



Письма
в
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ

www.sciencejournals.ru



РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 117

Выпуск 7

10 апреля 2023

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора

Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

© Российская академия наук, 2023

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

Новые объекты в теории рассеяния с симметриями¹⁾

А. С. Лосев^{+* 2)}, Т. В. Сулимов^{× 2)}

⁺ Wu Wen-Tsun Key Lab of Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, 230026 Hefei, China

^{*} Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 119048 Москва, Россия

[×] Санкт-Петербургское отделение Математического института им. В. А. Стеклова РАН, 191023 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 20 февраля 2023 г.

После переработки 3 марта 2023 г.

Принята к публикации 3 марта 2023 г.

Рассматривается одномерная квантовомеханическая задача рассеяния, определяемая гамильтонианом с симметриями. Показывается, что рассмотрение симметрий в духе гомологической алгебры приводит к новым объектам, обобщающим T - и K -матрицы. Эти новые объекты объединены со старыми внутри дифференциала, порождаемого гомотопическим трансфером взаимодействия и симметрий, действующих на решениях свободной задачи. Таким образом, новые и старые объекты удовлетворяют интересным квадратичным уравнениям, нетривиальность которых демонстрируется на примере суперсимметричной задачи на окружности.

DOI: 10.31857/S1234567823070017, EDN: jfgnqc

1. Введение и результаты. Рассмотрим нерелятивистскую одномерную квантовомеханическую задачу о частице со внутренними степенями свободы, такими как спин или изоспин. Пространство состояний частицы описывается тензорным произведением пространства функций на прямой (\mathbb{R}) или на окружности радиуса R (S_R^1) и конечномерного пространства внутренних степеней свободы I . Гамильтониан представим в виде $H = H_0 + V$, где H_0 – свободный гамильтониан, действующий на функции как $-\partial_x^2$, а на I действующий тривиально; и V – взаимодействие, меняющее I , и как обобщенная функция имеющее

- ограниченный носитель (для задачи на \mathbb{R});
- носитель с мерой меньше $2\pi R$ (для задачи на S_R^1).

Мы будем решать задачу пертурбативно, т.е. начнем с решения свободной задачи и рассмотрим соответствующее решение полной задачи как ряд по взаимодействию. Поскольку нас интересуют решения свободной задачи с фиксированной энергией E , удобно определить сдвинутый гамильтониан $H_{0,E} = H_0 - E$.

Рассмотрим задачу на \mathbb{R} . Матричный элемент пертурбативной T -матрицы между двумя со-

стояниями непрерывного спектра с энергией E $|\varphi_\alpha\rangle, |\varphi_\beta\rangle \in \ker H_{0,E}$ определяется как

$$T_{\beta,\alpha} = \langle \varphi_\beta | T | \varphi_\alpha \rangle = \langle \varphi_\beta | V + VG_{\text{caus}}V + VG_{\text{caus}}VG_{\text{caus}}V + \dots | \varphi_\alpha \rangle, \quad (1)$$

где G_{caus} – причинная функция Грина

$$G_{\text{caus}} = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} (E - H_0 + i\varepsilon)^{-1}. \quad (2)$$

Как известно, T является пертурбативным решением уравнения Липмана–Швингера на (непертурбативную) T -матрицу T^{np} :

$$T^{\text{np}} = V + VG_{\text{caus}}T^{\text{np}}. \quad (3)$$

В свою очередь T^{np} , как и функция Грина полной задачи

$$G_{\text{caus}}^{\text{full}} = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} (E - H + i\varepsilon)^{-1}, \quad (4)$$

содержит в себе всю информацию о рассеянии частиц, а также связанных состояниях (см., например, [1]).

Пусть \mathfrak{g} – (супер)алгебра симметрий H с генераторами S_a :

$$[S_a, H] = 0, \quad \{S_a, S_b\} = f_{ab}^d S_d, \quad (5)$$

где $\{, \}$ обозначает суперкоммутатор. Заметим, что сам гамильтониан тоже является симметрией, поскольку $[H, H] = 0$. Логично спросить, как симметрии гамильтониана отражены в симметриях T^{np} или, по крайней мере в симметриях T .

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

²⁾e-mail: aslosev2@yandex.ru; optimus260@gmail.com

В этой работе мы постараемся ответить на этот вопрос. Для формулировки довольно нетривиального ответа нам потребуется ввести *новые объекты*, не рассмотренные ранее в теории рассеяния, насколько нам известно. Мы также покажем, что эти объекты связаны квадратичными соотношениями. В нашем текущем понимании, эти объекты можно получить из задачи на S_R^1 в пределе $R \rightarrow \infty$. Мы предполагаем, что их можно определить и сразу на \mathbb{R} , но над этим способом мы еще работаем.

Для начала, от T -матрицы мы перейдем к K -матрице (см., например, [2]), определяемой соотношением

$$K = T + \frac{i}{2\sqrt{E}}TK. \tag{6}$$

Пример. Рассмотрим $V(x) = \lambda\delta(x)$. T -матрицу легко вычислить по любой из формул выше:

$$T(p, q) = \frac{\lambda}{1 - \frac{\lambda}{2i\kappa}}, \tag{7}$$

где $\kappa = \sqrt{E}$, а от внешних импульсов зависимости нет. По формуле (6) мы получаем

$$K(p, q) = \lambda. \tag{8}$$

K оказалась равна V , что в общем случае, разумеется, будет не так.

Ряд теории возмущений для K получается из (1) заменой причинной функции Грина на функцию Грина стоячей волны.

Затем мы введем *духи*, соответствующие симметриям. Духи c^a – это координаты на \mathfrak{g} с измененной четностью. Проще говоря, если S_a четная, то c^a нечетный, и наоборот. Нечетный дух, отвечающий гамильтониану, обозначим c , а остальные духи обозначим \tilde{c}^a .

Оказывается, K суть одна из компонент дифференциала Q_{ind} , действующего на пространстве $\ker H_{0,E} \otimes \mathbb{C}[[c^a, R^{-1}]]$. Переменная R^{-1} четная и приходит из задачи на S_R^1 , разбираемой в секциях 3.2 и 3.3. Квадратичные уравнения же имеют вид

$$Q_{\text{ind}}^2 = 0. \tag{9}$$

Перейдем к построению Q_{ind} из симметрий. Мы предполагаем, что, подобно гамильтониану, каждая симметрия S_a разделяется на две части:

$$S_a = S_{0,a} + S_{1,a}, \tag{10}$$

где $S_{0,a}$ – симметрия свободной задачи, а $S_{1,a}$ – обобщенная функция с теми же условиями, что и на V .

Теперь мы конструируем Q_{ind} с помощью процедуры *гомотопического трансфера* (применяется в

секции 2.1, подробнее см. [3] и [4]). В виде ряда по духам дифференциал имеет вид

$$Q_{\text{ind}} = \frac{1}{2}f_{ab}^d c^a c^b \partial_{c^d} + c^a S_a(R^{-1}) + c^a c^b S_{ab}(R^{-1}) + \dots \tag{11}$$

В нулевом порядке по R^{-1} второе слагаемое в разложении содержит все симметрии H_0 , суженные на $\ker H_{0,E}$

$$Q_{\text{ind}}^{(0)} = \frac{1}{2}f_{ab}^d c^a c^b \partial_{c^d} + c^a S_{0,a} \Big|_{\ker H_{0,E}}. \tag{12}$$

В первом порядке по R^{-1} имеем

$$Q_{\text{ind}}^{(1)} = c^a S_a^{(1)} + c^a c^b S_{ab}^{(1)} + \dots = cK + \tilde{c}^a S_a^{(1)} + c^a c^b S_{ab}^{(1)} + \dots \tag{13}$$

Как было заявлено выше, K -матрица появляется как коэффициент при выделенном духе c , в то время как остальные члены разложения это *новые объекты* (операторы на $\ker H_{0,E}$). Насколько нам известно, высшие порядки по R^{-1} также не встречались раньше в литературе. Все эти новые объекты, а также квадратичные уравнения, связывающие их между собой и с K -матрицей, составляют главный результат данной работы.

2. Теория.

2.1. Гомотопический трансфер. Суть гомотопического трансфера состоит в следующем. Пусть даны два комплекса, ценное отображение между ними и гомотопия в первом из них. Тогда по деформации дифференциала в первом комплексе можно построить соответствующую деформацию во втором. Вместо того, чтобы формулировать эту процедуру во всей общности (см. [4]), мы рассмотрим ее на конкретном примере.

Мы проиллюстрируем идеи секции 1 на простейшем нетривиальном примере $\mathcal{N} = 1$ суперсимметричной квантовой механики на S_R^1 . Кроме того, мы рассмотрим алгебру, состоящую только из гамильтониана и одной симметрии, квадрат которой равен нулю:

$$[S, H] = 0, \quad S^2 = 0. \tag{14}$$

Таким образом, все структурные константы f_{ab}^d равны нулю, и первое слагаемое в разложении (11) пропадет.

Соответствующие духи обозначим c и \tilde{c} . Их свойства:

1. c – нечетный, \tilde{c} четный;
2. c антикоммутирует с S .

С их помощью построим дифференциалы

$$Q_0 = cH_{0,E} + \tilde{c}S_0, \quad Q_1 = cV + \tilde{c}S_1, \quad Q = Q_0 + Q_1. \quad (15)$$

Из соотношений (14) и свойств духов следует, что

$$Q_0^2 = Q^2 = 0, \quad (16)$$

а Q_1 решает уравнение Мауэра–Картана

$$\{Q_0, Q_1\} + Q_1^2 = 0. \quad (17)$$

Пусть \mathcal{H} обозначает исходное гильбертово пространство. Определим $U = \mathcal{H} \otimes \mathbb{C}[c, \tilde{c}]$ и разобьем это пространство на два

$$U = U_0 \oplus U_{ac}, \quad U_0 = \ker H_{0,E} \otimes \mathbb{C}[c, \tilde{c}]. \quad (18)$$

Введем естественные операции проекции и включения

$$\pi : U \rightarrow U_0, \quad i : U_0 \rightarrow U. \quad (19)$$

Также построим *гомотопию*

$$h = G_{st}\partial_c, \quad G_{st}|\varphi\rangle = \begin{cases} (E - H_0)^{-1}|\varphi\rangle, & |\varphi\rangle \notin U_0, \\ 0, & |\varphi\rangle \in U_0, \end{cases} \quad (20)$$

где $\partial_c = \frac{\partial}{\partial c}$.

Замечание. В физике G_{st} иногда называют функцией Грина стоячей волны, но в духе гомологической алгебры надо было бы назвать ее *гомотопической* функцией Грина.

Проекцию на U_0 можно записать двумя способами:

$$\Pi_{U_0} = i\pi = 1 + \{h, Q_0\}. \quad (21)$$

Теперь мы можем явно указать, к чему мы применяем гомотопический трансфер. Первый комплекс – это (U, Q_0) с гомотопией h и деформацией Q_1 . Второй комплекс – это $(U_0, \pi Q_0 i)$, а цепное отображение – это π . Тогда соответствующий деформированный или *индуцированный* дифференциал, согласно гомотопическому трансферу, равен

$$Q_{ind} = \pi Q_0 i + \pi Q_1 i + \pi Q_1 h Q_1 i + \pi Q_1 h Q_1 h Q_1 i + \dots \quad (22)$$

Подставляя и приводя подобные слагаемые, несложно привести это к виду

$$Q_{ind} = \tilde{c}S_0 + cV_{ind} + c\partial_c\tilde{c}S_R + \partial_c c\tilde{c}S_L - \partial_c \tilde{c}^2 S_{LR}, \quad (23)$$

где S_0 , строго говоря, стоит вместо $S_0|_{\ker H_{0,E}}$, но поскольку $[S_0, H_0] = 0$, мы упростили обозначения. Кроме того,

$$V_{ind} = \pi(V + VG_{st}V + VG_{st}VG_{st}V + \dots)i, \quad (24)$$

$$S_R = \pi(S + VG_{st}S + VG_{st}VG_{st}S + \dots)i, \quad (25)$$

$$S_L = \pi(S + SG_{st}V + SG_{st}VG_{st}V + \dots)i, \quad (26)$$

$$S_{LR} = \quad (27)$$

$$= \pi(SG_{st}S + SG_{st}VG_{st}S + SG_{st}VG_{st}VG_{st}S + \dots)i.$$

Теперь мы можем воспользоваться главным результатом гомотопического трансфера. Поскольку $Q^2 = 0$, по теореме Кадеишвили имеем

$$Q_{ind}^2 = 0. \quad (28)$$

В развернутой форме это уравнение имеет вид

$$Q_{ind}^2 = c\tilde{c}[V_{ind}, S_0] + c\partial_c\tilde{c}^2\{S_0, S_R\} + \partial_c c\tilde{c}^2\{S_0, S_L\} + \partial_c \tilde{c}^3\{S_0, S_{LR}\} + c\tilde{c}(V_{ind}S_L - S_RV_{ind}) + \tilde{c}^2(c\partial_c(S_R^2 - V_{ind}S_{LR}) + \partial_c c(S_L^2 - S_{LR}V_{ind})), \quad (29)$$

из чего следует

$$\left\{ \begin{array}{l} [V_{ind}, S_0] + V_{ind}S_L - S_RV_{ind} = 0, \end{array} \right. \quad (30)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \{S_0, S_R\} + S_R^2 - V_{ind}S_{LR} = 0, \end{array} \right. \quad (31)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \{S_0, S_L\} + S_L^2 - S_{LR}V_{ind} = 0, \end{array} \right. \quad (32)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} [S_0, S_{LR}] = 0. \end{array} \right. \quad (33)$$

Уточним, что S_L , S_R и S_{LR} – операторы на $\ker H_{0,E}$, описывающие симметрии K -матрицы, которая входит в V_{ind} . Насколько нам известно, это новые объекты в теории рассеяния. Кроме того, V_{ind} содержит, помимо K -матрицы, и другие слагаемые, которые появятся в конце секции 3.2. Эти слагаемые играют важную роль в описании симметрий K -матрицы и тоже раньше не описывались.

3. Примеры новых объектов и их связь с данными рассеяния.

3.1. *Суперсимметричная квантовая механика.* $\mathcal{N} = 1$ суперсимметричная квантовая механика определяется набором следующих операторов:

$$Q_+ = d + dW, \quad Q_- = (d - dW)^*, \quad H = \{Q_+, Q_-\}, \quad (34)$$

где W – функция, $d = \psi\partial_x$ – дифференциал де Рама, $\psi^* = -\partial_\psi$ и ψ – грассманова переменная, ассоциированная с суперсимметрией (общий обзор и историю предмета см. в [5]).

Замечание. И Q_+ , и Q_- – симметрии полного гамильтониана, но не отдельных его частей.

Выпишем гамильтониан и его симметрии явно:

$$H = -\partial_x^2 + W'^2 - W''(1 - 2\psi\partial_\psi), \quad (35)$$

$$Q_+ = \psi(\partial_x + W'), \quad Q_- = \partial_\psi(-\partial_x + W'). \quad (36)$$

Замечание. Данную формулировку нетрудно расширить на случаи, когда W и W' – обобщенные функции. Это можно сделать с помощью последовательности функций, сходящейся к требуемой обобщенной функции. Например, $W' = \operatorname{sgn}x$ можно получить как предел $W'_A = \tanh Ax$ (и, соответственно, $W_A = A^{-1} \ln \cosh Ax$) при $A \rightarrow \infty$.

Примем $S = Q_+$. Ясно, что $S_{LR} \sim \psi^2 = 0$, поэтому уравнения (31)–(33) не будут представлять интереса. Уравнение (30) же описывает интересную симметрию V_{ind} , который, как мы показывали ранее, напрямую связан с K -матрицей.

Замечание. Если бы мы рассмотрели $S = Q_+ + Q_-$, S_{LR} непременно бы возникла.

Далее мы изучим это уравнение для конкретного потенциала на S^1_R и получим результат для задачи на \mathbb{R} как предел $R \rightarrow \infty$.

3.2. Два δ -потенциала на S^1_R . Сразу отметим, что на S^1_R нельзя поставить задачу рассеяния в обычном смысле. Вместо этого, V_{ind} можно использовать, например, для пертурбативного вычисления сдвигов и расщеплений уровней энергии. Но это мы оставим для последующих работ, а сейчас рассмотрим V_{ind} само по себе.

В дальнейшем станет ясно, почему мы рассматриваем задачу на S^1_R , а не сразу на \mathbb{R} . Пока лишь скажем, что эта задача проще для понимания благодаря своему дискретному спектру. При работе с непрерывным спектром проекция на $\ker H_{0,E}$, состоящее из двух точек на оси импульса, требует более аккуратного рассмотрения.

Причина же рассматривать два δ -потенциала вместо одного в том, что один δ -потенциал нельзя породить периодической W' .

На S^1_R мы используем координату $x \in [-\pi R, \pi R)$. Рассмотрим

$$W'(x) = \frac{\lambda}{2} \operatorname{sgn}(a^2 - x^2), \tag{37}$$

где λ и a – фиксированные параметры, причем $0 < a < \pi R$.

Замечание. Внимательный читатель заметит, что такая W' соответствует непериодическому W . Но это лишь означает, что суперсимметрия спонтанно нарушена, т.е. e^{-W} не является волновой функцией связанного состояния (см. [5]).

Согласно (35), такая W' порождает взаимодействие

$$\frac{\lambda^2}{4} + (-1)^F \lambda (\delta(x - a) - \delta(x + a)), \tag{38}$$

где F – фермионное число, т.е. $(-1)^F = 1 - 2\psi\partial_\psi$.

Ясно, что в таком виде потенциал неудобен для задачи рассеяния из-за постоянного сдвига $\frac{\lambda^2}{4}$. Мы

перенесем его в “свободную часть” задачи, чтобы носитель взаимодействия был ограничен в пределе $R \rightarrow \infty$:

$$H_{0,E} = -\partial_x^2 - E - \frac{\lambda^2}{4}, \tag{39}$$

$$V(x) = (-1)^F \lambda (\delta(x - a) - \delta(x + a)).$$

Аналогично поступаем и для симметрии:

$$S_0 = \psi(\partial_x - \frac{\lambda}{2}), \quad S_1 = \psi\lambda\theta(a^2 - x^2). \tag{40}$$

Условие периодичности волновых функций делает спектр свободной задачи дискретным:

$$E_n = k_n^2 - \frac{\lambda^2}{4}, \quad k_n = \frac{n}{R}, \quad n \in \mathbb{Z}. \tag{41}$$

Зафиксируем отношение $\kappa = \frac{n_0}{R} > 0$.

Замечание. Это означает, что в дальнейшем R должно быть кратно $\frac{1}{\kappa}$.

Каждый уровень с положительным n дважды вырожден, поэтому $\ker H_{0,E}$ имеет размерность четыре.

Замечание. Мы не забываем, что бозонные и фермионные степени свободы нужно учитывать отдельно. Однако матрицы операторов получатся размера 2×2 , а не 4×4 , потому что мы используем для этого учета грасманову переменную ψ .

Нормированные волновые функции свободной задачи – это

$$\varphi_n(x) = \langle x|n\rangle = \frac{e^{ik_n x}}{\sqrt{2\pi R}}, \tag{42}$$

а функция Грина стоячей волны имеет вид

$$G_{\text{st}} = \sum_{|n| \neq n_0} \frac{|n\rangle\langle n|}{E_{n_0} - E_n} = \sum_{|n| \neq n_0} \frac{|n\rangle\langle n|}{\kappa^2 - k_n^2}. \tag{43}$$

Нам понадобятся матричные элементы следующих операторов:

$$V_{n,m} = \frac{i(-1)^F \lambda}{\pi R} \sin a(k_m - k_n), \tag{44}$$

$$G_{h,n,m} = \frac{\delta_{n,m}}{\kappa^2 - k_n^2},$$

$$S_{0,n,m} = \psi \left(ik_n - \frac{\lambda}{2} \right) \delta_{n,m}, \tag{45}$$

$$S_{1,n,m} = \psi \frac{\lambda \sin a(k_m - k_n)}{\pi R (k_m - k_n)}.$$

Сужение на массовую поверхность тривиально: оператору A мы сопоставляем 2×2 матрицу

$$A|_{\ker H_{0,E}} = \pi A i = \begin{pmatrix} A_{n_0, n_0} & A_{n_0, -n_0} \\ A_{-n_0, n_0} & A_{-n_0, -n_0} \end{pmatrix}. \tag{46}$$

Замечание. Еще раз заметим, что элементы матрицы $A|_{\ker H_{0,E}}$ могут зависеть от ψ и ∂_ψ , как видно для V и S .

