 1$ равно единице, данное слагаемое не дает вклад в сумму по k_1 .

Однако для второго ключа $k_{1,2}$ шифр-тексты для блочного шифра и одноразового блокнота не совпадают, скалярное произведение в (28) $|c_1 \langle c_1(k_{1,2}, k) | c_{OTP}(k_{1,2}, k) \rangle_{C_1}| = 0$ равно нулю, данное слагаемое дает вклад единица в сумму по k_1 .

В итоге из множества ключей $\mathcal{K}_2$ в сумму (28) дает вклад $(2-1)|\mathcal{K}_2|$ слагаемых.

Аналогичными рассуждениями подсчитывается число слагаемых в сумме (28). Вклад в сумму (28) от множества ключей из $\mathcal{K}_i$ дают $(i-1)|\mathcal{K}_i|$ слагаемых.

Из рассуждений выше следует, что число ненулевых слагаемых в (28) совпадает с размером множества $|\mathcal{K}_\perp(k)|$, это та часть множества шифр-текстов, которые отсутствуют при шифровании блочным шифром. Из рассуждений выше также следует, что (см. для пояснения рис. 1)

$$|\mathcal{K}_\perp(k)| = \sum_{i=2}^L (i-1) |\mathcal{K}_i(k)|,$$

здесь $|\mathcal{K}_i(k)|$ – размер множества i -ых коллизий при данном сообщении k .

При вычислении следового расстояния в (27) удобно сначала вычислять сначала сумму по k_1 при фиксированном k . Это связано с тем, что для разных сообщений k и одним и тем же ключе шифрования k_1 шифр-тексты будут разными, что следует из условия однозначного расшифрования разных сообщений, зашифрованных на одном ключе. По этой причине подсчет ненулевых слагаемых в сумме (27) был бы не столь прозрачным.

Естественно оба способа подсчета приводят к одинаковому результату.

Далее, имеем

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \|\rho_{U_K U_{K_1} C_1}^{\text{cip}} - \rho_{U_K U_{K_1} C_1}^{OTP}\|_1 = \\ & = \frac{1}{|\mathcal{K}|} \sum_k \frac{|\mathcal{K}_{\text{coll}}(k)|}{|\mathcal{K}|} = \overline{|\mathcal{K}_{\text{coll}}|}. \end{aligned} \quad (29)$$

В итоге для средней сложности Q_{U, π_0} поиска ключа с учетом (9) находим

$$Q_{U, \pi_0} \geq \left(1 - \frac{2\delta_1}{\pi_0}\right) \left(\frac{|\mathcal{K}|(1 - 8\delta_1) + 1}{2}\right), \quad (30)$$

где (см. (12), (13))

$$\delta_1 \leq \varepsilon_K + \varepsilon_{K_1} + \overline{|\mathcal{K}_{\text{coll}}|}. \quad (31)$$

3. Заключение и обсуждение результатов.

Таким образом показано, что трудоемкость (сложность перебора) по поиску продвигаемого по сети ключа зависит от величины δ_1 , которая мажорируется величиной $|\overline{\mathcal{K}_\perp}|$, а также величинами $\varepsilon_K, \varepsilon_{K_1}$, которые определяют неидеальность внешнего ключа и квантовых ключей. По смыслу величина $|\overline{\mathcal{K}_\perp}|$ совпадает со средней вероятностью коллизий блочного шифра $|\overline{\mathcal{K}_{\text{coll}}}|$. Чем больше коллизий имеет шифр, соответственно, покрывает меньшее множество шифр-текстов, тем меньшее число шагов перебора требуется для нахождения ключа.