Эти выражения позволяют нам вычислить V_{ind} , S_L и S_R в виде ряда по λ . Используя систему компьютерной алгебры, нам удалось произвести вычисления до порядка λ^3 . Результаты вычислений приведены в дополнительном материале.

Важно отметить, что n -й член ряда оказывается многочленом по R^{-1} степени n . Поскольку соотношения суперсимметрии выполняются для произвольного радиуса R , каждой степени λ отвечают *несколько* уравнений. Обозначим слагаемое, пропорциональное $\lambda^\alpha R^{-\beta}$, индексом (α, β) . Теперь уравнение (30) можно проверить пертурбативно:

$$(1, 1) : [V_{\text{ind}}^{(1,1)}, S_0^{(0,0)}] = 0, \quad (47)$$

$$(2, 1) : [V_{\text{ind}}^{(2,1)}, S_0^{(0,0)}] + [V_{\text{ind}}^{(1,1)}, S_0^{(1,0)}] = 0, \quad (48)$$

$$(2, 2) : [V_{\text{ind}}^{(2,2)}, S_0^{(0,0)}] + V_{\text{ind}}^{(1,1)} S_L^{(1,1)} - S_R^{(1,1)} V_{\text{ind}}^{(1,1)} = 0, \quad (49)$$

$$(3, 1) : [V_{\text{ind}}^{(3,1)}, S_0^{(0,0)}] + [V_{\text{ind}}^{(2,1)}, S_0^{(1,0)}] = 0, \quad (50)$$

$$(3, 2) : [V_{\text{ind}}^{(3,2)}, S_0^{(0,0)}] + [V_{\text{ind}}^{(2,2)}, S_0^{(1,0)}] + V_{\text{ind}}^{(1,1)} S_L^{(2,1)} - S_R^{(2,1)} V_{\text{ind}}^{(1,1)} + V_{\text{ind}}^{(2,1)} S_L^{(1,1)} - S_R^{(1,1)} V_{\text{ind}}^{(2,1)} = 0, \quad (51)$$

$$(3, 3) : [V_{\text{ind}}^{(3,3)}, S_0^{(0,0)}] + V_{\text{ind}}^{(1,1)} S_L^{(2,2)} - S_R^{(2,2)} V_{\text{ind}}^{(1,1)} + V_{\text{ind}}^{(2,2)} S_L^{(1,1)} - S_R^{(1,1)} V_{\text{ind}}^{(2,2)} = 0, \quad (52)$$

$$(4, 1) : \dots$$

...

3.3. Предел $R \rightarrow \infty$. Чтобы глубже понять уравнения выше, полезно перейти к пределу окружности бесконечного радиуса. При $R \rightarrow \infty$ дискретизация уровней становится равной нулю и задача совпадает с задачей на \mathbb{R} . Чтобы восстановить стандартную нормировку состояний на δ -функцию, нужно домножить каждый $|n\rangle$ на $\sqrt{2\pi R}$, что приводит к следующему соотношению на матричные элементы операторов:

$$A^{\mathbb{R}}(k_n, k_m) = \lim_{R \rightarrow \infty} 2\pi R A_{n,m}^{S_R^1}. \quad (53)$$

Выражение (43) становится интегралом в смысле главного значения и

$$V_{\text{ind}}^{\mathbb{R}} = 2\pi R (V_{\text{ind}}^{(1,1)} + V_{\text{ind}}^{(2,1)} + V_{\text{ind}}^{(3,1)} + \dots), \quad (54)$$

$$S_L^{\mathbb{R}} = 2\pi R (S_L^{(1,1)} + S_L^{(2,1)} + S_L^{(3,1)} + \dots), \quad (55)$$

$$S_R^{\mathbb{R}} = 2\pi R (S_R^{(1,1)} + S_R^{(2,1)} + S_R^{(3,1)} + \dots). \quad (56)$$

Слагаемые, приведенные в дополнительном материале, согласуются с точными формулами для $V_{\text{ind}}^{\mathbb{R}}$, $S_L^{\mathbb{R}}$ и $S_R^{\mathbb{R}}$, которые нам удалось получить. Эти формулы также представлены в дополнительном материале.

Однако для S_0 предел в формуле (53) не существует. Это ожидаемо, поскольку попытка сузить

$$S_0(p, q) = (ip - \frac{\lambda}{2})\delta(p - q) \quad (57)$$

на массовую поверхность приводит к сингулярности, и хорошо известно, что при регуляризации методом “ящика конечного размера” $\delta(0) \sim R$.

Кроме того, слагаемые степеней (\cdot, β) , $\beta > 1$ не появились бы, если бы мы проводили вычисления сразу на \mathbb{R} , без помощи S_R^1 .

В итоге, на \mathbb{R} нельзя простым образом записать такие уравнения, как (49), поскольку первое слагаемое является неопределенностью вида “ $0 \times \infty$ ”. Именно поэтому мы начали с задачи на S_R^1 , а не на \mathbb{R} .

3.4. *Заключительное предположение.* Мы предполагаем, что слагаемые степеней (\cdot, β) , $\beta > 1$ в Q_{ind} могут быть получены и без рассмотрения задачи на S_R^1 , по крайней мере, пертурбативно по λ , как в формуле (24).

Исследование финансировалось в рамках Программы фундаментальных исследований НИУ ВШЭ.

1. J. R. Taylor, *Scattering Theory: The Quantum Theory of Nonrelativistic Collisions*, John Wiley and Sons, Inc., N. Y. (1972), ch. 3 and 14 (section e).
2. R. G. Newton, *Scattering Theory of Waves and Particles*, Springer, Berlin, Heidelberg (1982), § 11.3.2.
3. A. Losev, *TQFT, homological algebra and elements of K. Saito’s theory of Primitive form: an attempt of mathematical text written by mathematical physicist*, in *Primitive Forms and Related Subjects—Kavli IPMU 2014*, Mathematical Society of Japan (2019), p. 269; e-Print: 2301.01390.
4. A. S. Arvanitakis, O. Hohm, C. Hull, and V. Lekeu, *Fortsch. Phys.* **70**(2–3), 2200003 (2022); doi:10.1002/prop.202200003; arXiv:2007.07942 [hep-th].
5. F. Cooper, A. Khare, and U. Sukhatme, *Phys. Rep.* **251**, 267 (1995); doi:10.1016/0370-1573(94)00080-M; arXiv:hep-th/9405029 [hep-th].

Форм-фактор в переходном излучении от полых пучков

Д. Ю. Сергеева⁺, А. А. Тищенко^{+*1)}

⁺ Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, 115409 Москва, Россия

* Международная научно-образовательная лаборатория радиационной физики, Национальный исследовательский университет “БелГУ”, 308034 Белгород, Россия

Поступила в редакцию 26 февраля 2023 г.

После переработки 3 марта 2023 г.

Принята к публикации 3 марта 2023 г.

Рассчитан форм-фактор полого электронного пучка для процесса переходного излучения. Показано, что характеристики когерентного излучения существенно различны для обычных сплошных пучков и для полых. Численные оценки проведены для терагерцового диапазона частот и релятивистских энергий электронов.

DOI: 10.31857/S1234567823070029, EDN: jfzodf

1. Введение. Полые электронные пучки – это пучки, имеющие поперечный профиль в виде кольца. Последнее время они активно исследуются. Например, в работах [1–3] была предложена идея использовать полые электронные пучки для коллимации высокоинтенсивных основных протонных или ионных пучков на Большом адронном коллайдере в ЦЕРНе. При этом электронные пучки внедряются в систему коллимации для очистки гало, а основной пучок циркулирует внутри полого электронного пучка. Полый электронный пучок резонансно возбуждает хвосты основного пучка, а его ядро остается невозмущенным. Эти устройства называются полыми электронными линзами. Проблема очистки гало актуальна в связи с ведущимися работами по увеличению интегральной светимости на Большом адронном коллайдере в 10 раз.

При работе с полыми электронными линзами остро встает вопрос о диагностике поперечных размеров обоих пучков – основного и полого электронного. Одна из активно разрабатываемых сейчас идей – использовать флюоресценцию газа [4]. Преимущество этого метода заключается в том, что свойства пучка практически не нарушаются при измерениях. Так как метод новый, то для его перекрестной проверки используется оптическое переходное излучение. Мониторы на оптическом переходном излучении хорошо зарекомендовали себя при измерении поперечных профилей электронных пучков на ускорителях, где сегодня активно используются [5–7].

Ускорение заряженных частиц – еще одно перспективное направление, где используются полые

пучки заряженных частиц. Ускорение позитронов до высоких энергий возможно в кильватерных полях, которые образуются при движении полых электронных пучков в плазме. Эта идея была подтверждена результатами компьютерного моделирования процесса образования кильватерных полей и динамики полых электронных пучков [8–10].

Исследования динамики полых пучков и характеристик излучения, которое они возбуждают, также важны в активно развивающейся в настоящее время области – физике частиц с ненулевым орбитальным угловым моментом (закрученных электронов) [11, 12]. Действительно, закрученные одиночные электроны или электронные пучки описываются функциями распределения, которые в классическом подходе аналогичны функциям распределения электронов в полом пучке.

Несмотря на растущую популярность полых пучков в физике излучения, в большинстве работ используется только одноэлектронный подход. Кратко, отличие многоэлектронного подхода от одноэлектронного состоит в учете форм-фактора пучка. Это функция, зависящая от формы пучка, плотности, размеров и функции распределения электронов внутри пучка $f(\mathbf{r})$. В работах [13, 14] было показано, что форм-фактор имеет разный вид для разных типов излучения. В данной работе мы рассчитываем форм-факторы полого пучка для переходного излучения, см. рис. 1.

2. Форм-фактор пучка. Форм-фактор давно известен в синхротронном излучении и некоторых других видах излучения, но в основном для гауссовского или равномерного распределения электронов внутри пучка [15–17]. Отметим, что известные

¹⁾e-mail: tishchenko@mephi.ru

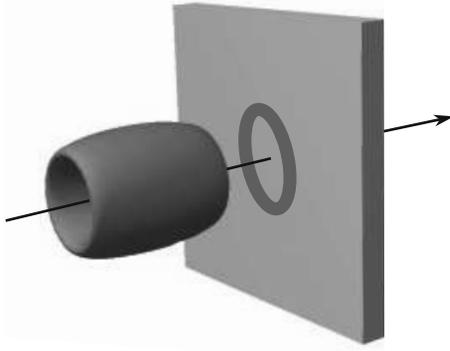


Рис. 1. (Цветной онлайн) Полный электронный пучок (розовый) пересекает мишень (зеленая), генерируя переходное излучение

форм-факторы часто используются некорректно, а иногда и понятие форм-фактора неприменимо, подробнее см. [14, 18].

Для большинства типов излучения интенсивность можно записать как:

$$I_N = I_1 F, \quad (1)$$

где I_1 – интенсивность излучения от одного электрона, F – форм-фактор пучка, который при большом числе электронов в сгустке $N \gg 1$ описывается формулой

$$F = N F_{\text{inc}} + N^2 F_{\text{coh}}. \quad (2)$$

Под интенсивностью можно понимать, например, распределение излученной энергии по углам и частотам [13] или мощность излучения [19]. Первое слагаемое описывает некогерентное излучение, а второе – когерентное излучение. Здесь F_{coh} – когерентный форм-фактор, F_{inc} – некогерентный форм-фактор. Конкретный вид функций F_{coh} и F_{inc} зависит от типа излучения.

Рассмотрим поляризационное излучение, которое возбуждается при взаимодействии заряженной частицы с аморфной безграничной средой. Среда может считаться таковой, когда расстояние от ее границы до электрона в направлении, перпендикулярном его траектории, много больше, чем эффективный радиус убывания собственного поля движущегося электрона $r_{\text{eff}} \approx \gamma\beta\lambda/2\pi$, где λ – длина волны излучения, $\beta = v/c$, v – скорость электрона, c – скорость света в вакууме, γ – Лоренц-фактор электрона. Другими словами, будем считать среду безграничной, когда электрон “не чувствует” края среды, см. рис. 2. К такому типу относятся переходное излучение, излучение Вавилова–Черенкова, рентгеновское параметрическое излучение. Источником такого из-

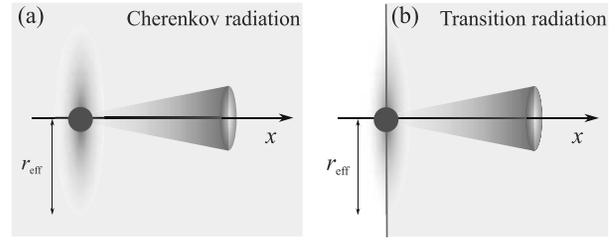


Рис. 2. (Цветной онлайн) Электрон (красный) возбуждает: (a) – излучение Вавилова–Черенкова, двигаясь в среде (серая); (b) – переходное излучение, пересекая границу раздела двух сред (вертикальная линия); r_{eff} – эффективный радиус убывания собственного поля электрона (голубое)

лучения является вещество мишени, которая динамически поляризуется под действием собственного поля движущегося релятивистского электрона. При этом скорость электрона можно считать постоянной, когда кинетическая энергия электрона много больше, чем энергия, затрачиваемая на излучение.

Для такого типа излучения некогерентный форм-фактор равен единице: $F_{\text{inc}} = 1$, см., например, [20]. Это объясняется тем, что все электроны вносят одинаковый вклад в поляризацию в вещества, т.е. положение электрона в поперечном направлении не влияет на характеристики излучения [14]. Когерентный форм-фактор в переходном излучении рассчитывается по формуле [13, 14]:

$$F_{\text{coh}} = \left| \int d\mathbf{r} f(\mathbf{r}) e^{-i\frac{\omega}{v}x} e^{-ik_y y} e^{-ik_z z} \right|^2, \quad (3)$$

где $\omega = 2\pi c/\lambda$ – частота излучения, $f(\mathbf{r})$ – нормированная на единицу функция распределения электронов в пучке относительно его центра, \mathbf{r} – радиус-вектор электрона, $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$ – волновой вектор излучения. При получении формулы (3) предполагалось, что все электроны движутся с постоянной скоростью \mathbf{v} вдоль оси OX , т.е. не учитывалась угловая расходимость пучка и разброс по энергиям. Формулу (3) можно получить, рассчитав поле излучения для всех электронов, вычислив интенсивность излучения, и затем усреднив ее по положениям всех электронов.

3. Полный пучок. Рассмотрим пучок, имеющий гауссово распределение электронов в продольном, т.е. параллельном скорости, направлении, а в поперечном направлении пусть пучок является полным. Будем считать, что продольная и поперечная компоненты радиус-вектора электрона независимы. Тогда, пренебрегая корреляциями в сгустке и считая, что положения электронов не зависят от положения

их соседей, можно представить функцию распределения $f(\mathbf{r})$ в виде:

$$f(\mathbf{r}) = f_{\text{long}}(x)f_{\text{tr}}(y, z), \quad (4)$$

где $f_{\text{long}}(x)$ и $f_{\text{tr}}(y, z)$ – продольная и поперечная функции распределения. Продольный профиль пучка определяет явный вид отдельного множителя в форм-факторе и может быть произвольным.

Для рассматриваемого пучка функции распределения, записанные в цилиндрических координатах, имеют вид:

$$f_{\text{long}}(x) = (\sigma_x \sqrt{\pi})^{-1} \exp[-x^2/\sigma_x^2], \quad (5)$$

$$f_{\text{tr}}(R, \varphi) = A \exp[-(R - r_0)^2/\sigma_{\text{tr}}^2], \quad (6)$$

где для краткости мы ввели безразмерный параметр $\mu = r_0/\sigma_{\text{tr}}$ и нормировочный коэффициент

$$A = (\pi\sigma_{\text{tr}}^2)^{-1} (\sqrt{\pi}\mu[1 + \text{erf}(\mu)] + e^{-\mu^2})^{-1}. \quad (7)$$

Здесь $y = R \cos \varphi$, $z = R \sin \varphi$, σ_x – характерный продольный размер пучка, r_0 – радиус полого пучка, σ_{tr} характеризует толщину кольца пучка, $\text{erf}(\mu)$ – функция ошибок:

$$\text{erf}(\mu) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\mu} dt \exp(-t^2). \quad (8)$$

В данной работе мы не учитываем вращение электронов внутри пучка и не учитываем наличие углового орбитального момента у электронов, что становится важным, например, при рассмотрении квантовых пакетов с угловым моментом. Учет этих эффектов поведет к изменениям не только в описании структуры сгустка, но и требует пересчета интенсивности переходного излучения от одного электрона (см., например, [11]). На рисунке 3 приведены примеры поперечной функции распределения.

Подставляя функции распределения (5)–(6) в формулу (3), получим выражение для когерентного форм-фактора полого пучка в виде:

$$F_{\text{coh}} = F_{\text{long}}F_{\text{tr}}, \quad (9)$$

где F_{long} – продольный когерентный форм-фактор:

$$F_{\text{long}} = \exp(-\omega^2\sigma_x^2/(2v^2)), \quad (10)$$

а F_{tr} – поперечный когерентный форм-фактор:

$$F_{\text{tr}} = 4\pi^2 A^2 |L|^2, \quad (11)$$

и введено обозначение:

$$L = \int_0^{+\infty} dR Re^{-\frac{(R-r_0)^2}{\sigma_{\text{tr}}^2}} J_0(Rk_{\text{tr}}), \quad (12)$$

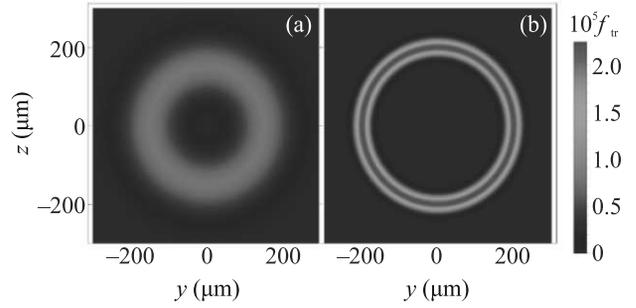


Рис. 3. (Цветной онлайн) Поперечный профиль полого пучка (a) – для $r_0 = 150$ мкм, $\sigma_{\text{tr}} = 75$ мкм ($\mu = 2$); (b) – для $r_0 = 200$ мкм, $\sigma_{\text{tr}} = 20$ мкм ($\mu = 0$)

J_0 – функция Бесселя нулевого порядка, $k_{\text{tr}} = \sqrt{k_y^2 + k_z^2}$. Используя известное разложение [21]

$$J_0(Rk_{\text{tr}}) = \sum_{s=0}^{+\infty} (-1)^s \frac{(Rk_{\text{tr}})^{2s}}{2^{2s}(s!)^2}, \quad (13)$$

вместо формулы (12) получим:

$$L = e^{-\mu^2} \sum_{s=0}^{+\infty} (-1)^s \frac{k_{\text{tr}}^{2s} \sigma_{\text{tr}}^{2(s+1)}}{2^{2s+1}(s!)^2} G_s, \quad (14)$$

где

$$G_s = \Gamma(1+s)\Phi(s+1, 1/2; \mu^2) + 2\mu\Gamma(s+3/2)\Phi(s+3/2, 3/2; \mu^2), \quad (15)$$

$\Phi \equiv {}_1F_1$ – вырожденная гипергеометрическая функция, Γ – гамма-функция. Окончательно выражение для поперечного когерентного форм-фактора полого электронного пучка:

$$F_{\text{tr}} = \pi^2 \sigma_{\text{tr}}^4 A^2 e^{-2\mu^2} \left| \sum_{s=0}^{+\infty} (-1)^s \frac{\sigma_{\text{tr}}^{2s} k_{\text{tr}}^{2s}}{2^{2s}(s!)^2} G_s \right|^2. \quad (16)$$

Из выражения (16) видно, что форм-фактор зависит от угла наблюдения излучения. Другими словами, форма сгустка влияет на характеристики излучения по-разному в зависимости от направления распространения излучения.

Для пучка с обычным гауссовым поперечным распределением электронов, т.е. для $r_0 = 0$ или $\mu = 0$, из формулы (16) получаем:

$$F_{\text{tr}} = \exp(-\sigma_{\text{tr}}^2 k_{\text{tr}}^2/2) \quad (r_0 = 0, \mu = 0). \quad (17)$$

Это выражение совпадает с классическим, см., например, монографию Г. М. Гарибяна [20].

Выражение (14) можно преобразовать. Пользуясь известными рекуррентными соотношениями для

вырожденных гипергеометрических функций, получим:

$$L = \frac{\sigma_{tr}^2}{2} e^{-\mu^2} \sqrt{\pi} \sum_{s=0}^{+\infty} \left(\frac{\mu^{2s} \Phi[s+1, 1, -(\sigma_{tr} k_{tr}/2)^2]}{\Gamma(s+1/2)} + \mu^{2s+1} \Phi[s+3/2, 1, -(\sigma_{tr} k_{tr}/2)^2] / \Gamma(s+1) \right). \quad (18)$$

Преобразуем вырожденные гипергеометрические функции. Разложим в конечный ряд первую из них:

$$\Phi \left[s+1, 1, -\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{4} \right] = e^{-\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{4}} \sum_{m=0}^s \frac{(-1)^m s! (\sigma_{tr} k_{tr})^{2m}}{2^{2m} (m!)^2 (s-m)!}. \quad (19)$$

Для того чтобы преобразовать второе слагаемое, воспользуемся формулой, полученной в работе [22]. После несложных преобразований получим:

$$\Phi \left[s+3/2, 1, -\left(\frac{\sigma_{tr} k_{tr}}{2}\right)^2 \right] = e^{-\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{8}} \left(I_0 \left[\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{8} \right] + 2 \sum_{m=1}^{+\infty} {}_3F_2 \left(-m, m, s + \frac{3}{2}; 1, \frac{1}{2}; 1 \right) I_m \left[\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{8} \right] \right), \quad (20)$$

где ${}_3F_2$ – обобщенная гипергеометрическая функция, которая в данном случае не зависит от параметров задачи и представляет собой просто численный коэффициент; $I_{0,m}$ – модифицированные функции Бесселя. Заметим, что I_m с помощью рекуррентных формул сводится к комбинации функций I_0 и I_1 .

Окончательно, поперечный форм-фактор (16) примет вид:

$$F_{tr} = \pi^3 A^2 \sigma_{tr}^4 e^{-2\mu^2} e^{-\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{4}} \left| \mu e^{\mu^2} I_0 \left[\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{8} \right] + e^{-\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{8}} \sum_{s=0}^{+\infty} \frac{\mu^{2s} s!}{\Gamma(s+1/2)} \sum_{m=0}^s \frac{(-1)^m (\sigma_{tr} k_{tr}/2)^{2m}}{(m!)^2 (s-m)!} + \sum_{s=0}^{+\infty} \frac{2\mu^{2s+1}}{s!} \times \sum_{m=1}^{+\infty} {}_3F_2 \left(-m, m, \frac{3}{2} + s; 1, \frac{1}{2}; 1 \right) I_m \left[\frac{\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2}{8} \right] \right|^2. \quad (21)$$

Формула (21) выглядит несколько сложнее формулы (16), однако в ней выделен физически содержательный множитель $\exp[-\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2/4]$, полезный для качественного понимания поведения решения (например, см. ниже асимптотику при больших частотах на рис. 4а, 5а).

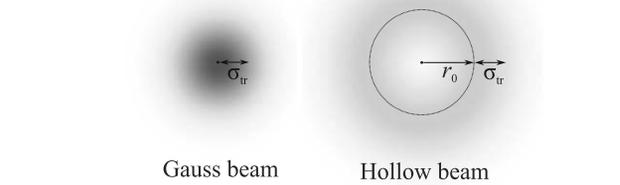
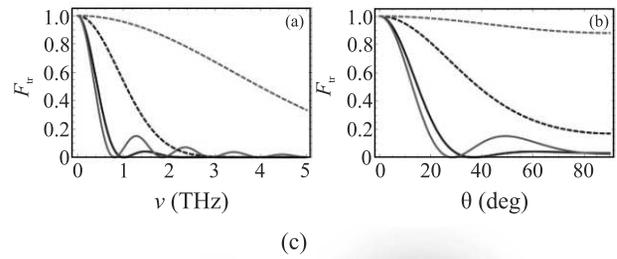


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость поперечного форм-фактора: (а) – от частоты излучения при $\theta = 45$ градусов и (б) – от угла наблюдения излучения при $\nu = 1.2$ ТГц для полого пучка (сплошные кривые) и гауссова пучка (пунктирные кривые). Для черной сплошной кривой – $\mu = 2$, $\sigma_{tr} = 75$ мкм; для красной сплошной кривой – $\mu = 10$, $\sigma_{tr} = 20$ мкм; для черной пунктирной кривой – $\mu = 0$, $\sigma_{tr} = 75$ мкм; для красной пунктирной кривой – $\mu = 0$, $\sigma_{tr} = 20$ мкм. Для всех кривых – $\gamma = 16$. (с) – Визуализация профилей гауссова и полого пучка с одинаковой дисперсией σ_{tr}

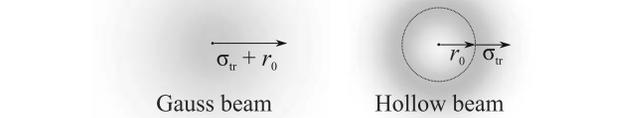
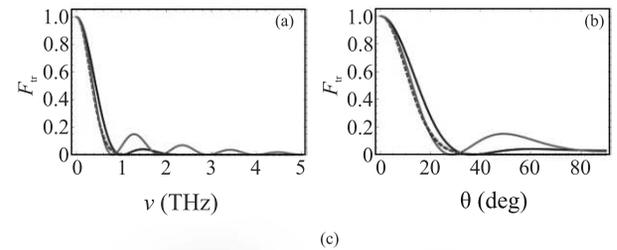


Рис. 5. (Цветной онлайн) То же, что на рис. 4, но для одинакового внешнего радиуса пучков

Введем углы наблюдения излучения θ и ϕ следующим образом:

$$n_x = \cos \theta, \quad n_y = \sin \theta \sin \phi, \quad n_z = \sin \theta \cos \phi. \quad (22)$$

Заметим, что полученный поперечный форм-фактор сгустка зависит от полярного угла наблюдения излучения θ , но не зависит от азимутального угла ϕ . Это связано с симметрией сгустка в поперечном направлении. При нарушении азимутальной

симметрии, например, при учете закрученности траектории электронов внутри пучка, в форм-факторе может появиться зависимость от угла ϕ . Этот случай требует дополнительных расчетов, которые выходят за рамки данной статьи.

Для построения графиков зависимостей форм-фактора (16) от различных переменных необходимо оборвать бесконечные ряды, например, исходя из условия, что при добавлении следующих слагаемых графики перестают меняться. При этом следует учитывать, что достаточное число слагаемых может зависеть от размеров сгустка.

На рисунке 4 приведены графики зависимостей поперечного форм-фактора (16) от частоты $\nu = \omega/(2\pi)$ и полярного угла наблюдения θ (сплошные кривые). Графики приведены для параметров пучков, профили которых изображены на рис. 3. Из графиков видно, что, как и ожидалось, максимальное значение форм-фактора – единица, которая достигается при наименьших углах наблюдения и наименьших частотах излучения. Частотный и угловой диапазоны вблизи нуля, в которых форм-фактор близок к единице, соответствуют полной поперечной (пространственной) когерентности излучения. Эти диапазоны интересны с точки зрения создания источника излучения с высокой интенсивностью, но интерес с точки зрения диагностики электронных сгустков эти диапазоны могут представлять только для измерения продольных размеров. Действительно, в этой области характеристики излучения не зависят от поперечных размеров пучков. Это, с одной стороны, не позволяет измерить поперечный размер пучка, а с другой, убирает лишний фактор (поперечный размер), который заметно усложняет решение обратной задачи о восстановлении продольного размера/профиля пучка по измеренному излучению.

Сравним спектральные и угловые характеристики поперечного форм-фактора для полых пучков и пучков с гауссовым распределением электронов (для краткости ниже будем называть такие пучки гауссовыми).

Сравнение возможно в двух вариантах. Первый: сравнивать полый и гауссов пучок с одинаковыми дисперсиями σ_{tr} , см. рис. 4с. В таком случае поперечное распределение электронов описывается одинаковой формулой (6), в которой для гауссова пучка $r_0 = 0$, для полого пучка $r_0 \neq 0$. Тогда форм-фактор гауссова пучка описывается формулой (17), а форм-фактор полого пучка описывается формулой (16). Результаты сравнения форм-факторов показаны на рис. 4, где пунктирные кривые соответствуют гауссовым пучкам.

Из рисунка 4 видно, что, в отличие от гауссова пучка, форм-фактор полого пучка осциллирует с ростом частоты и полярного угла. Это приводит к выделению набора конкретных частот в полной интенсивности излучения. Такая картина обычно наблюдается в продольном форм-факторе (при временной, т.е. продольной, когерентности) для периодически модулированных пучков [23–25]. Это дает дополнительную возможность монохроматизации спектра за счет модуляции полого пучка, когда совпадают частоты, при которых наблюдаются максимумы продольного и поперечного форм-факторов.

Также, из рис. 4 видно, что область полной пространственной когерентности излучения от полого пучка существенно меньше, чем для гауссова пучка. Это означает, что в тех условиях, когда для гауссова пучка при обработке экспериментальных данных можно пренебречь влиянием поперечных размеров на распределение полной интенсивности по углам и частотам, для полых пучков этого делать нельзя.

Возможен второй вариант сравнения спектральных и угловых характеристик поперечного форм-фактора для полых и гауссовых электронных пучков. В этом случае внешний радиус пучков одинаков, а разница заключается в степени заселенности электронами внутренней части пучка, см. рис. 5с. Математически это означает, что сумма радиуса r_0 и дисперсии σ_{tr}^g полого пучка равна дисперсии для гауссова пучка σ_{tr}^g : $\sigma_{tr} + r_0 = \sigma_{tr}^g$. Тогда поперечный форм-фактор полого пучка по-прежнему описывается формулой (16), а для гауссова пучка в аргументе экспоненты в формуле (17) появится дополнительный множитель:

$$F_{tr} \rightarrow \exp(-\sigma_{tr}^2 k_{tr}^2 (\mu + 1)^2 / 2). \quad (23)$$

Сравнение приведено на рис. 5. Сплошные кривые для полых пучков точно такие, как на рис. 4. Из графиков рис. 5 видно, что в таком случае области полной пространственной когерентности полого и гауссова пучка становятся практически одинаковыми. Это можно объяснить тем, что одинаковое количество электронов распределено внутри одной и той же области, определяемой внешним радиусом сгустка.

Заселенность внутренней части сгустка/пучка и в этом случае сильно сказывается на поведении форм-фактора при больших частотах и углах наблюдения: для полого пучка есть осцилляции, для гауссова – их нет.

4. Заключение. Выше мы показали, что для полых пучков важную роль играет поперечный форм-фактор, который определяется поперечным размером пучка. Это может быть важно для генерации

рентгеновских фотонов в рентгеновских лазерах на свободных электронах и синхротронах, включая генерацию излучения электронными пучками, несущими угловой орбитальный момент. Результаты особенно важны ввиду того, что для обычных (не полых) электронных пучков значение поперечного форм-фактора часто мало отличается от единицы, так что влиянием поперечных размеров пучка пренебрегают.

Исследование выполнено при поддержке Российского научного фонда, грант # 21-72-00113 (ДС, части 3, 4), и, частично, при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ, проект # FZWG-2020-0032 (2019-1569) в конкурсной части госзадания по созданию и развитию лабораторий (АТ, части 1, 2).

1. G. Stancari, A. Valishev, G. Annala, G. Kuznetsov, V. Shiltsev, D. A. Still, and L. G. Vorobiev, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 084802 (2011).
2. S. Redaelli, R. B. Appleby, R. Bruce, O. Brüning, A. Kolehmainen, G. Ferlin, A. Foussat, M. Giovannozzi, P. Hermes, D. Mirarchi, D. Perini, A. Rossi, and G. Stancari, *J. Instrum.* **16**, P03042 (2021).
3. X. Gu, W. Fischer, Z. Altinbas et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Accel. Beams* **23**, 031001 (2020).
4. A. Salehilashkajani, H. D. Zhang, M. Ady et al. (Collaboration), *Appl. Phys. Lett.* **120**, 174101 (2022).
5. C. Behrens, C. Gerth, G. Kube, B. Schmidt, S. Wesch, and M. Yan, *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **15**, 062801 (2012).
6. L. G. Sukhikh, G. Kube, S. Bajt, W. Lauth, Yu. A. Popov, and A. P. Potylitsyn, *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **17**, 112805 (2014).
7. A. Potylitsyn, L. Sukhikh, T. Gusvitskii, G. Kube, and A. Novokshonov, *Phys. Rev. Accel. Beams* **23**, 042804 (2020).
8. N. Jain, *Phys. Plasmas* **26**, 023107 (2019).
9. J. Vieira and J. T. Mendonca, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 215001 (2014).
10. N. Jain, T. M. Jr. Antonsen, and J. P. Palastro, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 195001 (2015).
11. I. P. Ivanov and D. V. Karlovets, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 264801 (2013).
12. S. S. Baturin, D. V. Grosman, G. K. Sizykh, and D. V. Karlovets, *Phys. Rev. A* **106**, 042211 (2022).
13. D. Yu. Sergeeva, A. A. Tishchenko, and M. N. Strikhanov, *Nucl. Instrum. Methods B* **309**, 189 (2013).
14. A. A. Tishchenko and D. Yu. Sergeeva, *JETP Lett.* **110**, 638 (2019).
15. Y. Shibata, S. Hasebe, K. Ishi, S. Ono, M. Ikezawa, T. Nakazato, M. Oyamada, S. Urasawa, T. Takahashi, T. Matsuyama, K. Kobayashi, and Y. Fujita, *Phys. Rev. E* **57**, 1061 (1998).
16. Y. Shibata, T. Takahashi, T. Kanai, K. Ishi, and M. Ikezawa, *Phys. Rev. E* **50**, 1479 (1994).
17. G. P. Williams, C. J. Hirschmugl, E. M. Kneeder, P. Z. Takacs, M. Shleifer, Y. J. Chabal, and F. M. Hoffmann, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 261 (1989).
18. D. Yu. Sergeeva and A. A. Tishchenko, *JETP Lett.* **115**, 713 (2022).
19. J. S. Nodvick and D. S. Saxon, *Phys. Rev.* **96**, 180 (1954).
20. Г. М. Гарибян, Я. Ши, *Рентгеновское переходное излучение*, Изд-во АН АрмССР, Ереван (1983).
21. И. С. Градштейн, И. М. Рыжик, *Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений*, 4-е изд., Государственное издательство физико-математической литературы, М. (1963.)
22. Y. Luke, *Math. Comput.* **13**, 261 (1959).
23. D. Y. Sergeeva, A. P. Potylitsyn, A. A. Tishchenko, and M. N. Strikhanov, *Opt. Express* **25**, 26310 (2017).
24. G. A. Naumenko, A. P. Potylitsyn, D. Yu. Sergeeva, A. A. Tishchenko, M. N. Strikhanov, and V. V. Bleko, *JETP Lett.* **105**, 553 (2017).
25. G. A. Naumenko, A. P. Potylitsyn, P. V. Karataev, M. A. Shipulya, and V. V. Bleko, *JETP Lett.* **106**, 127 (2017).

Высокодобротные металлинзы инфракрасного диапазона на основе германиевых димеров

В. М. Пустынникова, А. И. Мусорин, А. А. Федянин¹⁾

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

Поступила в редакцию 22 февраля 2023 г.

После переработки 23 февраля 2023 г.

Принята к публикации 2 марта 2023 г.

Современные методы нанопотоники позволяют создавать миниатюрные устройства, изменяющие направление распространения света, модулирующие фазовый фронт, контролирующее выходящее состояние поляризации. Одно из многообещающих направлений исследований – разработка элементов плоской оптики, основу которых составляют планарные аналоги метаматериалов – диэлектрические метаповерхности, представляющие собой двумерный массив субволновых наночастиц с высоким показателем преломления и малым коэффициентом поглощения. Однако резонансы таких нанорассеивателей, как правило, низкой добротности. Нарушение симметрии частиц может приводить к возбуждению квазисвязанных состояний континуума высокой добротности. В настоящей работе проведено численное моделирование метаповерхностей инфракрасного диапазона, поддерживающих такие резонансы и сформированных димерами германиевых нанопараллелепипедов. Показана возможность фокусировки излучения в точку и линию – сферические и цилиндрические металлинзы толщиной 300 нм.

DOI: 10.31857/S1234567823070030, EDN: jhtaio

Концепция плоской оптики, совместимой с технологиями микроэлектронных схем и интегральных оптоэлектронных компонентов, делает идею фотонной лаборатории на чипе все более реалистичной. Ультратонкие аналоги оптических компонентов, получившие название метаповерхностей [1], являются основой плоской оптики (рис. 1). Под метаповерхностью

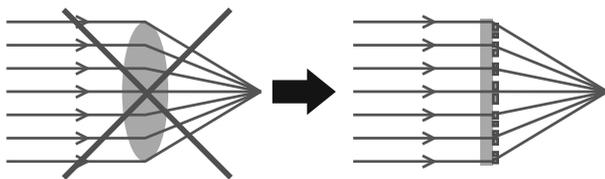


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематичное изображение миниатюрной плоской линзы на основе метаповерхности

стью понимается двумерный упорядоченный массив субволновых нанорассеивателей, называемых метаатомами, каждый из которых можно рассматривать как источник вторичных волн. В этом случае, согласно принципу Гюйгенса–Френеля, результирующий отклик всей структуры является интерференцией данных волн. Такие массивы позволяют управлять поляризацией [2], амплитудой [3], фазой проходящего/отраженного света [4], а также направле-

нием его распространения [5, 6] благодаря локализации световой энергии в объеме или вблизи наночастиц с оптическими резонансами [7]. Метаповерхности способны формировать сложные волновые фронты, что легло в основу элементов плоской оптики: волновых пластин [8], спектральных фильтров [9], поляризаторов [10], линз [11]. Последние разработки в области плоских линз показывают, что пространственно упорядоченные резонансные рассеиватели с нужной задержкой фазы света позволяют скомпенсировать хроматические [12] (в трехслойных метаповерхностях из плазмонных дисков) и сферические аберрации [13] (металлинза из кремниевых столбиков), добиться высокой числовой апертуры [14] (димеры кремниевых цилиндров) и сделать такие устройства многофункциональными [15] (параллелепипеды из материала с фазовым переходом). Правильное расположение метаатомов позволяет создать сверхтонкий аксикон, формирующий недифрагирующие пучки Бесселя в металлинзе, образованной золотыми V-образными антеннами [16]. Дальнейшее усовершенствование метаповерхностей в целом, и металлинз в частности, расширяется использованием материалов, свойства которых реагируют на внешнее воздействие: жидких кристаллов [17–19], магнетиков [20, 21], полупроводников [22–24]. Так можно делать активные устройства, способные модулировать падающее излучение.

¹⁾e-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru

Одним из недостатков метаустройств является низкая добротность резонансов метаатомов ($Q \sim 10$). Для повышения эффективности новых устройств нанопотоники было предложено формировать метаповерхность из наночастиц, поддерживающих резонансы связанного состояния континуума [25]. Такие моды образуются при спектральном перекрытии двух резонансов (обычно “темного” и “светлого”), что позволяет контролировать количество излучательных потерь, сужая резонансные особенности и повышая добротность до значений $Q \sim 10^2 \div 10^3$. Под “темными” понимаются резонансы, которые не могут быть возбуждены или задетектированы в дальней дифракционной зоне, т.е. не обладающие излучательными потерями. Связанные состояния в континууме – конфигурации электромагнитных полей, существующие в непрерывном спектре, но остающиеся при этом пространственно локализованными. Подобные примеры изучены в широком диапазоне материальных систем: в пьезоэлектрических материалах, диэлектрических фотонных кристаллах, оптических волноводах и волокнах, квантовых точках, графене и топологических изоляторах [26]. Резонансы связанного состояния континуума проявляются в отклике как одиночных частиц [27], так и метаповерхностей [28, 29]. Существенную роль при реализации высокодобротных резонансов в массивах частиц играет наличие асимметричности [30]. Она позволяет делать резонансы “темных” мод “светлыми”. Примерами асимметричности можно назвать отсутствие части параллелепипеда [31], смещение круглого отверстия от центра в нанодиске магнитного диэлектрика для усиления магнитооптических эффектов [32]. Метаатом может представлять собой пару эллипсоидов, наклоненных друг к другу относительно вертикали, для усиления нелинейно-оптических эффектов [33] или двумя параллелепипедами [34, 35]. Хотя при изготовлении нанокубы не всегда удается сделать с четкими краями, их достоинством является большее число независимых параметров, управляющих оптическим откликом и расширяющих возможность контроля резонансного рассеяния и диаграммы направленности через изменение амплитуды и фазы падающих волн.

В настоящей работе предложено использовать подходы высокодобротных метаповерхностей для реализации сверхтонких элементов инфракрасной плоской оптики – цилиндрических и сферических металинз. Метаповерхности с резонансами связанного состояния континуума для фокусировки излучения исследованы слабо [35, 36]. Поэтому в данной работе в качестве метаатома рассматрива-

ется асимметричный димер из параллелепипедов. Основные работы по плоской оптике рассматривают устройства для видимого диапазона и соответствующие материалы (кремний, диоксид титана и др.). В данной работе моделируется метаповерхность для инфракрасного диапазона, поэтому в качестве материала взят германий, как полупроводник с большим показателем преломления в этой области, с рабочей длиной волны – 1.8 мкм, так как здесь коэффициент поглощения мал.