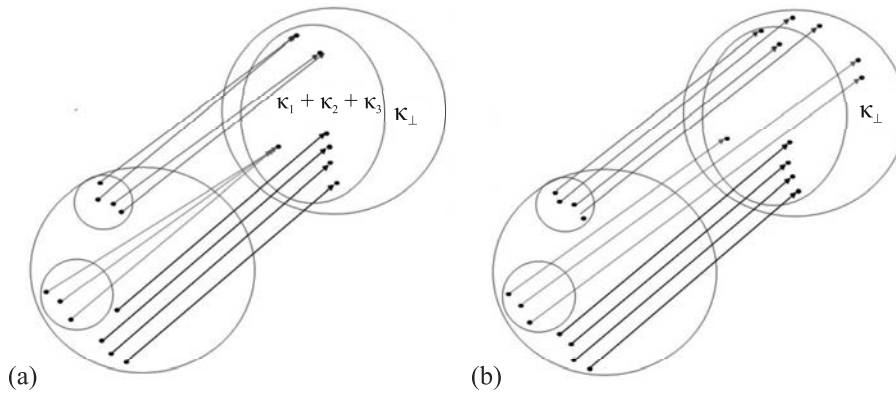


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематическое изображение множества ключей и шифр-текстов для блочного шифра; (б) – схематическое изображение множества ключей и шифр-текстов для одноразового блокнота

Даже в случае идеального внешнего ключа и идеальных квантовых ключей ($\varepsilon_K = 0$, $\varepsilon_{K_1} = 0$), при шифровании внешнего ключа блочным шифром, перенесенный ключ уклоняется, в смысле следового расстояния, от идеального ключа на вероятность коллизий блочного шифра. Трудоемкость по поиску ключа уменьшается по сравнению с полным перебором на число коллизий блочного шифра. Как предельный (патологический пример) плохого шифра, когда число коллизий стремится к размеру полного множества шифров $|K|$ – почти все шифр-тексты на разных ключах слипаются, трудоемкость, согласно (30), (31), формально стремится к нулю – ключ определяется за один шаг перебора.

В то же время, при проталкивании идеального внешнего ключа при шифровании одноразовым блокнотом на идеальных квантовых ключах ($\varepsilon_K = 0$, $\varepsilon_{K_1} = 0$), перенесенный ключ остается идеальным ($\delta_1 = 0$) – все позиции ключа независимы и равновероятны.

На сегодняшний день, неизвестно эффективных алгоритмов для вычисления коллизий ни для одного блочного шифра. Подсчет коллизий на классическом вычислителе требует полного перебора по всему ключевому пространству $|K| = 2^{256}$ (при длине ключа $n = 256$ бит), что практически невозможно.

Длина ключа в российском алгоритме блочного шифрования “Кузнечик” составляет 256 бит. Квантовый алгоритм [8] остается экспоненциально сложным и требует $\sqrt{|K|} = 2^{128}$ шагов вычислений. Выше был рассмотрен случай переноса ключей через один сегмент квантовой сети. Перенос ключей через N сегментов рассматривается аналогично. При этом $\delta_N = \sum_{\ell=1}^N \delta_1$ – секретность ключей падает линейно с ростом числа сегментов, что позволяет оценить критическое число сегментов сети, на которых сохраня-

ется требуемая стойкость (ε -секретность) финального перенесенного ключа.

Таким образом, шифрование продвигаемого ключа одноразовым блокнотом на ключах на отдельных сегментах сохраняет так называемую составную секретность (*composable security*) общего ключа. Однако, использованием одноразового блокнота, в отличие от блочного шифра не обеспечивает аутентичность общего ключа. Кроме секретности ключа, необходимо обеспечить теоретико-информационную аутентичность общего ключа, которая достигается хешированием (см., например, [9]).

Отметим, что обычно используемый перенос ключа с помощью операции XOR (см., например, [10]), без дальнейших исследований “качества” перенесенного ключа – близости распределения ключей к идеальному равновероятному, недостаточен, для того, чтобы знать криптографические свойства финального ключа (в том числе и сложность, трудоемкость поиска ключа при его дальнейшем использовании для шифрования сообщений). Кроме того, полученные выше оценки позволяют оценить насколько безопасно можно использовать данный ключ в последующих сеансах – какое число переносов по сети можно сделать, до тех пор пока отклонение (фактически δ_1 в (31)) распределения вероятностей перенесенного ключа от равновероятного не превысит критической величины.