Фокусирующие свойства метаповерхности определяются пространственным профилем фазы прошедшей волны, зависящим от фокусного расстояния f и длины волны света λ . Для излучения, распространяющегося вдоль оси Z , значение фазовой задержки φ зависит от положения метаатома (x, y) :

$$\varphi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} \left(\sqrt{f^2 + x^2 + y^2} - f \right). \quad (1)$$

Эта непрерывная функция показана черной кривой на рис. 2а при $y = 0$ и бирюзовой поверхностью на рис. 2б. Разность фаз между центром и краями металинзы должна составлять $2\pi m$, $m = 1, 2, \dots$, чтобы в фокальной плоскости волны усиливали друг друга. Чем больше порядок m , тем эффективнее фокусировка. Чтобы реализовать профиль фазы (1) на практике, необходимо провести дискретизацию функции $\varphi(x, y)$ (показано цветом на рис. 2а, б). Интервал $0 \dots 2\pi$ разбивается эквидистантно с шагом $\pi/4$, и решается задача о поиске восьми конфигураций метаатомов, реализующих нужные фазовые задержки. Для диапазона значений $\varphi_1 = (0 \pm \pi/8)$ полагают фазу равной нулю, область $\varphi_2 = (\pi/4 \pm \pi/8)$ соответствует задержке $\pi/4$ и так далее. Величины, превышающие 2π , приводятся к интервалу $0 \dots 2\pi$ вычитанием $2\pi m$. Подставляя предельные значения угла φ_k в выражение (1), можно найти координаты границ и ширину фазовой зоны, образованной метаатомами одной конфигурации. Далее, в зависимости от периода, который используется при построении металинзы, можно рассчитать число ячеек, образующих эту область. Таким образом выполняется дискретизация фазы. Пример такого разбиения представлен на рис. 2а, б для длины волны $\lambda = 1.8$ мкм, фокусного расстояния $f = 500$ мкм, периода $P = 0.88$ мкм и $m = 3$. В таблице 1 приведены данные о числе ячеек, формирующих зону с определенной фазой.

Численное моделирование выполнялось методом конечных разностей во временной области. Свет падал вдоль оси Z , поляризация по оси Y (см. рис. 2с). Подложкой служил диэлектрик с показателем пре-

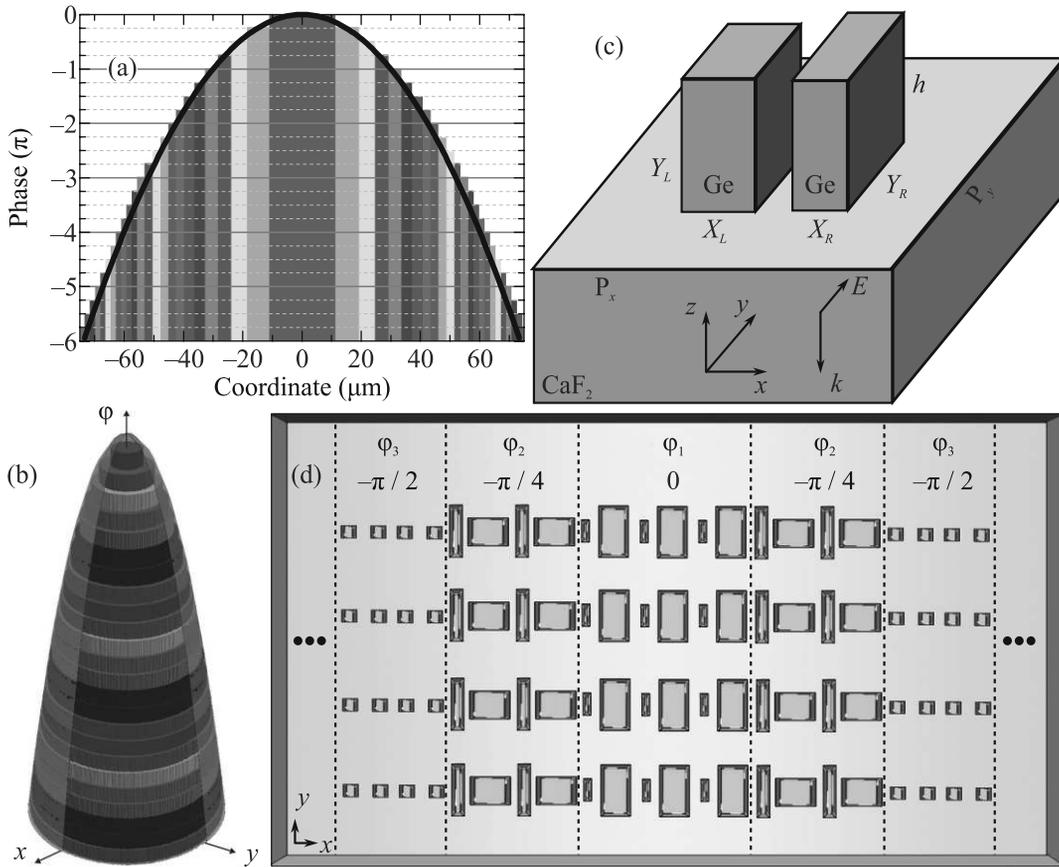


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а), (b) – Зависимость фазовой задержки световой волны, прошедшей металлинзу, от положения метаатома. Черная кривая на рис. (а) и бирюзовый параболоид на рис. (b) получены из выражения (1); цветные столбцы – различные значения фаз с шагом $\pi/4$. (с) – Исследуемая геометрия метаатома – элементарной ячейки металлинзы. (d) – Схематичное изображение цилиндрической металлинзы

Таблица 1. Число периодов, формирующих заданную фазовую зону плоской металлинзы

Фазы	0	$-\frac{\pi}{4}$	$-\frac{2\pi}{4}$	$-\frac{3\pi}{4}$	$-\pi$	$-\frac{5\pi}{4}$	$-\frac{6\pi}{4}$	$-\frac{7\pi}{4}$	-2π	$-\frac{9\pi}{4}$	$-\frac{10\pi}{4}$	$-\frac{11\pi}{4}$
Штуки	12	9	6	5	4	4	3	3	3	3	3	3
Фазы	-3π	$-\frac{13\pi}{4}$	$-\frac{14\pi}{4}$	$-\frac{15\pi}{4}$	-4π	$-\frac{17\pi}{4}$	$-\frac{18\pi}{4}$	$-\frac{19\pi}{4}$	-5π	$-\frac{21\pi}{4}$	$-\frac{22\pi}{4}$	$-\frac{23\pi}{4}$
Штуки	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2

ломления $n = 1.4$. Расчет производился в несколько шагов. *Первым* был подбор конфигураций метаатомов, вносящих нужную фазовую задержку и обладающих как можно большим пропусканием, в идеале – единичным. Трехмерная расчетная область содержала идеально согласующиеся слои (*perfectly matched layers*, PML) по оси Z, а по X и Y были установлены периодические граничные условия. Для метаатома-димера асимметричных параллелепипедов параметрами задачи являются две ширины, две длины наночастиц, период и высота. Учитывая типичные технологические процессы изготовле-

ния полупроводниковых наночастиц, целесообразно рассматривать высоту всей металлинзы одинаковой, поэтому вариант, когда одни частицы выше, а другие ниже, не рассматривается. Высота частиц h составила 300 нм, а оптимальный период квадратной решетки $P_x = P_y = 880$ нм. На рис. 3 представлен один из примеров характеристики метаатомов с параметрами $(x_l, y_l); (x_r, y_r) = (450, 445)$ нм; $(200, 700)$ нм: (а) – спектр пропускания; (b) – спектр фазы прошедшей волны; (с) – распределение модуля локального электрического поля, построенное в плоскости XY для середины высоты наночастиц. Под фазой по тексту

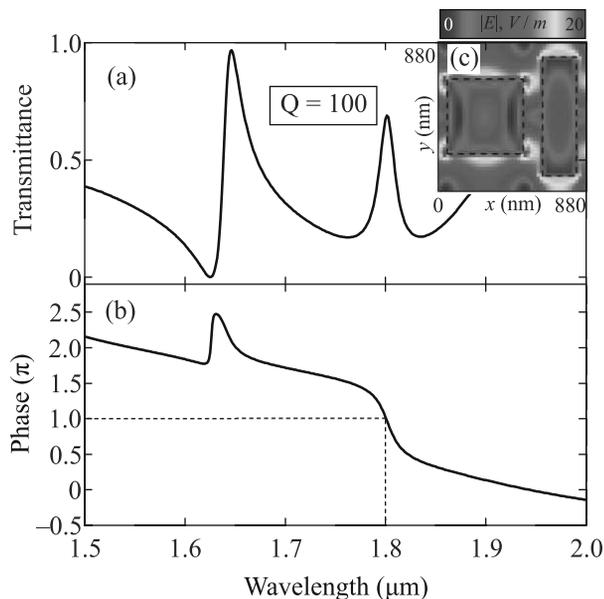


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Спектр пропускания метаатома (x_l, y_l) ; $(x_r, y_r) = (450, 445)$; $(200, 700)$; $T(1.8 \text{ мкм}) = 0.7$; (б) – спектр фазы прошедшей волны, $\varphi(1.8 \text{ мкм}) = \pi$; (в) – распределение модуля локального электрического поля для длины волны $\lambda = 1.8 \text{ мкм}$

понимается разница фаз волн – прошедшей метаатома и падающей на них. На длине волны 1.8 мкм внутри широкого провала в спектре пропускания (рис. 3а) существует разрешенное состояние, добротность которого составляет 100, а коэффициент пропускания увеличивается до значения 0.7. Распределение поля (рис. 3с) для этого спектрального положения показывает, что область концентрации максимальной энергии приходится вне частиц димера, что дает относительно высокое пропускание и коэффициент усиления поля достигает 20 раз. Значение фазы оказывается равным π (рис. 3б). Вблизи длины волны 1.65 мкм существует еще один резонанс с близким к единице пропусканием и значением фазы $\pi/2$.

Изменение ширин и длин наночастиц позволило подобрать восемь геометрий метаатомов с необходимыми фазовыми задержками. Размеры параллелепипедов и соответствующие фазы представлены на рис. 4. Центр каждого параллелепипеда помещался в середину метаатома по оси Y (440 нм), а по оси X – в четверть (220 нм) и три четверти (660 нм) периода. Таким образом, расстояние между центрами параллелепипедов фиксировано и составляет половину периода, а зазор между частицами внутри ячейки определяется ширинами частиц.

Расположив по пространству метаатомы соответствующих фаз в нужном количестве, получаем сфор-

мированные зоны цилиндрической металлинзы. На рисунке 5 представлена итоговая зависимость фазы от координаты вдоль металлинзы (черными точками). Кроме того, на графике 5 показана теоретическая зависимость (красной кривой), рассчитанная согласно выражению (1). Результаты находятся в хорошем согласии – дискретизация фазы выполнена корректно.

Вторым шагом стал расчет фокусирующих свойств металлинз. Трехмерная расчетная область содержала идеально согласующиеся слои на всех границах, от которых до исследуемой системы выдержан отступ в три длины волны, чтобы избежать влияния отражений от границ на оптический отклик моделируемой структуры. Результаты расчета в дальней дифракционной зоне представлены на рис. 6. На рисунке 6а, с представлено распределение интенсивности электрического поля по ходу распространения излучения. Вблизи положения фокуса ($f = 500 \text{ мкм}$) присутствует яркое пятно, вызванное сложением волн от разных фазовых зон, т.е. фокусировка. На правых панелях рисунка 6 показано распределение интенсивности электрического поля в фокальной плоскости в случае расположения фазовых зон в виде окружностей для формирования сферической линзы, фокусирующей в точку (рис. 6б), и в виде прямоугольников для создания цилиндрической линзы, фокусирующей в линию (рис. 6д). Полная ширина пиков на полувысоте для обеих линз составляет 9 мкм. Размер линз равен 147.84 мкм, что соответствует крайним фазовым задержкам в 6л.

Таким образом, спроектированы элементы плоской оптики инфракрасного диапазона, фокусирующие излучение в точку и линию – сферические и цилиндрические металлинзы, представляющие собой двумерные массивы несимметричных димеров германиевых наночастиц. Методом конечных разностей во временном пространстве для длины волны 1.8 мкм подобраны параметры восьми высокодобротных метаатомов, вызывающих равномерную фазовую задержку падающей волны от 0 до 2π с шагом $\pi/4$. Для фокусного расстояния 500 мкм размер перетяжки составил 9 мкм для обеих линз. Фокусировка существует только для линейной поляризации света, параллельной длинной стороне параллелепипедов. Для ортогональной – спектральный модовый состав системы другой, резонансы смещаются, фазовые задержки нарушаются, и поэтому фокусировки не происходит. Полученные результаты могут быть использованы при разработке компактных оптических устройств инфракрасного диапазона, например, сканаторов, считывателей QR-кодов или штрих-

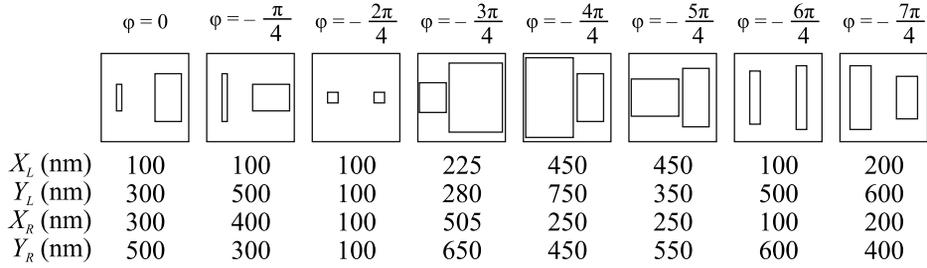


Рис. 4. Фазовые задержки и соответствующие им схемы метаатомов. Размеры параллелепипедов, формирующих метаатомы

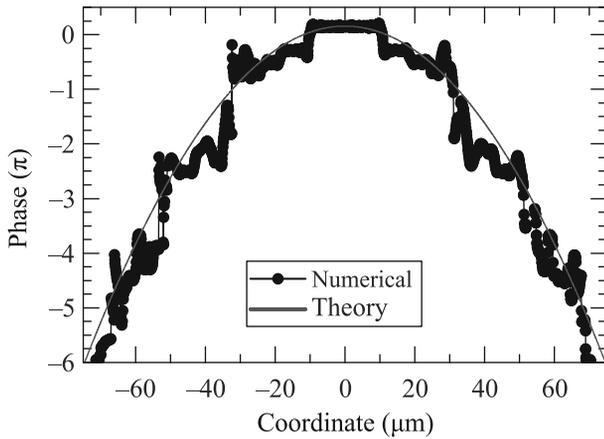


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость фазы световой волны, прошедшей через металлизацию, от положения метаатома, полученная по формуле (1) (красная кривая) и в результате численного моделирования (черные точки)

кодов. Они могут представлять интерес для разработки компактных, миниатюрных систем идентификации персоны по отпечатку пальца [37].

Авторы выражают благодарность Б. С. Лукьянчуку за дискуссию и обсуждение результатов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (# 21-52-12036, моделирование фокусировки).

Исследование проведено в рамках Программы развития МГУ, междисциплинарной научно-образовательной школы “Фотонные и квантовые технологии. Цифровая медицина”.

Данная работа была поддержана грантом Фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС” (# 22-1-3-5-1, расчет амплитудно-частотных и фазо-частотных характеристик метаатомов).

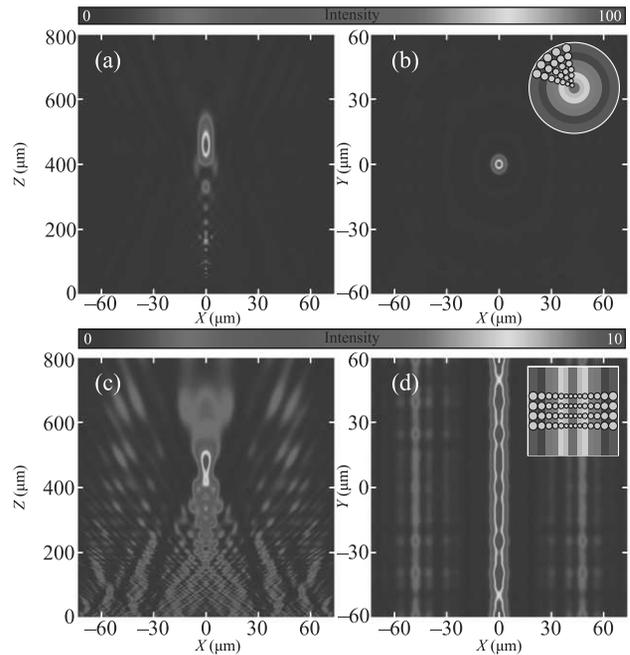


Рис. 6. (Цветной онлайн) Распределение интенсивности электрического поля от координат: (a), (c) – в плоскости XZ для $y = 0$; (b), (d) – в плоскости XY для положения фокуса $z = f = 500$ мкм. Графики получены для: (a), (b) – сферической и (c), (d) – цилиндрической линз. На вставках рисунков (b) и (d) схематично представлено расположение фазовых зон, сформированных метаатомами различных геометрий

1. N. Yu and F. Capasso, *Nat. Mater.* **13**, 139 (2014).
2. N. Yu, F. Aieta, P. Genevet, M. A. Kats, Z. Gaburro, and F. Capasso, *Nano Lett.* **12**, 6328 (2012).

3. T. Ellenbogen, K. Seo, and K. B. Crozier, *Nano Lett.* **12**, 1026 (2012).
4. A. Arbabi, Y. Horie, M. Bagheri, and A. Faraon, *Nat. Nanotechnol.* **10**, 937 (2015).
5. M. I. Shalaev, J. Sun, A. Tsukernik, A. Pandey, K. Nikolskiy, and N. M. Litchinitser, *Nano Lett.* **15**, 6261 (2015).
6. А. Д. Гартман, А. С. Устинов, А. С. Шорохов, А. А. Федянин, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 509 (2021).
7. A. I. Kuznetsov, A. E. Miroshnichenko, M. L. Brongersma, Y. S. Kivshar, B. Luk'yanchuk, *Science* **354**, aag2472 (2016).