Как было показано ранее [6], величина δ_1 , от которой зависит трудоемкость перебора, имеет следующий операциональный смысл. Пусть размер полного ключевого пространства $|K| = 2^{256} \approx 1.5 \cdot 10^{77}$ (напомним, что число атомов в видимой части Вселенной оценивается как 10^{77}). Пусть опробовывается M первых ключей. Число шагов перебора даже при $M = 2^{128} \approx 10^{38}$ является запредельным. Величи-

на δ_1 (31), которую можно реально достичь в системах квантовой криптографии на сегодня, имеет порядок $\delta_1 = 2^{-32} \approx 2.5 \cdot 10^{-10}$. Поэтому $|\mathcal{K}|\delta_1 \gg M$, в этом случае среднее число шагов опробования ключей до первого определения ключа – до первого сообщения, которое, возможно, будет дешифровано, есть $\approx \frac{1}{\delta_1} \approx 10^{10}$, т.е. из 10^{10} сообщений в среднем, возможно, будет прочитано одно сообщение. После переноса через N сегментов (или шифровании на ключе N раз) среднее число сообщений до первого прочитанного будет $\approx \frac{1}{N\delta_1}$.

Выражаю благодарность И. М. Арбекову, В. А. Кирюхину, С. П. Кулику, А. В. Уривскому, а также коллегам по Академии криптографии Российской Федерации и Инфотекс за многочисленные интересные обсуждения и замечания.

1. <https://www.youtube.com/watch?v=0WAuDeYhKbo>.
2. R. Renner, arXiv:quant-ph/0512258v2 11 Jan 2006.
3. Ch. Portmann and R. Renner, arXiv:1409.3525v1 [quant-ph] 11 Sep 2014.
4. C. E. Shannon, *A Mathematical Theory of Communication*, Bell System Technical Journal, July, 379 (1948); Oct., 623 (1948); *The material in this paper appeared originally in a confidential report A Mathematical Theory of Cryptography*, dated Sept. 1, (1945).
5. И. М. Арбеков, Математические вопросы криптографии **78**(2), 27 (2017).
6. И. М. Арбеков, С. Н. Молотков, ЖЭТФ **151**(6), 1 (2017).
7. M. M. Wilde, arXiv:1106.1445v6 [quant-ph] 2 Dec 2015.
8. С. Н. Молотков, Письма в ЖЭТФ **117**, 80 (2023).
9. S. N. Molotkov, Laser Phys. Lett. **19**, 075203 (2022).
10. Д. Д. Сукачев, Успехи физических наук **191**(10), 1077 (2021), раздел 6.2 “Доверенные узлы”.

Содержание

Том 117, выпуск 5

Поля, частицы, ядра

Волков М.К., Нурлан К. Распады τ -лептона с рождением странных скалярных мезонов $K_0^*(700)$ и $K_0^*(1430)$ в расширенной модели НИЛ	325
---	-----

Борняков В.Г., Кудров И.Е. Декомпозиция статического потенциала в $SU(3)$ глюодинамике ..	332
---	-----

Оптика, лазерная физика

Шленов С.А., Компанец В.О., Кандидов В.П., Чекалин С.В., Васильев Е.В. Каналы филаментов аксиально-несимметричных оптических вихрей на длине волны 1800 нм в кристалле LiF	337
--	-----

Архипова А.А., Журавицкий С.А., Скрябин Н.Н., Дьяконов И.В., Калинин А.А., Кулик С.П., Чекалин С.В., Карташов Я.В., Задков В.Н., Компанец В.О. Наблюдение пространственно-временной самокомпрессии импульсов в одномерных массивах волноводов, изготовленных методом лазерной записи	344
--	-----

Кривобок В.С., Аминев Д.Ф., Онищенко Е.Е., Ушаков В.В., Ченцов С.И., Зазымкина Д.А. Тонкая структура перехода $^3T_1(^3H) \rightarrow ^5E(^5D)$ иона Fe^{2+} в селениде цинка	350
---	-----

Конденсированное состояние

Ваньков А.Б. Характер смешивания уровней Ландау и функция распределения электронов в режиме квантового эффекта Холла	356
--	-----