8. Y. Yang, W. Wang, P. Moitra, I. Kravchenko, D. Briggs, and J. Valentine, *Nano Lett.* **14**, 1394 (2014).
9. Z. Zheng, A. Komar, K.Z. Kamali, J. Noble, L. Whichello, A.E. Miroshnichenko, M. Rahmani, D.N. Neshev, and L. Xu, *J. Appl. Phys.* **130**, 053105 (2021).
10. Y. Intaravanne and X. Chen, *Nanophotonics* **9**, 1003 (2020).
11. M. Khorasaninejad and F. Capasso, *Science* **358**, eaam8100 (2017).
12. O. Avayu, E. Almeida, Y. Prior, and T. Ellenbogen, *Nat. Commun.* **8**, 14992 (2017).
13. A. Arbabi, E. Arbabi, S.M. Kamali, Y. Horie, S. Han, and A. Faraon, *Nat. Commun.* **7**, 13682 (2016).
14. R. Paniagua-Dominguez, Y.F. Yu, E. Khaidarov, S. Choi, V. Leong, R.M. Bakker, X. Liang, Y.H. Fu, V. Valuckas, L.A. Krivitsky, and A.I. Kuznetsov, *Nano Lett.* **18**, 2124 (2018).
15. L. Chen, Y. Hao, L. Zhao, R. Wu, Y. Liu, Z. Wei, N. Xu, Z. Li, and H. Liu, *Opt. Express* **29**, 9332 (2021).
16. F. Aieta, P. Genevet, M.A. Kats, N. Yu, R. Blanchard, Z. Gaburro, and F. Capasso, *Nano Lett.* **12**, 4932 (2012).
17. A. Komar, R. Paniagua-Dominguez, A. Miroshnichenko, Y.F. Yu, Y.S. Kivshar, A.I. Kuznetsov, and D. Neshev, *ACS Photonics* **5**, 1742 (2018).
18. M. Bosch, M.R. Shcherbakov, K. Won, H. Lee, Y. Kim, and G. Shvets, *Nano Lett.* **21**, 3849 (2021).
19. J. Wang, K. Li, H. He, W. Cai, J. Liu, Z. Yin, Q. Mu, V.K.S. Hisao, D. Gérard, D. Luo, G. Li, and Y.J. Liu, *Laser Photonics Rev.* **16**, 2100396 (2022).
20. A.I. Musorin, M.G. Barsukova, A.S. Shorokhov, B.S. Luk'yanchuk, and A.A. Fedyanin, *J. Magn. Magn. Mater.* **459**, 165 (2018).
21. A.I. Musorin, A.V. Chetvertukhin, T.V. Dolgova, H. Uchida, M. Inoue, B.S. Luk'yanchuk, and A.A. Fedyanin, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 151102 (2019).
22. P.P. Iyer, M. Pendharkar, and J.A. Schuller, *Adv. Opt. Mater.* **4**, 1582 (2016).
23. G.K. Shirmanesh, R. Sokhoyan, P.C. Wu, and H.A. Atwater, *ACS Nano* **14**, 6912 (2020).
24. V.V. Zubyuk, P.P. Vabishchevich, M.R. Shcherbakov, A.S. Shorokhov, A.N. Fedotova, S. Liu, G. Keeler, T.V. Dolgova, I. Staude, I. Brener, and A.A. Fedyanin, *ACS Photonics* **6**, 2797 (2019).
25. K. Koshelev, A. Bogdanov, and Y. Kivshar, *Sci. Bull.* **64**, 836 (2019).
26. H. Qin, W. Redjem, and B. Kante, *Opt. Lett.* **47**, 1774 (2022).
27. E.V. Melik-Gaykazyan, K.L. Koshelev, J. Choi, S.S. Kruk, H. Park, A.A. Fedyanin, and Y.S. Kivshar, *JETP Lett.* **109**, 131 (2019).
28. V.V. Zubyuk, P.A. Shafrin, M.R. Shcherbakov, G. Shvets, and A.A. Fedyanin, *ACS Photonics* **9**, 493 (2022).
29. K.I. Okhlopkov, A. Zilli, A. Tognazzi, D. Rocco, L. Fagiani, E. Mafakheri, M. Bollani, M. Finazzi, M. Celebrano, M.R. Shcherbakov, C. Angelis, and A.A. Fedyanin, *Nano Lett.* **21**, 10438 (2021).
30. K. Koshelev, S. Lepeshov, M. Liu, A. Bogdanov, and Y. Kivshar, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 193903 (2018).
31. S. Campione, S. Liu, L.I. Basilio, L.K. Warne, W.L. Langston, T.S. Luk, J.R. Wendt, J.L. Reno, G.A. Keeler, I. Brener, and M.B. Sinclair, *ACS Photonics* **3**, 2362 (2016).
32. А.М. Черняк, М.Г. Барсукова, А.С. Шорохов, А.И. Мусорин, А.А. Федянин, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 40 (2020).
33. A.P. Anthur, H. Zhang, R. Paniagua-Dominguez, D.A. Kalashnikov, S.T. Ha, T.W. Maß, A.I. Kuznetsov, and L. Krivitsky, *Nano Lett.* **20**, 8745 (2020).
34. K. Koshelev, Y. Tang, K. Li, D. Choi, G. Li, and Y. Kivshar, *ACS Photonics* **6**, 1639 (2019).
35. A. Archetti, R. Lin, N. Restori, F. Kiani, T.V. Tsoulos, and G. Tagliabue, *Nanophotonics* **11**, 3969 (2022).
36. E. Klopfer, M. Lawrence, D. Barton III, J. Dixon, and J.A. Dionne, *Nano Lett.* **20**, 5127 (2020).
37. E. Lassalle, T.W. Mass, D. Eschimese, A.V. Baranikov, E. Khaidarov, S. Li, R. Paniagua-Dominguez, and A.I. Kuznetsov, *ACS Photonics* **8**, 1457 (2021).

Активное подавление светового сдвига в атомных часах на основе эффекта когерентного пленения населенностей в парах ^{87}Rb с использованием метода фазовых прыжков

Д. А. Раднатаров⁺¹⁾, С. М. Кобцев⁺, В. А. Андрюшков⁺, М. Ю. Басалаев^{+*×}, А. В. Тайченачев^{+*},
М. Д. Радченко^{+*×}, В. И. Юдин^{+*× 1)}

⁺Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

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

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

Поступила в редакцию 28 февраля 2023 г.

После переработки 3 марта 2023 г.

Принята к публикации 3 марта 2023 г.

Представлена экспериментальная демонстрация активного подавления светового сдвига реперного резонанса когерентного пленения населенностей (КПН) в парах ^{87}Rb для улучшения долговременной стабильности малогабаритных атомных часов. Наш подход основан на использовании техники фазовых прыжков для синтеза сигнала ошибки, пропорционального величине светового сдвига КПН резонанса, из оптического сигнала пропускания. Использование данного сигнала ошибки в дополнительной петле обратной связи позволяет обеспечить стабилизацию амплитуды СВЧ сигнала для фазовой модуляции лазерного излучения вблизи значения, при котором отсутствует световой сдвиг КПН резонанса. В наших экспериментах использование данного метода позволило уменьшить долговременную нестабильность атомных КПН часов в 15 раз при времени интегрирования 10000–20000 с.

DOI: 10.31857/S1234567823070042, EDN: jlzcct

Резонансы когерентного пленения населенностей (КПН) являются основой современного подхода к созданию миниатюрных атомных часов [1, 2]. Данные устройства обладают низким энергопотреблением, весом и габаритами, и имеют множество потенциальных применений в области встраиваемых и носимых устройств навигации и связи. Одним из факторов, которые на данный момент ограничивают область применения подобных устройств, является относительно высокая нестабильность на временах усреднения более 1000 с из-за наличия световых сдвигов реперного КПН резонанса [3].

Как известно, в атомных КПН часах реперный резонанс возбуждается полем, формируемым при фазовой СВЧ модуляции монохроматического излучения, когда возникает эквидистантный набор спектральных компонент с разностью частот, равной частоте модуляции [4]. При этом в возбуждении КПН резонанса участвуют только две резонансные компоненты с разностью частот, равной частоте сверхтонкого расщепления основного состояния атомов щелочного металла (например, 6.835 ГГц для ^{87}Rb). Остальные компоненты, неизбежно возникаю-

щие при фазовой модуляции, хотя и не участвуют в возбуждении резонанса, тем не менее, оказывают заметное влияние на его частоту вследствие динамического эффекта Штарка (квадратичный штарковский сдвиг). Через данный эффект реализуется негативное влияние на долговременную стабильность атомных часов из-за следующих факторов: флуктуация мощности излучения лазера, старение ячеек (изменение пропускания окон оптических ячеек [3]), флуктуация амплитуды СВЧ сигнала, и флуктуация температуры ячеек [5] (поскольку изменение оптической плотности среды также может влиять на величину полевого сдвига). Кроме того, на форму и сдвиг резонанса могут оказывать влияние движение атомов и столкновения со стенками газовой ячейки [6–9].

Величина светового сдвига зависит от распределения амплитуд спектральных компонент и определяется глубиной фазовой модуляции. При этом существует такая глубина СВЧ модуляции, при которой суммарный полевой сдвиг (от всех частотных компонент) КПН резонанса равен нулю [10]. Ранее были предложены несколько способов для уменьшения влияния светового сдвига в атомных КПН часах: точный подбор мощности СВЧ модуляции [11], компенсация отстройки частоты [12], компенсация

¹⁾e-mail: d.radnatarov@gmail.com; viyudin@mail.ru

старения ячеек [13], использование ячейки с золотыми микродисками для предотвращения оседания щелочного металла на окна [14], сравнение частот КПН резонанса при двух разных оптических мощностях [15, 16], а также использование различных модификаций рамсеевской спектроскопии [17–22]. Однако эти методы требуют использования внешнего модулятора мощности лазерного излучения (акустооптический модулятор), что ограничивает возможность их реализации в малогабаритных атомных часах, поскольку увеличивает размеры и энергопотребление устройств.

Для того, чтобы решить проблему подавления светового сдвига без вариации мощности излучения, нами предлагается использовать технику фазовых прыжков [23] при формировании сигнала ошибки в лазерном пучке с пространственно неоднородным профилем интенсивности (например, гауссов профиль). В этом случае, как показано в [24], наличие светового сдвига приводит к тому, что положение нуля сигнала ошибки зависит от времени интегрирования динамической части в сигнале пропускания после фазового прыжка. На этой основе в [24, 25] предложено использовать два различных времени интегрирования (длинное и короткое) для генерации двух разных сигналов ошибки. При наличии светового сдвига частоты часового перехода нули этих сигналов ошибки находятся в разных точках по двухфотонной отстройке, в то время как в отсутствие полевого сдвига положение нулей сигналов ошибки совпадает. Данное свойство можно использовать для формирования дополнительной петли обратной связи, которая будет стабилизировать мощность СВЧ модуляции на уровне, при котором световой сдвиг КПН резонанса исчезает.

В данной работе представлены результаты экспериментальной апробации метода [24] для активного подавления полевых сдвигов КПН резонанса. Демонстрировано уменьшение долговременной нестабильности атомных КПН часов более чем на порядок при времени интегрирования 10000–20000 с.

Схема экспериментальной установки изображена на рис. 1. Излучение диодного лазера с длиной волны 794.7 нм, соответствующей D1 линии поглощения ^{87}Rb , фокусировалось с помощью линзы на зеркале, которое обеспечивало двойное прохождение излучения через электрооптический фазовый модулятор (NewFocusTM 4431), для отведения модулированного излучения использовалась светоделительная пластинка с соотношением 1:1. Электрооптический модулятор использовался для модуляции фазы излучения на частоте 3.417 ГГц, которая является поло-

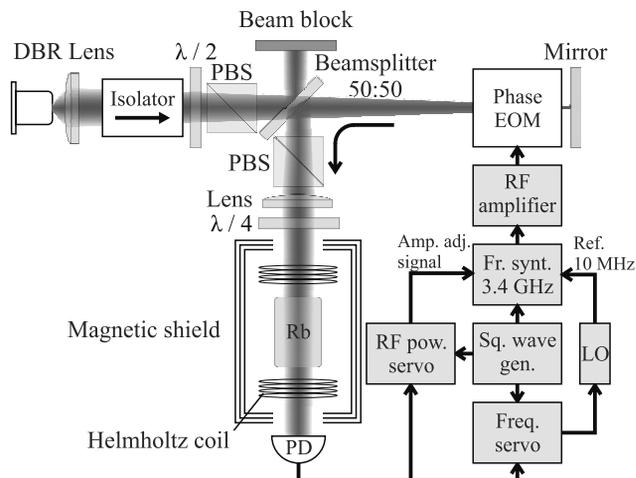


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. DBR – диодный лазер с распределенным брэгговским отражателем; Phase EOM – фазовый электрооптический модулятор; $\lambda/2$ – полуволновая фазовая пластина; PBS – поляризатор; $\lambda/4$ – четвертьволновая фазовая пластина; LO – кварцевый осциллятор 10 МГц; Fr. synt. – СВЧ синтезатор; Sq. wave gen. – генератор прямоугольного сигнала; RF pow. servo – система автоподстройки амплитуды СВЧ сигнала; Freq. servo – система стабилизации частоты LO

виной частоты сверхтонкого расщепления рубидия (6.835 ГГц). Модуляция ведет к появлению набора эквидистантных спектральных линий, расположенных на расстоянии, равном частоте модуляции. Для возбуждения резонанса используются боковые частоты первого порядка. Для защиты диодного лазера от отраженного излучения был использован оптический фарадеевский изолятор. Для управления мощностью излучения использовалась связка из поляризационного делителя (PBS) и полуволновой фазовой пластины ($\lambda/2$). Поляризационный делитель (PBS) устанавливался в положение, соответствующее горизонтальной поляризации выходного излучения, которая необходима для корректной работы электрооптического модулятора. Необходимость использования двухпроходной схемы фазовой модуляции обусловлена тем, что максимальная допустимая мощность СВЧ сигнала, подаваемого на вход модулятора (EOM), составляющая 4 Вт, не позволяет получить индекс фазовой модуляции выше 1.9 за один проход. Использование двухпроходной схемы позволяет увеличить индекс модуляции в $\sqrt{2}$ раза и достичь таким образом индекса модуляции 2.4, который необходим для подавления полевого сдвига резонанса КПН [10]. Подготовленное излучение проходит через четвертьволновую фазовую пластину и приобретает круговую поляризацию, которая необ-

ходима для возбуждения резонанса КПН. Лазерный луч проходит через рубидиевую ячейку и попадает на фотодетектор (PD). Рубидиевая ячейка имела цилиндрическую форму, длина внутреннего объема ячейки составляла 5 мм, диаметр 4 мм [26]. Кольца Гельмгольца создают параллельное магнитное поле вдоль луча лазера для расщепления Зеемановских подуровней. Ячейка была изолирована от внешнего магнитного поля экраном, состоящим из трех слоев μ -металла.

Метод фазовых прыжков предполагает для наблюдения КПН резонанса прямоугольную модуляцию фазы СВЧ сигнала. На рисунке 2 изображен сиг-

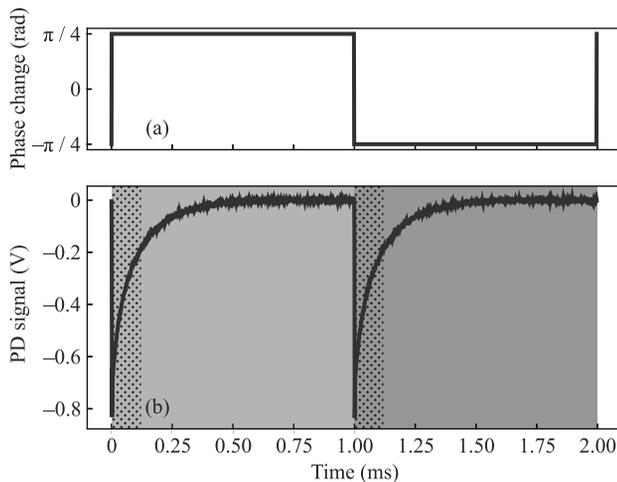


Рис. 2. (Цветной онлайн) Схема детектирования КПН резонанса при реализации метода фазовых прыжков. (a) – Фаза СВЧ сигнала. (b) – Сигнал пропускания с фотоприемника. Синяя область соответствует части сигнала после фазового прыжка вверх, красная – области после фазового прыжка вниз. Заштрихованные области соответствуют частям сигнала, используемым для синтеза сигнала ошибки, пропорционального световому сдвигу

нал пропускания, детектируемый фотодетектором при нулевой отстройке частоты от резонансной частоты. Для генерации сигнала ошибки для петли стабилизации частоты кварцевого осциллятора по резонансу КПН использовался синхронный усилитель, на один вход которого подавался сигнал с фотоприемника, а на второй вход – сигнал, модулирующий фазу СВЧ сигнала, другими словами, сигнал ошибки равен интегралу сигнала пропускания, умноженного на модулирующий сигнал [23]. Использование DBR лазера с внешним фазовым модулятором, а не лазера с поверхностно излучающим лазером с вертикальным резонатором (VCSEL) и прямой СВЧ модуляцией тока инжекции, обосновано тем, что такой подход поз-

воляет формировать излучение с симметричными по амплитуде боковыми спектральными компонентами, что гарантирует возможность подавления светового сдвига резонанса.

На рисунке 3а представлены зависимости относительного сдвига резонанса КПН от мощности СВЧ

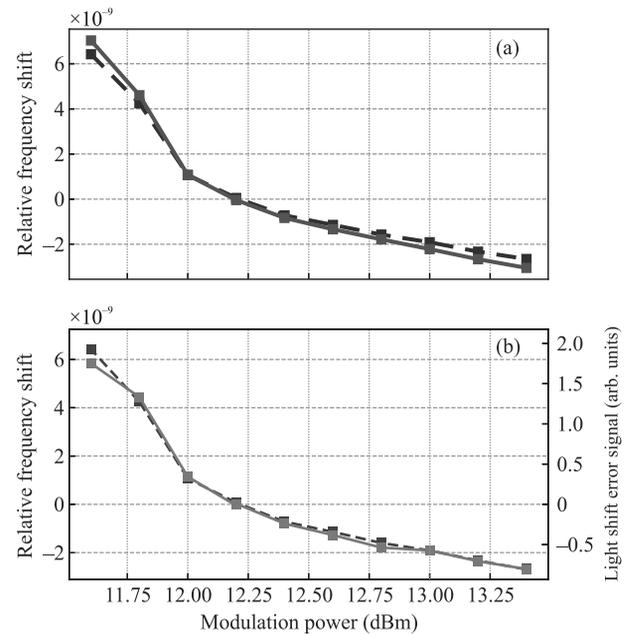


Рис. 3. (Цветной онлайн) Измеренные зависимости: (a) – светового сдвига КПН резонанса от мощности модулирующего СВЧ сигнала при мощности оптического излучения 10 мкВт (синяя штриховая линия) и 20 мкВт (красная сплошная линия); (b) – светового сдвига КПН резонанса (синяя штриховая линия) и сигнала ошибки (зеленая сплошная линия) при мощности 10 мкВт

сигнала при разных мощностях оптического излучения. Из рисунка 3а видно, что при значении мощности СВЧ сигнала около 12 дБм кривые пересекаются. Точка пересечения соответствует значению амплитуды фазовой модуляции, при которой происходит подавление полевого сдвига. Кроме того, из сигнала пропускания возможно извлечь информацию о величине и знаке светового сдвига резонанса. Для этого, следуя [24], нужно интегрировать только относительно небольшой временной интервал сигнала с фотоприемника после фазового прыжка, когда наблюдается наибольшая динамика сигнала пропускания (см. рис. 2b). Синтезированный таким образом сигнал ошибки пропорционален световому сдвигу и, как видно из рис. 3b, имеет форму зависимости от мощности СВЧ модуляции, аналогичной сдвигу частоты, и обращается в нуль при мощности СВЧ модуляции, соответствующей условию подавления светово-

го сдвига. В результате появляется возможность для создания петли обратной связи, которая бы активно подавляла полевой сдвиг путем автоподстройки мощности СВЧ модуляции так, чтобы сигнал ошибки был равен нулю.

Прямое измерение стабильности атомного стандарта частоты при включенной и выключенной петле обратной связи подавления полевого сдвига подтверждает, что разработанный метод позволяет подавить полевой сдвиг резонанса КПП, и тем самым значительно улучшить долговременную стабильность лабораторного атомного стандарта частоты на основе эффекта КПП. Результаты измерений приведены на рис. 4, откуда видно, что применение мето-

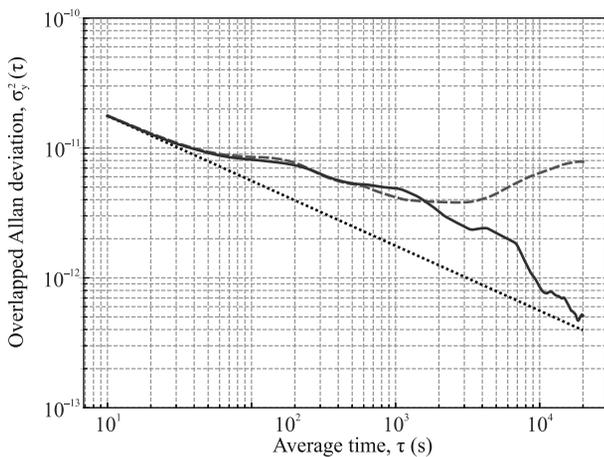


Рис. 4. (Цветной онлайн) Результаты измерения нестабильности атомных КПП часов: без активного подавления светового сдвига (красная штриховая кривая), при использовании системы активного подавления светового сдвига (синяя сплошная кривая), теоретическая зависимость $5.6 \times 10^{-11}/\sqrt{\tau}$ нестабильности пассивного стандарта частоты от времени (штрих-пунктирная прямая линия)

да позволило уменьшить долговременную нестабильность атомных часов в 15 раз (с 7.6×10^{-12} до 5.1×10^{-13}) при усреднении на интервале 20000 с и практически достичь теоретического значения долговременной нестабильности (4.0×10^{-13}), обусловленного кратковременной нестабильностью (5.6×10^{-11} за 1 с).

Следует отметить, что продолжительность измерений в рамках данных экспериментов была ограничена ~ 8 ч. Это было связано с тем, что рядом со зданием лаборатории, в которой проводились измерения, было начато строительство новых корпусов университета, поэтому измерения были ограничены ночным временем, когда не работала тяжелая строительная техника. Также следует отметить, что об-

щая длина оптического пути составляла около 1.5 м. Для защиты элементов установки от влияния потоков воздуха весь оптический тракт был защищен пластиковыми экранами. Однако это не позволило полностью подавить флуктуации температуры элементов установки, которые достаточно сильно влияли на стабильность стандарта частоты на интервале времен до 5000 с, что выразилось в характерном “горбе” на графике стабильности.

Таким образом, в данной работе экспериментально продемонстрирован метод активного подавления световых сдвигов опорного резонанса в атомных часах на основе эффекта КПП без использования модуляции мощности лазерного излучения. Был использован метод фазовых прыжков для формирования сигнала ошибки, пропорционального величине светового сдвига. Применение данного сигнала ошибки в дополнительной петле обратной связи позволяет обеспечить стабилизацию амплитуды СВЧ фазовой модуляции лазерного излучения вблизи значения, при котором отсутствует световой сдвиг КПП резонанса. В наших экспериментах в ячейке с парами ^{87}Rb это привело к уменьшению долговременной нестабильности атомных КПП часов в 15 раз (до 5.1×10^{-13} при времени интегрирования 10000–20000 с) и к достижению уровня, сравнимого с теоретическим значением, обусловленного кратковременной нестабильностью (5.6×10^{-11} за 1 с).

Работа поддержана грантом Российского научного фонда # 21-12-00057. Разработка системы активного управления параметрами оптического излучения накачки осуществлялась в рамках государственного задания # FSUS-2020-0036.

1. J. Kitching, *Appl. Phys. Rev.* **5**, 031302 (2018).
2. P. Cash, W. Krzewick, P. MacHado, K. R. Overstreet, M. Silveira, M. Stanczyk, D. Taylor, and X. Zhang, *Microsemi Chip Scale Atomic Clock (CSAC) technical status, applications, and future plans 2018 European Frequency and Time Forum (EFTF)*, Turin, Italy (2018), p. 65.
3. J. Camparo, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **52**, 1075 (2005).
4. N. Cyr, M. Tetu, and M. Breton, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **42**, 640 (1993).
5. D. Radnatarov, S. Kobtsev, V. Andryushkov, and T. Steschenko, *Suppression of light-field shift of CPT resonances in optically dense media*, *Proc. SPIE* **11817**, Applied Optical Metrology IV, 118170O (2021).
6. А. Н. Литвинов, И. М. Соколов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 791 (2021).
7. К. А. Баранцев, А. С. Курапцев, А. Н. Литвинов, *ЖЭТФ* **160**, 611 (2021).

8. Я. А. Фофанов, И. М. Соколов, *ЖЭТФ* **162**, 297 (2022).
9. К. А. Баранцев, Г. В. Волошин, А. С. Курапцев, А. Н. Литвинов, И. М. Соколов, *ЖЭТФ* **163**, 162 (2023).
10. M. Zhu and L. S. Cutler, *Theoretical and Experimental Study of Light Shift in a CPT-Based Rb Vapor Cell Frequency Standard, Proceedings of the 32th Annual Precise Time and Time Interval Systems and Applications Meeting, Reston, Virginia* (November 2000), p. 311.
11. R. Boudot, P. Dziuban, M. Hasegawa, R. K. Chutani, S. Galliou, V. Giordano, and C. Gorecki, *J. Appl. Phys.* **109**, 014912 (2011).
12. Y. Zhang, W. Yang, S. Zhang, and J. Zhao, *J. Opt. Soc. Am. B* **33**, 1756 (2016).
13. S. Yanagimachi, K. Harasaka, R. Suzuki, M. Suzuki, and S. Goka, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 104102 (2020).
14. S. Karlen, T. Overstolz, J. Gobet, J. Haesler, F. Droz, and S. Lecomte, *Gold microdiscs as alkali preferential condensation spots for cell clock long-term frequency improvement*, 2018 European Frequency and Time Forum (EFTF), Turin, Italy (2018), p. 91.
15. V. I. Yudin, M. Yu. Basalaev, A. V. Taichenachev, J. W. Pollock, Z. L. Newman, M. Shuker, A. Hansen, M. T. Hummon, R. Boudot, E. A. Donley, and J. Kitching, *Phys. Rev. Appl.* **14**, 024001 (2020).
16. M. Abdel Hafiz, R. Vicarini, N. Passilly, C. E. Calosso, V. Maurice, J. W. Pollock, A. V. Taichenachev, V. I. Yudin, J. Kitching, and R. Boudot, *Phys. Rev. Appl.* **14**, 034015 (2020).
17. V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, M. Yu. Basalaev, T. Zanon-Willette, J. W. Pollock, M. Shuker, E. A. Donley, and J. Kitching, *Phys. Rev. Appl.* **9**, 054034 (2018).
18. M. Abdel Hafiz, G. Coget, M. Petersen, C. Rocher, S. Guérandel, T. Zanon-Willette, E. de Clercq, and R. Boudot, *Phys. Rev. Appl.* **9**, 064002 (2018).
19. M. Shuker, J. W. Pollock, R. Boudot, V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, J. Kitching, and E. A. Donley, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 113601 (2019).
20. V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, M. Yu. Basalaev, T. E. Mehlstäubler, R. Boudot, T. Zanon-Willette, J. W. Pollock, M. Shuker, E. A. Donley, and J. Kitching, *New J. Phys.* **20**, 123016 (2018).
21. M. Shuker, J. W. Pollock, R. Boudot, V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, J. Kitching, and E. A. Donley, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 141106 (2019).
22. M. Yu. Basalaev, V. I. Yudin, D. V. Kovalenko, T. Zanon-Willette, and A. V. Taichenachev, *Phys. Rev. A* **102**, 013511 (2020).
23. M. Y. Basalaev, V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, M. I. Vaskovskaya, D. S. Chuchelov, S. A. Zibrov, V. V. Vassiliev, and V. L. Velichansky, *Phys. Rev. Appl.* **13**, 034060 (2020).
24. V. I. Yudin, M. Yu. Basalaev, A. V. Taichenachev, D. A. Radnatarov, V. A. Andryushkov, and S. M. Kobtsev, *J. Phys. Conf. Ser.* **2067**, 012003 (2021).
25. V. Andryushkov, D. Radnatarov, S. Kobtsev, M. Basalaev, and V. Yudin, *Active light shift suppression in CPT atomic clock, Proceedings of the 15th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-PR 2022, 31 July – 5 August, Sapporo, Japan)*, P-CTh6-01 (2022).
26. S. Kobtsev, S. Donchenko, S. Khripunov, D. Radnatarov, I. Blinov, and V. Palchikov, *Opt. Laser Technol.* **119**, 105634 (2019).

Наблюдение сильного магнитооптического вращения поляризации света в парах рубидия для приложений в атомной магнитометрии

А. О. Макаров^{+,*}, Д. В. Бражников^{+,*1)}, А. Н. Гончаров^{+,*×}

⁺Институт лазерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

^{*}Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

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

Поступила в редакцию 9 февраля 2023 г.

После переработки 4 марта 2023 г.

Принята к публикации 10 марта 2023 г.

Нелинейные резонансы в парах щелочных металлов, регистрируемые методом магнитооптического вращения линейной поляризации света, активно используются в квантовой магнитометрии для создания атомных магнитометров. В большинстве таких сенсоров магнитооптическое вращение связано с явлением магнито-чувствительного двойного лучепреломления, а углы вращения обычно не превышают десятков миллирадиан. В настоящей работе предложена конфигурация эксперимента, в которой резонансы магнитооптического вращения линейной поляризации пробной волны вызваны сильным дихроизмом, наведенным в среде встречной волной накачки. Обе волны находятся в резонансе с оптическим переходом $F_g = 2 \rightarrow F_e = 1$ в D_1 -линии атома ^{87}Rb ($\lambda \approx 795$ нм). В наших экспериментах использовалась цилиндрическая ячейка с буферным газом длиной 2 см, а максимальный угол вращения составил ≈ 390 мрад (22°) при ширине резонанса около 300 нТл. Полученные результаты показывают, что предложенная конфигурация для наблюдения магнитооптического вращения перспективна для создания миниатюрных высокочувствительных атомных магнитометров.

DOI: 10.31857/S1234567823070054, EDN: jptlti

1. Введение. Двулучепреломление (ДП) и дихроизм (ДХ) являются фундаментальными явлениями в оптике анизотропных сред, нашедшими множество применений в медицине, биологии, нанотехнологиях и других областях науки и техники. Эти явления лежат в основе работы многих устройств, используемых в оптике: поляризаторы, фазовые пластинки, оптические изоляторы и другие, в которых анизотропия может быть собственной, как в кристаллах, или наведенной внешним воздействием. ДП связано с анизотропией показателя преломления, а ДХ – с анизотропией показателя поглощения. На этих явлениях основан ряд прецизионных измерительных методов, таких, например, как эллипсометрия [1] и магнитометрия [2, 3].

В атомной магнитометрии большое распространение получила поляриметрическая техника регистрации резонансов, связанных с проявлением магнито-чувствительных ДП или ДХ в парах атомов щелочных металлов [4, 5]. В этом случае регистрируется изменение поляризации света после его взаимодействия со средой в зависимости от величины магнитного поля. В общем случае на

поляризацию оказывают влияние как ДП, так и ДХ. Однако при правильном выборе оптической частоты излучения на магнитооптические резонансы оказывает определяющее влияние только одно из двух явлений.

В частности, в работе [6] был продемонстрирован атомный магнитометр с рекордной чувствительностью, равной 0.16 фТл/ $\sqrt{\text{Гц}}$. В нем используется явление циркулярного двулучепреломления (ЦДП) и связанный с ним эффект магнитооптического вращения (МОВ) линейной поляризации света. В этом случае линейную поляризацию волны на входе в ячейку с атомами удобно представить в виде суперпозиции двух волн, обладающих противоположными циркулярными поляризациями (σ^+ и σ^-). В силу ЦДП, показатели преломления n_+ и n_- для этих волн различаются, что приводит к набегу фазы между этими составляющими поля на выходе из ячейки и повороту линейной поляризации суммарного поля.

В работе [7] линейно поляризованный световой пучок, резонансный оптическому переходу в D_2 -линии ^{85}Rb , приводил к эффекту выстраивания атомных спинов, что эквивалентно возникновению линейного ДХ в среде. При этом ось выстраивания (дихроизма) прецессировала с ларморовской частотой

¹⁾e-mail: x-kvant@mail.ru

той во внешнем магнитном поле. Эти осцилляции регистрировались по резонансам МОВ на выходе из ячейки и могли быть использованы для измерения магнитного поля. В другой работе [8] использовался циркулярный ДХ, индуцируемый в парах Cs эллиптически поляризованной волной, резонансной D₁-линии. В такой схеме ДХ приводит к изменению эллиптичности поляризации, которое также несет информацию о магнитном поле.

В магнитометрии на основе МОВ в основном используются две геометрии лазерного поля. В первой геометрии два пространственно разнесенных пучка – накачивающий и пробный – пересекаются в газовой ячейке под прямым углом (см., например, [6, 9]). Во втором случае, который больше подходит для миниатюрных сенсоров, используется один пучок, который также может быть представлен в виде суммы накачивающего и пробного пучков, разделяемых по поляризациям [10] или во времени [11]. Отметим, что возможны и другие геометрии поля, например, со встречными лазерными пучками [12, 13].

Вместе с тем, независимо от используемой геометрии поля, для повышения чувствительности измерений необходимо разрабатывать такие методы наблюдения резонансов МОВ, в которых происходит вращение линейной поляризации на как можно большие углы. При этом должна быть обеспечена высокая чувствительность угла поворота к изменению магнитного поля, т.е. малая ширина резонанса. Для многих приложений оказывается также важным, чтобы заметное вращение происходило на небольшой длине среды. В частности, это требование имеет принципиальное значение для создания миниатюрных магнитных сенсоров, особенно востребованных в медицинской диагностике [14, 15]. Для таких сенсоров в качестве параметра качества резонансов МОВ можно принять выражение:

$$Q = \frac{\varphi_{\max}}{\Delta \times L_{\text{cell}}}, \quad (1)$$

где φ_{\max} – максимальный угол вращения, регистрируемый в эксперименте, Δ – полная ширина резонанса на полувысоте, L_{cell} – длина ячейки.

В магнитометрах на основе МОВ углы вращения обычно принимают значения от долей до нескольких десятков миллирадиан. Например, в работе [16] для наблюдения МОВ использовалась сферическая ячейка с антирелаксационным покрытием стенок и парамагнетиком ⁸⁷Rb, диаметр которой равен 30 мм. Амплитуда резонанса МОВ составила ≈ 0.4 мрад при его ширине около 7 нТл. Несмотря на относительно малую ширину резонанса, вращение также было небольшим,

так что $Q \approx 2$ мрад · мкТл⁻¹ · мм⁻¹. В работе [7] также использовалась ячейка с покрытием и парамагнетиком ⁸⁵Rb, диаметром 100 мм. Ширина резонанса составила всего около 0.4 нТл, а амплитуда ≈ 1.8 мрад. Таким образом, получаем следующую оценку: $Q \approx 45$ мрад · мкТл⁻¹ · мм⁻¹. Недавняя работа [13] посвящена наблюдению гигантского МОВ в парах ⁸⁷Rb в ячейке с буферным газом длиной 60 мм. Несмотря на значительный угол вращения, равный 120 мрад, ширина резонанса также была относительно большой и составила ≈ 1 мкТл. Из этих данных имеем: $Q \approx 2$ мрад · мкТл⁻¹ · мм⁻¹.

В некоторых работах для существенного увеличения угла вращения используются многопроходные схемы, в которых пробный световой луч проходит ячейку несколько раз, что эквивалентно увеличению длины среды. Например, в работе [17] пробная волна испытывала более 100 отражений от зеркал, расположенных внутри рубидиевой ячейки длиной 23 мм, нагретой до температуры 133 °С. Резонансы МОВ наблюдались в виде осцилляций после действия $\pi/2$ -импульса радиочастотного поля (60 кГц). Несмотря на экстремально большие углы, зарегистрированные в этой работе (100 рад), такая схема наблюдения МОВ, как и алгоритм обработки сигнала, представляются нам достаточно сложными для реализации в миниатюрном магнитном сенсоре. Между тем, в расчете на один проход угол вращения также был значительным и составил около 1 рад.

В нашей работе для наблюдения МОВ в парах ⁸⁷Rb исследуется достаточно простая конфигурация светового поля, не требующая использования радиочастотного поля и состоящая из встречных световых волн, линейные поляризации которых составляют угол 45°. Одна из волн обладает большей интенсивностью и является накачивающей волной, тогда как вторая волна слабее – пробная волна. В такой геометрии наша схема схожа с предложенной в работе [13]. Однако принципиальное отличие состоит в том, что в нашем случае обе волны находятся в резонансе с одним и тем же переходом $F_g = 2 \rightarrow F_e = 1$ в D₁-линии, тогда как в работе [13] волны действовали на разные линии: волна накачки на D₂, а пробная волна на D₁. При этом в работе [13] использовались волны, отстроенные в красную сторону от центров линий поглощения (от ≈ 150 до 5000 МГц). Таким образом, предлагаемая нами схема наблюдения МОВ значительно проще. Более того, как показывают результаты экспериментов, в новой схеме примерно при той же температуре паров ($T_{\text{cell}} \approx 80$ °С), но при длине ячейки в три раза меньшей, наблюдается существенно больший угол

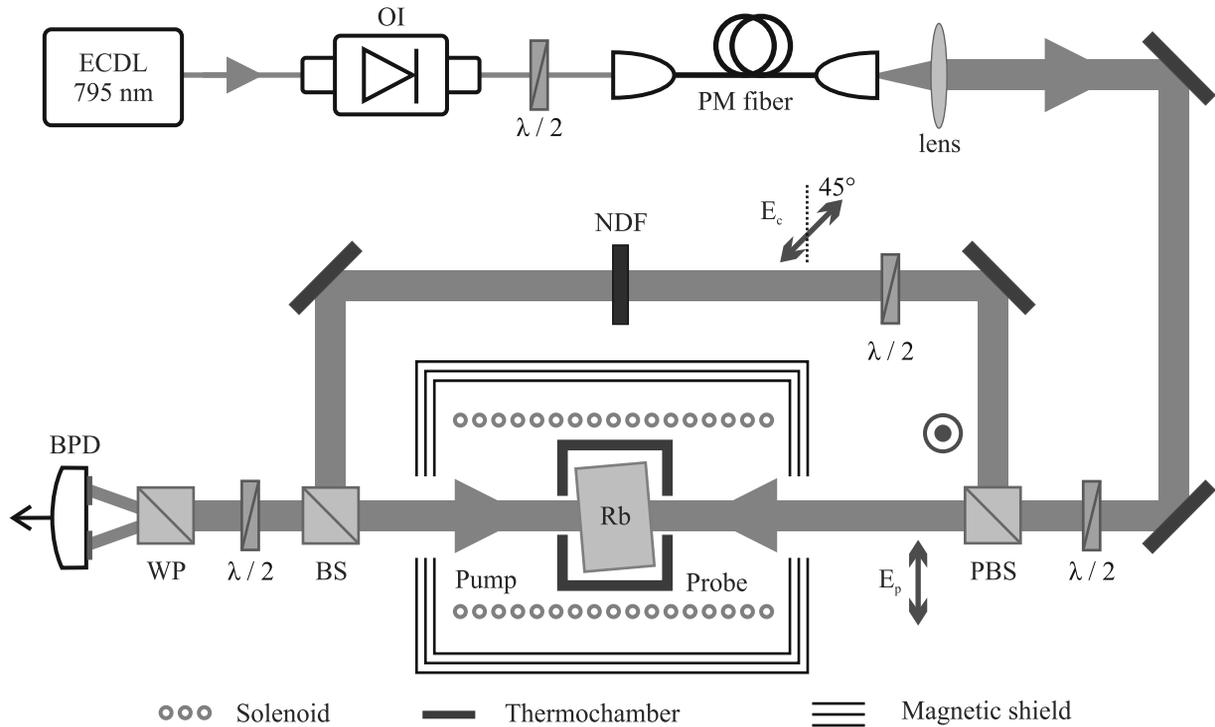


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. Пояснения приведены в тексте

вращения, равный ≈ 390 мрад (22°) при ширине резонанса около 300 нТл. Максимальное значение параметра Q в наших экспериментах составило величину ≈ 90 мрад \cdot мкТл $^{-1} \cdot$ мм $^{-1}$. Эти результаты демонстрируют хорошую перспективу предложенной схемы регистрации резонансов МОВ для создания миниатюрных атомных магнитометров для измерения сверхслабых магнитных полей.

2. Эксперимент. На рисунке 1 приведена схема экспериментальной установки для наблюдения резонансов МОВ. В эксперименте использовался диодный лазер с внешним резонатором (ECDL) в геометрии Литтрова [18], работающий на длине волны ≈ 795 нм (D_1 -линия ^{87}Rb) с шириной линии менее 1 МГц. Плавная перестройка длины волны излучения осуществлялась с помощью пьезокерамики, на которую установлена дифракционная решетка. Оптическая частота контролировалась с помощью измерителя длин волн “WS7” от компании ООО “Ангстрем” с разрешением 500 кГц. Такого контроля было достаточно, поскольку за время эксперимента частота лазера существенно не дрейфовала и находилась в резонансе с переходом $F_g = 2 \rightarrow F_e = 1$ (см. рис. 2), для которого $\gamma \approx 5.6$ МГц – скорость спонтанной релаксации возбужденного состояния.