Ахматов З.А., Ахматов З.А. Зонная структура двухслойного графена, интеркалированного атомами калия. Расчеты из первых принципов	363
---	-----

Фильнов С.О., Естюнин Д.А., Климовских И.И., Макарова Т.П., Королева А.В., Рыбкина А.А., Чумаков Р.Г., Лебедев А.М., Вилков О.Ю., Шикин А.М., Рыбкин А.Г. Совместная интеркаляция ультратонких пленок Fe и Co под буферный слой графена на монокристалле SiC(0001)	369
--	-----

Балякин И.А., Рыльцев Р.Е., Щелкачев Н.М. Структурная наследственность жидкость-кристалл в потенциалах машинного обучения для сетевых систем	377
--	-----

Anisimov V.I., Oganov A.R., Mazannikova M.A., Novoselov D.Y., Korotin D.M. Formal valence, charge distribution and chemical bond in a compound with a high oxidation state: $KMnO_4$...	385
--	-----

Kharlanov O.G. Effects of quantum recoil forces in resistive switching in memristors	387
--	-----

Биофизика

Жаворонков Ю.А., Ульянов С.В., Вальков А.Ю., Кузьмин В.Л. Обратное рассеяние инфракрасного излучения многослойной модельной биотканью	389
--	-----

Содержание

Том 117, выпуск 6

Поля, частицы, ядра

- Abdulov N.A., Kotikov A.V., Lipatov A.V. On x -independence of $R^Q = F_L^Q/F_2^Q$ ratio at low x . 399

Оптика, лазерная физика

- Врублевская Н.Р., Шипило Д.Е., Николаева И.А., Панов Н.А., Косарева О.Г. Нелинейный отклик разреженных газов на ультрафиолетовый фемтосекундный импульс 400

- Юдин В.И., Тайченачев А.В., Басалаев М.Ю., Прудников О.Н., Пальчиков В.Г., Занон-Виллетт Т., Багаев С.Н. Влияние свободного движения атомов на эффекты, зависящие от плотности атомов, в нелинейной лазерной спектроскопии резонансных газовых сред 406

- Казанов Д.Р., Монахов А.М. Оптические моды в эллиптических микрорезонаторах для однофотонных источников 414

Плазма, гидро- и газодинамика

- Резниченко Ю.С., Дубинский А.Ю., Попель С.И. К вопросу о формировании облаков в запыленной ионосфере Марса 420

- Андреев Г.И., Бычков В.Л., Шевелько В.П. Взаимодействие пучков тяжелых ионов с электронами плазмы: роль процессов многоэлектронной ионизации 428

Конденсированное состояние

- Токсумаков А.Н., Байдышев В.С., Квашнин Д.Г., Попов З.И. Дуализм связи и оптоэлектронные свойства бислойных углеродных структур на основе фазы T12 и пента-графена 434

- Чернодубов Д.А., Бондарева Ю.В., Шибалов М.В., Мумляков А.М., Жданов В.Л., Тархов М.А., Маслаков К.И., Суетин Н.В., Квашнин Д.Г., Евлашин С.А. Измерение теплопроводности углеродных наностенок методом третьей гармоники 443

- Макрушин М.А., Арсеев П.И., Красиков К.М., Кадыров Л.С., Жукова Е.С., Случанко Н.Е. Генезис коллективных возбуждений в спектрах проводимости высших боридов $R\text{B}_6$ и $R\text{B}_{12}$ с кооперативной структурной неустойчивостью 450

- Подливаев А.И. Радиационное формирование межслоевых перемычек в двухслойном графене . 456

- Таланов Ю.И., Гимазов И.И., Зарипов Р.Б., Перваков К.С., Власенко В.А., Пудалов В.М. Исследование нематичности антиферромагнитного состояния в EuFe_2As_2 с помощью магнитных и магниторезонансных измерений 464

Квантовая информатика

Молотков С.Н. Перенос секретных ключей в квантовой сети с доверенными промежуточными узлами и шифрованием блочным шифром	470
---	-----