Излучение лазера проходило через оптический изолятор Фарадея (OI) для устранения влияния па-

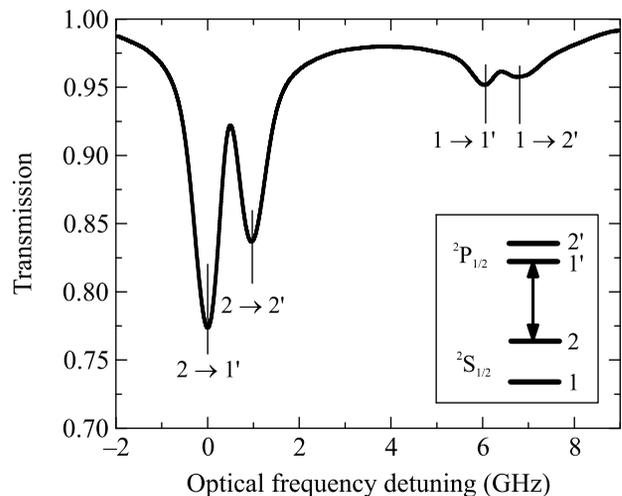


Рис. 2. Прохождение световой волны через ячейку с парами ^{87}Rb при 80°C . Цифрами отмечены угловые моменты уровней энергии в D_1 -линии, схема уровней которой приведена на вставке (стрелкой обозначен оптический переход, используемый в настоящей работе). $I \approx 180$ мВт/см 2

разитных обратных отражений. С помощью фазовой полуволновой пластинки ($\lambda/2$) линейная поляризация излучения согласовывалась с быстрой осью оптического волокна с сохранением поляризации (PM fiber). Диаметр ($1/e^2$) выходного пучка из волокна расширялся до величины 5 мм телескопом, образо-

ванным выходным коллиматором волокна и дополнительной линзой. С помощью поляризационного делительного кубика (PBS) лазерный пучок делился на два: накачивающий (E_c) и пробный (E_p) пучки. Пластика $\lambda/2$ перед кубиком позволяла перераспределять оптическую мощность между пучками, так что выполнялось условие $I_c \gg I_p$, где $I \propto E^2$ – интенсивность лазерного излучения. Оптическая мощность накачивающего пучка дополнительно регулировалась с помощью набора нейтральных фильтров (NDF). Пластика $\lambda/2$, установленная в канале волны накачки, позволяла вращать линейную поляризацию поля так, чтобы в ячейке поляризации двух встречных волн составляли угол $\approx 45^\circ$. Делитель пучка (BS) направлял пучок накачки в ячейку, не влияя существенным образом на поляризацию пробной волны, также проходящей через этот делитель. После BS пробная волна поступала в поляриметр, состоящий из пластинки $\lambda/2$, призмы Волластона (WP) и балансного фотодетектора (BPD). Пластика $\lambda/2$ позволяла добиться того, чтобы в разностном канале BPD вдали от нелинейного резонанса сигнал был равен нулю. Таким образом, появление сигнала на выходе разностного канала, BPD свидетельствовало о повороте линейной поляризации пробной волны.

Цилиндрическая ячейка из боросиликатного стекла с изотопически чистыми парами ^{87}Rb имела длину 20 мм и диаметр 25 мм. Грани ячейки наклонены на небольшой угол для уменьшения влияния обратных отражений. Ячейка помещалась в термостат (Thermochamber) из немагнитных материалов. Нагрев термостата отключался во время измерений для устранения влияния паразитного магнитного поля. Продольное магнитное поле (B_z) создавалось соленоидом. Ячейка, термостат и соленоид размещались в трехслойном магнитном экране. В центре экранов, в месте расположения ячейки, лабораторное магнитное поле подавлено до остаточного уровня не более 20 нТл.

Ячейка заполнена буферным газом аргоном давлением около 12 торр, что увеличивает время жизни поляризации атома в основном состоянии и уменьшает ширину магнитооптического резонанса. При таком давлении селективные по скоростям атомов оптические эффекты (например, резонанс насыщенного поглощения) не наблюдаются, поскольку столкновительное уширение D_1 -линии поглощения составляет ≈ 230 МГц [19], что близко к доплеровской полуширине на полувысоте (≈ 225 МГц при $T = 75^\circ\text{C}$). Используя данные и формулы из [20–22], получаем следующую оценку скорости релаксации основного состояния к изотропному распределению по магнит-

ным подуровням: $\Gamma \approx 450$ Гц. Для расчета этой величины мы положили $n_a \approx 10^{12}$ см $^{-3}$ – концентрация атомов рубидия при $T = 75^\circ$. В пределе слабого оптического поля рассчитанное значение Γ определяет минимальную ширину резонанса МОВ, равную ≈ 120 нТл.

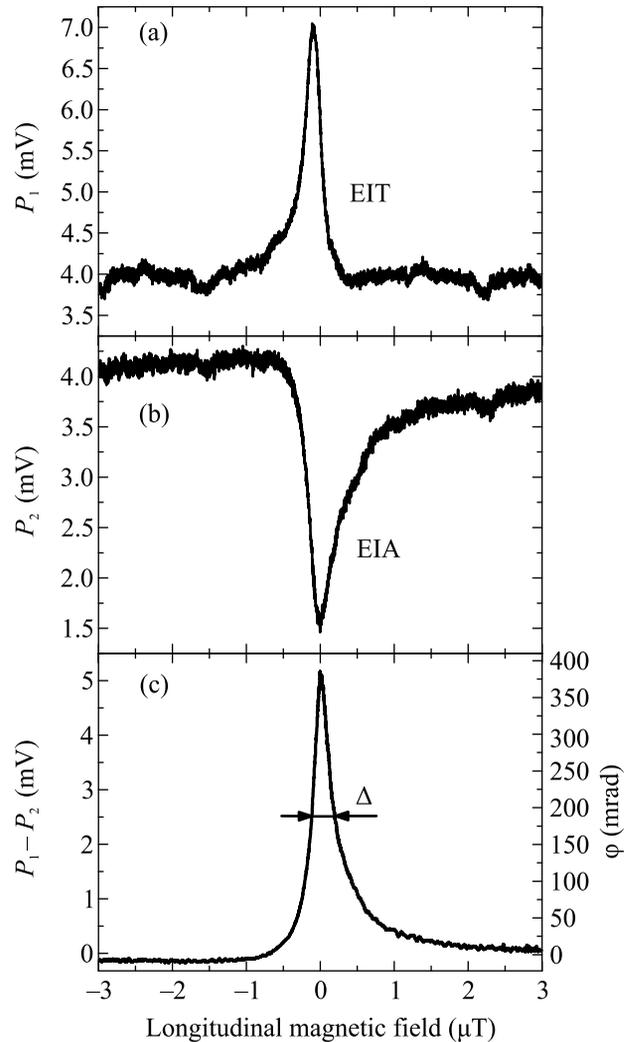


Рис. 3. Магнитооптические резонансы, регистрируемые в разных каналах балансного фотодетектора: (a) – с канала 1; (b) – с канала 2, (c) – с разностного канала, включая угол поворота поляризации пробной волны, рассчитанный по формуле (2). $I_p \approx 0.2$ мВт/см 2 , $I_c \approx 5.6$ мВт/см 2 , $T \approx 82^\circ\text{C}$

На рисунке 3 представлены сигналы с каждого канала BPD, а также резонанс вращения поляризации с дифференциального канала BPD, полученные при медленном сканировании продольного магнитного поля около нулевого значения ($f_{\text{scan}} = 10$ Гц). Угол поворота поляризации рассчитывался по формуле:

$$\varphi = \frac{1}{2} \left| \arcsin \frac{P_1 - P_2}{P_1 + P_2} \right|, \quad (2)$$

где P_1 и P_2 – сигналы с 1 и 2 каналов ВРД, а $P_1 - P_2$ – с разностного выхода фотоприемника. Из рисунка 3 видно, что в канале 1 наблюдается резонанс электромагнитно-индуцированной прозрачности (ЭИП), а в канале 2 – резонанс электромагнитно-индуцированной абсорбции (ЭИА), физика образования которых будет рассмотрена в следующем разделе. Из сравнения резонансов на рис. 3а, б, с видно, что шумы в разностном канале существенно меньше, чем в каждом из каналов по отдельности. Очевидно, это результат вычитания шума интенсивности излучения, общего для двух каналов. В отличие от шума полезный сигнал (нелинейный резонанс), наоборот, увеличивается при вычитании сигналов P_1 и P_2 , поскольку в разных каналах резонансы имеют противоположные знаки. В этих особенностях заключается одно из основных преимуществ поляриметрической техники регистрации резонансов по сравнению с регистрацией полной интенсивности света, прошедшей через ячейку.

Резонансы МОВ, связанные с явлением ДП и наблюдаемые вдали от оптического резонанса со средой, где явление ДХ практически не проявляется, имеют дисперсионную форму [5]. В нашем же случае ДХ превалирует над ДП, что приводит к лоренцевой форме резонанса. Между тем, на рис. 3 можно заметить асимметрию резонанса, которая может быть объяснена остаточным влиянием ДП и, в частности, эффектом нелинейного фарадеевского вращения [4, 5].

На рисунке 4 представлены измерения параметров резонансов МОВ при различных температурах паров рубидиевой ячейки. Как видно из рис. 4а, максимальный угол вращения, равный ≈ 390 мрад, наблюдается при температуре около 82°C и $I_c \approx 5.5$ мВт/см². Ширина резонансов, рис. 4б, ведет себя линейным образом, что является типичным для резонансов ЭИА и ЭИП в присутствии буферного газа, когда столкновительное уширение спектральной линии сравнимо или превалирует над доплеровским уширением. Минимальная измеренная ширина составила около 120 нТл, что совпадает с приведенной выше оценкой.

Максимальное значение параметра качества (рис. 4с), достигающего ≈ 90 мрад · мкТл⁻¹ · мм⁻¹, приходится на область сравнительно малых интенсивностей волны накачки, что связано с быстрым насыщением зависимости $\varphi_{\max}(I_c)$. Можно также отметить, что Q растет с увеличением температуры паров. Вместе с тем, при $T \approx 82^\circ\text{C}$ и выше в ячейке происходит практически полное поглощение пробной

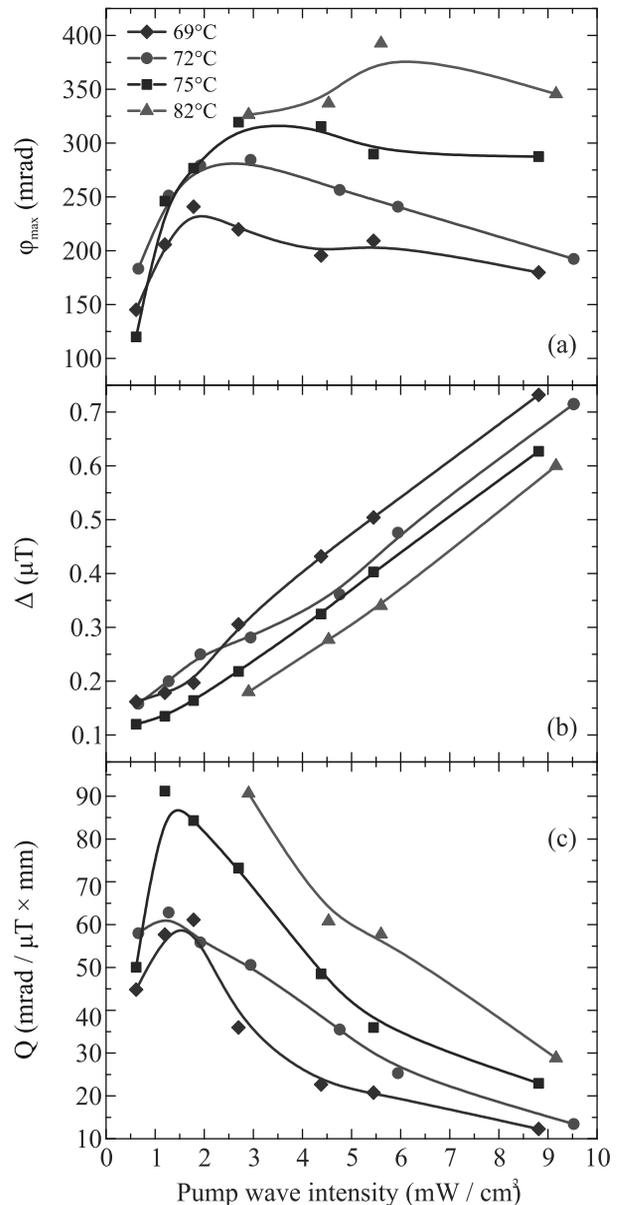


Рис. 4. (Цветной онлайн) Параметры резонансов МОВ при различных температурах паров рубидия: (а) – максимальный угол вращения; (б) – полная ширина резонанса на полувысоте (см. рис. 3с); (с) – параметр качества, $I_p \approx 0.2$ мВт/см². Сплошные кривые проведены для удобства восприятия данных эксперимента

волны при интенсивностях волны накачки менее 3 мВт/см², что не позволило измерить параметры резонансов (см. кривые на рис. 4 с треугольниками). Однако при повышении интенсивности волны накачки среда просветляется, что приводит к появлению сигналов на фотодетекторе.

3. Качественная теория. В настоящей работе мы дадим лишь качественное объяснение наблюдае-

тому эффекту. В рассмотренной схеме пробная волна (E_p) считается достаточно слабой, чтобы можно было пренебречь нелинейными эффектами, связанными с этой волной. Вместе с тем, наблюдающийся в экспериментах эффект вращения поляризации также может быть отнесен к нелинейному МОВ, но нелинейность в данном случае вызвана волной накачки (E_c).

Линейную поляризацию пробной волны удобно представить в виде суперпозиции двух компонент, линейные поляризации которых взаимно ортогональны (рис. 5). Поляризация одной из компонент параллельна поляризации волны накачки ($E_{||}$), тогда как поляризация другой – ортогональна ей (E_{\perp}). Поскольку поляриметр настроен таким образом, что волна с поляризацией $E_{||}$ попадает в канал 1 балансного фотоприемника, а компонента E_{\perp} поступает, соответственно, на канал 2, то для объяснения графиков на рис. 3 достаточно рассмотреть поглощение $E_{||}$ и E_{\perp} по отдельности.

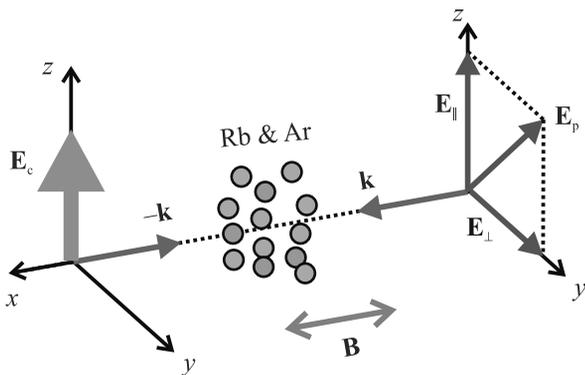


Рис. 5. (Цветной онлайн) Конфигурация электромагнитного поля для наблюдения резонансов МОВ. Голубыми стрелками обозначены волновые вектора встречных волн, которые равны по модулю. Жирная зеленая стрелка обозначает поляризацию волны накачки (E_c), тогда как тонкие розовые стрелки – поляризации пробной волны (E_p) и ее двух компонент ($E_{||}$ и E_{\perp}). Угол между векторами E_c и E_p равен 45° . Оранжевая двунаправленная стрелка обозначает направление сканирования магнитного поля

Направим ось квантовая z вдоль поляризации волны накачки (рис. 5). Рисунок 6а демонстрирует равновесное распределение населенностей по магнитным подуровням основного состояния. Иногда такое состояние называют изотропным. Далее, в отсутствие продольного магнитного поля (B_x), как показывает рис. 6б, в силу правил отбора оптическая накачка приводит к тому, что атомы приобретают поляризационный момент второго ранга в основ-

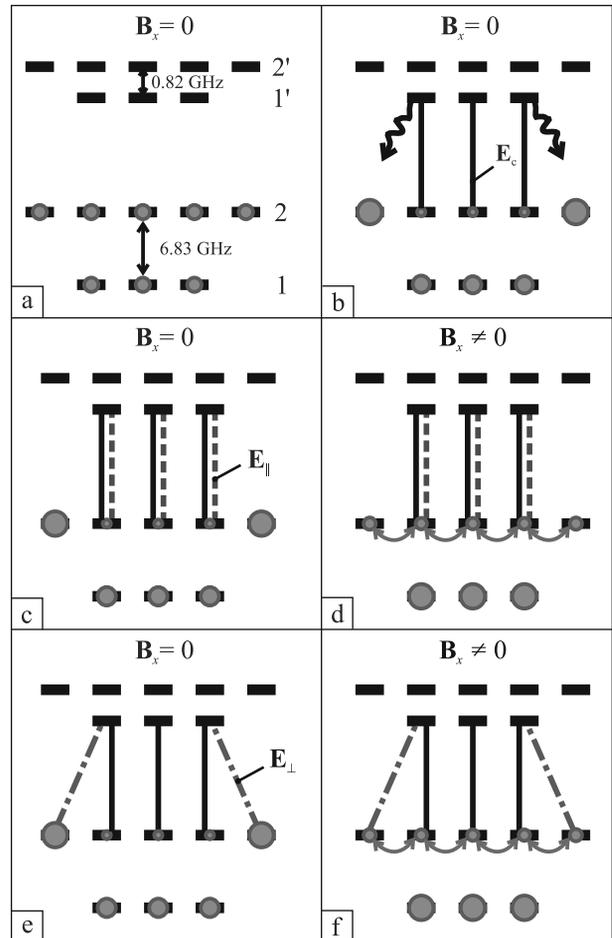


Рис. 6. (Цветной онлайн) Схема уровней в D_1 -линии ^{87}Rb . Цифрами 1 и 2 показаны угловые моменты сверхтонких уровней в основном состоянии $^2S_{1/2}$, тогда как $1'$ и $2'$ соответствуют аналогичным уровням энергии в возбужденном состоянии $^2P_{1/2}$. Зелеными кружками схематически отображено распределение населенностей по магнитным подуровням: (а) – в отсутствии электромагнитного поля; (б) – в присутствии только волны накачки E_c или (с) – в присутствии волны E_c и одной из компонент пробного поля, $E_{||}$ или (е) – E_{\perp} . На рис. (д) и (ф) в дополнение к конфигурациям, соответственно, на рис. (с) и (е) учтено влияние магнитного поля, приводящего к смешиванию магнитных подуровней (двунаправленные оранжевые стрелки), которое для простоты показано только на уровне $F_g = 2$. На рис. (е), (ф) оптические переходы, связанные с полем E_{\perp} , показаны лишь частично, а также на рисунках не отображены спонтанные переходы, кроме рис. 6б, где волнистые стрелки показывают два таких перехода

ном состоянии, который называют выстраиванием [5]. Иными словами, в результате серии вынужденных и спонтанных оптических переходов на уровне $F_g = 2$ происходит дрейф значительной части на-

селенностей магнитных подуровней в сторону крайних подуровней с магнитными квантовыми числами $m = \pm 2$. Некоторая доля населенностей подуровней также переходит на нижний уровень основного состояния с угловым моментом $F_g = 1$. Если давление буферного газа невелико, так что сверхтонкое расщепление возбужденного состояния спектрально разрешается, как на рис. 2, то волна накачки не взаимодействует с подуровнями $m = \pm 2$ и среда просветляется для этой волны при сохранении значительной части атомов на этих подуровнях.

Из рисунка 6с видно, что компонента пробного поля $\mathbf{E}_{||}$ является, по сути, лишь небольшой добавкой к полю накачки. Таким образом, волна $\mathbf{E}_{||}$ также слабо поглощается в среде, как и \mathbf{E}_c . Включение продольного магнитного поля ($\mathbf{V}_x || \mathbf{k}$) не приводит к линейному сдвигу магнитных подуровней, но вызывает их смешивание, что препятствует оптической накачке на подуровни с $m = \pm 2$. Этот же процесс можно описать на языке поляризационных моментов, который в данном случае означает, что при включении магнитного поля происходит прецессия оси выстраивания атомов, а при совместном действии магнитного поля и поля накачки выстраивание разрушается. Поэтому волна $\mathbf{E}_{||}$ испытывает увеличенное поглощение при включении магнитного поля. Это увеличение, однако, ограничено тем обстоятельством, что часть атомов все равно выпадает из резонансного взаимодействия с полем $\mathbf{E}_{||}$, поскольку атомы перекачиваются на уровень $F_g = 1$, где они с лазерным полем не взаимодействуют. Таким образом, при сканировании поля \mathbf{V}_x в канале 1 балансного фотодетектора наблюдается резонанс ЭИП (рис. 3а).

Из рисунка 6е видно, что в отсутствии магнитного поля волна \mathbf{E}_{\perp} сильно поглощается в среде, поскольку взаимодействует, в том числе, с подуровнями $m = \pm 2$, на которых накоплена значительная часть населенности подуровней. Иными словами, атомы выстроены волной накачки таким образом, что пробная волна интенсивно взаимодействует с ними. При включении магнитного поля, рис. 6f, значительная доля атомов накачивается полем \mathbf{E}_c на уровень $F_g = 1$, и среда просветляется для волны \mathbf{E}_{\perp} . Таким образом, при сканировании магнитного поля около нулевого значения происходит образование резонанса ЭИА в канале 2 балансного фотодетектора (рис. 3б). Отметим, что такая смена знака магнитооптических резонансов (ЭИП \leftrightarrow ЭИА) в зависимости от направления линейной поляризации пробной волны (\mathbf{E}_{\perp} или $\mathbf{E}_{||}$) исследовалась ранее в работах [23, 24].

Из приведенного качественного анализа следует, что в нулевом магнитном поле, когда под действием волны накачки среда подготовлена в состоянии линейного дихроизма, составляющая \mathbf{E}_{\perp} поглощается гораздо сильнее, чем $\mathbf{E}_{||}$. В результате на выходе ячейки линейная поляризация суммарного пробного поля (\mathbf{E}_p) поворачивается в сторону линейной поляризации волны накачки. При относительно сильном магнитном поле, т.е. на крыле магнитооптических резонансов ЭИП и ЭИА (рис. 3а, б), обе составляющие пробной волны $\mathbf{E}_{||}$ и \mathbf{E}_{\perp} поглощаются в среде одинаково. Это значит, что вращения поляризации поля \mathbf{E}_p на выходе из ячейки не произойдет, как это видно из рис. 3с.

Отдельно отметим роль буферного газа и открытости системы уровней в рассматриваемом методе регистрации резонансов МОВ. Помимо влияния буферного газа на ширину резонансов, его наличие приводит к повышению эффективности оптической накачки подуровней $m = \pm 2$, что положительно сказывается на амплитуде наблюдаемых резонансов ЭИА. Поэтому, в случае с ^{87}Rb , давление буферного газа не должно быть выше 15–20 торр (в зависимости от состава буферного газа), чтобы уровень $F_e = 2$ существенно не возбуждался полем накачки. Иными словами, в нашем случае важно, чтобы сверхтонкие компоненты возбужденного уровня спектрально разрешались (см. рис. 2). Влияние соседних возбужденных уровней, как $F_e = 2$ в нашем случае, на резонансы ЭИА и ЭИП исследуется более подробно, например, в работах [25, 26]. Открытость же системы уровней, изображенных на рис. 6, т.е. возможность перекачки атомов на нерезонансный уровень $F_g = 1$, также положительно влияет на амплитуду резонансов ЭИА, что было отмечено ранее в работах [8, 27–29].

4. Заключение. В работе предложена и экспериментально исследована схема для наблюдения резонансов магнитооптического вращения поляризации пробной волны в присутствии волны накачки. В ячейке с парами ^{87}Rb и буферным газом зарегистрирован большой угол вращения (≈ 390 мрад) на относительно малой длине среды (20 мм). Полная ширина резонанса при этом составила ≈ 300 нТл. Проведенный качественный теоретический анализ объясняет наблюдаемый эффект сильного вращения поляризации как результат линейного дихроизма, индуцированного в среде волной накачки.

Исходя из параметров наблюдавшихся резонансов, мы можем сделать вывод, что предложенная схема имеет хорошие перспективы для приложений в квантовой магнитометрии. Для определения чувствительности измерений необходимо исследовать

вопрос шумов сигнала в нашем эксперименте, что является отдельной задачей, выходящей за рамки настоящей статьи. Вместе с тем, предельно достижимую вариационную чувствительность для случая фотонного дробового шума можно оценить из простой формулы: $\delta B \approx \Delta/\text{SNR}$. Здесь SNR – отношение “Сигнал/Шум” в полосе 1 Гц, которое в рассматриваемом пределе есть просто \sqrt{N} , где N – число фотонов в пробной волне за 1 с. Из данных экспериментов, в частности, $\Delta_{\min} \approx 120$ нТл, $P_p = \pi d^2 I_p / 4 \approx 40$ мкВт, находим: $\delta B \approx 10$ фТл/ $\sqrt{\text{Гц}}$.

Отметим особенности предложенной схемы наблюдения резонансов МОВ, которые отличают ее от ряда других известных схем. В частности, обычно для наблюдения больших углов вращения используется либо достаточно протяженная среда (≈ 50 – 100 мм), как, например, в работах [7, 13], либо повышенная температура паров (≈ 150 – 200 °С) для достижения высокой концентрации рабочих атомов [17, 10]. В нашей схеме большие углы вращения при ширине резонанса порядка 100 нТл происходили на длине ячейки, равной 20 мм, и при температуре паров рубидия $\lesssim 80$ °С. Таким образом, предложенная схема может использоваться для создания компактных высокочувствительных сенсоров магнитного поля с пониженным тепловыделением. Кроме того, в нашей схеме не используется СВЧ или радиочастотное поле, как в ряде других типов магнитометров (см., например, обзор [30]). Это облегчает задачу, связанную с устранением взаимного влияния нескольких близкорасположенных сенсоров. Наконец, поскольку в наших экспериментах не используется режим подавленной спин-обменной релаксации [9], который накладывает ограничение на величину магнитного поля ($\lesssim 50$ нТл), то динамический диапазон сенсора, в нашем случае определяемый шириной резонанса МОВ, может быть существенно выше (≈ 0.5 – 1 мкТл).

Исследования выполнены при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 20-52-18004, # 20-02-00075). Работа А. Н. Гончарова по созданию лазерной системы была поддержана Министерством науки и высшего образования РФ (тема # АААА-А19-119102890006-5).

1. Н. Fujiwara, *Spectroscopic Ellipsometry. Principles and Applications*, John Wiley & Sons Ltd., Chichester (2003).
2. Е. В. Alexandrov, Phys. Scr. **2003**, 27 (2003).
3. *Optical Magnetometry*, ed. by D. Budker and D. F. Jackson Kimball, Cambridge University Press, N.Y. (2013).

4. D. Budker, W. Gawlik, D. F. Kimball, S. M. Rochester, V. V. Yashchuk, and A. Weis, Rev. Mod. Phys. **74**, 1153 (2002).
5. M. Auzinsh, D. Budker, and S. M. Rochester, *Optically Polarized Atoms*, Oxford University Press Inc., N.Y. (2010).
6. H. B. Dang, A. C. Maloof, and M. V. Romalis, Appl. Phys. Lett. **97**, 151110 (2010).
7. D. Budker, V. Yashchuk, and M. Zolotarev, Phys. Rev. Lett. **81**, 5788 (1998).
8. D. V. Brazhnikov, V. I. Vishnyakov, A. N. Goncharov, E. Alipieva, C. Andreeva, and E. Taskova, Phys. Rev. A **106**, 013113 (2022).
9. J. C. Allred, R. N. Lyman, T. W. Kornack, and M. V. Romalis, Phys. Rev. A **89**, 130801 (2002).
10. V. Shah and M. V. Romalis, Phys. Rev. A **80**, 013416 (2009).
11. M. V. Petrenko, A. S. Pazgalev, and A. K. Vershovskii, Phys. Rev. Appl. **15**, 064072 (2021).
12. V. M. Entin, I. I. Ryabtsev, A. E. Boguslavsky, and Yu. V. Brzhazovsky, Opt. Commun. **207**, 201 (2002).
13. C. J. Zhu, J. Guan, F. Zhou, E. Y. Zhu, and Y. Li, OSA Continuum **4**, 2527 (2021).
14. O. Alem, T. H. Sander, R. Mhaskar, J. LeBlanc, H. Eswaran, U. Steinhoff, Y. Okada, J. Kitching, L. Trahms, and S. Knappe, Phys. Med. Biol. **60**, 4797 (2015).
15. T. M. Tierney, N. Holmes, S. Mellor, J. D. López, G. Roberts, R. M. Hill, E. Boto, J. Leggett, V. Shah, M. J. Brookes, R. Bowtell, and G. R. Barnes, NeuroImage **199**, 598 (2019).
16. V. Acosta, M. P. Ledbetter, S. M. Rochester, D. Budker, D. F. Jackson Kimball, D. C. Hovde, W. Gawlik, S. Pustelny, J. Zachorowski, and V. V. Yashchuk, Phys. Rev. A **73**, 053404 (2006).
17. S. Li, P. Vachaspati, D. Sheng, N. Dural, and M. V. Romalis, Phys. Rev. A **84**, 061403(R) (2011).
18. F. J. Duarte, *Narrow-Linewidth Laser Oscillators and Intracavity Dispersion*, in: *Tunable Lasers Handbook*, ed. by F. J. Duarte, Academic Press Inc., London (1995).
19. M. D. Rotondaro and G. P. Perram, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **57**, 497 (1997).
20. F. A. Franz, Phys. Rev. **139**, A603 (1965).
21. W. Happer, Rev. Mod. Phys. **44**, 169 (1972).
22. J. Vanier and C. Audoin, *The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards*, Adam Hilger, Bristol and Philadelphia (1989).
23. Д. В. Бражников, А. В. Тайченачев, А. М. Тумайкин, В. И. Юдин, И. И. Рябцев, В. М. Энтин, Письма в ЖЭТФ **91**, 694 (2010) [D. V. Brazhnikov, A. V. Taichenachev, A. M. Tumaikin, V. I. Yudin, I. I. Ryabtsev, and V. M. Entin, JETP Lett. **91**, 625 (2010)].

24. D. V. Brazhnikov, A. V. Taichenachev, and V. I. Yudin, *Eur. Phys. J. D* **63**, 315 (2011).
25. G. Alzetta, S. Cartaleva, Y. Dancheva, Ch. Andreeva, S. Gozzini, L. Botti, and A. Rossi, *J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt.* **3**, 181 (2001).
26. Z. A. S. Jadoon, H. R. Noh, and J. T. Kim, *Sci. Rep.* **12**, 145 (2022).
27. D. V. Brazhnikov, A. V. Taichenachev, A. M. Tumaikin, and V. I. Yudin, *Laser Phys. Lett.* **11**, 125702 (2014).
28. D. V. Brazhnikov, S. M. Ignatovich, V. I. Vishnyakov, M. N. Skvortsov, Ch. Andreeva, V. M. Entin, and I. I. Ryabtsev, *Laser Phys. Lett.* **15**, 025701 (2018).
29. D. V. Brazhnikov, S. M. Ignatovich, A. S. Novokreshchenov, and M. N. Skvortsov, *J. Phys. B: At. Mol. Opt.* **52**, 215002 (2019).
30. Е. Б. Александров, А. К. Вершовский, *УФН* **179**, 605 (2009) [E. B. Aleksandrov and A. K. Vershovskii, *Phys. Usp.* **52**, 573 (2009)].

Влияние движения атомов на характер субизлучения холодных и разреженных ансамблей, возбуждаемых резонансным импульсным излучением

И. М. Соколов¹⁾

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

Институт аналитического приборостроения РАН, 190103 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 6 марта 2023 г.

После переработки 9 марта 2023 г.

Принята к публикации 10 марта 2023 г.

Проанализирована динамика флуоресценции разреженных атомных ансамблей, возбуждаемой резонансным импульсным излучением. Обнаружено, что для ансамблей, охлажденных до субдоплеровских температур, на определенных временных интервалах движение атомов приводит не к ослаблению, а к заметному усилению эффекта субизлучения. Показано также, что возможно немонотонное изменение скорости спонтанного распада с течением времени. Обнаруженные особенности объяснены тем, что с течением времени основным фактором, определяющим характер медленного распада атомного возбуждения, становится динамика субизлучательных двухатомных квантовых состояний, формируемых в результате резонансного диполь-дипольного межатомного взаимодействия.

DOI: 10.31857/S1234567823070066, EDN: jqmmei

Основной целью настоящей работы является анализ влияния движения атомов в атомных ансамблях, охлажденных до субдоплеровских температур, на их радиационные свойства, в частности, на особенности процесса субизлучения. Традиционно считается, что, если характерные доплеровские сдвиги частоты меньше естественной ширины атомных переходов, то влияние движения несущественно и им можно пренебречь. В данной работе мы покажем, что это не всегда так. И основной причиной, усиливающей роль движения атомов, является многократное рассеяние света и связанные с этим коллективные многоатомные эффекты.

Эти эффекты обусловлены, во-первых, большими резонансными сечениями рассеяния света отдельными атомами и, следовательно, большой оптической толщиной ансамблей даже при низкой концентрации атомов. Второй причиной является случайная пространственная неупорядоченность, при которой возможно образование атомных кластеров, или квази-молекул, состоящих из нескольких атомов, случайно расположенных на расстояниях порядка длины волны резонансного излучения друг от друга. Диполь-дипольное межатомное взаимодействие и многократное рекуррентное перерассеяние света внутри кластера вызывают формирование коллективных суб-

и суперизлучательных квантовых состояний, очень чувствительных даже к малым и медленным смещениям атомов.

Анализ динамики флуоресценции атомных ансамблей, возбуждаемых импульсным излучением, мы проведем, ориентируясь на типичную постановку эксперимента по наблюдению эффекта субизлучения (см., например, [12]). В такой постановке на первом этапе в специальной ловушке формируется атомное облако, охлажденное до субдоплеровских температур. Затем поля ловушки отключаются, и атомы начинают разлетаться. На этом этапе включается источник слабого импульсного излучения, вызывающего возбуждение атомов. Вторичное излучение облака фиксируется одним или несколькими фотодетекторами. В силу низкой начальной температуры атомы разлетаются медленно, и за характерное время послесвечения концентрация в центральной части облака практически не изменяется.

При теоретическом описании субизлучения мы будем использовать метод связанных осцилляторов. Впервые он был предложен в работе [1]. К настоящему времени разработано несколько вариантов этого метода, широко применяемых для описания коллективных эффектов, таких как суб- и суперизлучение, а также слабой и сильной локализации света [2–17].

Мы будем использовать вариант, предложенный в работе [17]. Он базируется на решении нестациона-

¹⁾e-mail: sokolov_im@spbstu.ru

нарного уравнения Шредингера для волновой функции ψ , описывающей состояние замкнутой системы, состоящей из всех атомов и электромагнитного излучения, включая вакуумный резервуар. Функцию ψ ищем в виде разложения по собственным функциям ψ_l оператора Гамильтона невзаимодействующих атомов и света $\psi = \sum_l b_l \psi_l$. Учитывая слабость возбуждения и ограничиваясь возможными состояниями атомно-полевой подсистемы, содержащими не более одного фотона, для амплитуд b_e однократно возбужденных атомных состояний $\psi_e = |g \cdots e \cdots g\rangle$ имеем следующую систему уравнений:

$$\frac{\partial b_e}{\partial t} = \left(i\delta_e - \frac{\gamma}{2} \right) b_e - \frac{i\Omega_e}{2} + \frac{i\gamma}{2} \sum_{e' \neq e} V_{ee'} b_{e'}. \quad (1)$$

Здесь индекс e несет информацию как о том, какой из атомов ансамбля возбужден в состоянии ψ_e , так и о том, какой конкретный зеемановский подуровень при этом заселен.

Первое слагаемое в правой части уравнений (1) отвечает за свободную эволюцию независимых атомных осцилляторов. Второе слагаемое описывает влияние внешнего возбуждающего лазерного поля. Частота Раби этого поля в точке расположения атома e равна Ω_e ; δ_e – отстройка частоты лазера от частоты атомного перехода. Последнее слагаемое учитывает диполь-дипольное взаимодействие атомов. Оно обуславливает все коллективные многоатомные эффекты, имеющие место в рассматриваемом ансамбле.

Система уравнений (1) описывает коллективную динамику всех атомов системы, поэтому для исследования даже мезоскопических систем ее обычно упрощают, используя простые “правдоподобные” модели, а также игнорируют ряд обстоятельств, кажущихся, на первый взгляд, несущественными. Так очень часто используется модель скалярного поля, когда поляризационные свойства света не учитываются, как и зеемановская, и сверхтонкая структуры атомных состояний. Популярной также является модель непрерывной среды.

В этой работе мы не используем таких приближений и рассматриваем ансамбль, состоящий из N одинаковых атомов с невырожденным основным состоянием с угловым моментом $J_g = 0$. Возбужденное состояние – $J_e = 1$. Времена жизни всех трех его зеемановских подуровней ($m \equiv J_{e_z} = -1, 0, 1$) одинаковы и равны $1/\gamma$. Частота перехода $J_g \leftrightarrow J_e$ равна ω_0 . Векторные свойства электромагнитного поля и его поляризацию мы также учитываем явно. В этом случае матрица $V_{ee'}$, входящая в уравнения (1), имеет следующий вид:

$$V_{ee'} = -\frac{2}{\gamma} \sum_{\mu, \nu} \mathbf{d}_{eg}^{\mu} \mathbf{d}_{ge'}^{\nu} \frac{e^{ik_0 r_{ij}}}{\hbar r_{ij}^3} \left\{ \delta_{\mu\nu} [1 - ik_0 r_{ij} - (k_0 r_{ij})^2] - \frac{\mathbf{r}_{ij}^{\mu} \mathbf{r}_{ij}^{\nu}}{r_{ij}^2} [3 - 3ik_0 r_{ij} - (k_0 r_{ij})^2] \right\}. \quad (2)$$

Здесь мы предположили, что в состояниях e и e' возбуждены соответственно атомы i и j ; \mathbf{d}_{eg} – матричный элемент оператора дипольного момента для перехода $g \rightarrow e$, $k_0 = \omega_0/c$ – волновое число, соответствующее резонансной частоте этого перехода, c – скорость света в вакууме, $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$, $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$. Индексы μ и ν обозначают проекции на оси выбранной системы координат $\mu, \nu = x, y, z$.

Еще одним приближением, используемом в подавляющем большинстве работ при исследовании коллективных эффектов, является приближение неподвижных рассеивателей. Смещение атомов, обусловленное низкой, но конечной температурой, частично учитывают тем, что система (1) решается многократно для различных случайных пространственных конфигураций неподвижных атомов. Для каждого решения рассчитываются наблюдаемые величины, которые затем усредняются. В случае относительно больших скоростей, когда доплеровские сдвиги оказываются больше или соизмеримы с естественной шириной возбужденного состояния, взаимную нерезонантность атомов и связанное с этим ослабление диполь-дипольного взаимодействия учитывают введением для неподвижных атомов случайного сдвига уровней, разного для разных атомов [18, 19].

В настоящей работе мы будем считать атомы движущимися. Смещение атомов будем задавать явной временной зависимостью $\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_{i0} + \mathbf{v}_i t$, которая приближенно описывает разлет атомов после выключения лазера ловушки. Распределение атомов в некоторый начальный момент времени считаем случайным, но в среднем пространственно однородным. Скорости атомов в этот момент времени также считаем случайными величинами. Их проекции v_i предполагаем распределенными по нормальному закону

$$f(v_i) = 1/\sqrt{2\pi v_0^2} \exp(-v_i^2/2v_0^2). \quad (3)$$

Величина v_0 и волновое число k_0 определяют доплеровское уширение линии $\Delta_D = 2\sqrt{2 \ln 2} k_0 v_0$. Будем рассматривать типичные для дипольных ловушек условия, когда температуры атомов составляют величину порядка 30–100 мК. При таких температурах импульс подавляющего большинства атомов в несколько десятков раз больше импульса фотона, что позволяет нам рассматривать движение атомов

классическим и не учитывать изменение скорости, обусловленное отдачей.

Будем далее для простоты считать, что атомы движутся внутри объема V кубической формы. Для того, чтобы не учитывать уход атомов из этого объема и связанное с ним изменение концентрации, будем полагать, что этот объем окружен поверхностями, на которых атомы испытывают упругие столкновения. Систему (1) при сделанных предположениях мы решаем численно.

Подобный подход, учитывающий непрерывное смещение атомов, был ранее применен в работе [20]. Более детальное исследование было проведено в статье [21]. Ее основным результатом стало утверждение, что увеличение температуры приводит лишь к относительно небольшому ослаблению эффекта субизлучения, т.е. что субизлучательные состояния достаточно устойчивы к тепловой декогеренции при концентрациях и температурах, достижимых в магнитооптических ловушках (МОЛ). Аналогичная устойчивость предсказывалась вплоть до температур порядка милikelьвина. Однако особенностью данной работы было исследование оптически очень плотных атомных облаков, возбуждаемых нерезонансным излучением. В этом случае основным механизмом субизлучения, как было показано позднее в [22], является пленение излучения, обусловленное его диффузией. Кроме этого, в работах [20] и [21] теоретический анализ проводился в рамках скалярного приближения, которое не вполне корректно описывает субизлучение даже для разреженных атомных ансамблей (см., например, [22]).

В этой работе мы покажем, что при резонансном возбуждении векторная модель предсказывает несколько иные результаты, чем в [21]. Более того, отличия могут носить не только количественный, но и качественный характер. Мы покажем, что движение может приводить не к разрушению, а, наоборот, к формированию более долгоживущих состояний.

Конкретные расчеты мы проведем для следующих параметров. Плотность атомов n во всех расчетах будет одинакова, $nk_0^{-3} = 0.005$. Возбуждение предполагается прямоугольным импульсом, длительность которого $\gamma T = 50$. Излучение считается циркулярно поляризованным и резонансным, его несущая частота совпадает с частотой перехода в свободном атоме.

В качестве основной величины, характеризующей эффект субизлучения, мы будем использовать текущее (мгновенное) время задержки излучения, которое определяется как величина, обратная мгновенной скорости затухания флуоресценции $\tau(t) =$

$= 1/\Gamma(t)$, где $\Gamma(t) = d\ln(I(t))/dt$, а $I(t)$ – полная интенсивность вторичного излучения атомного ансамбля. Зависимость $\tau(t)$ после окончания импульса возбуждения при разных температурах ансамбля, содержащего $N = 1080$ атомов, показана на рис. 1.

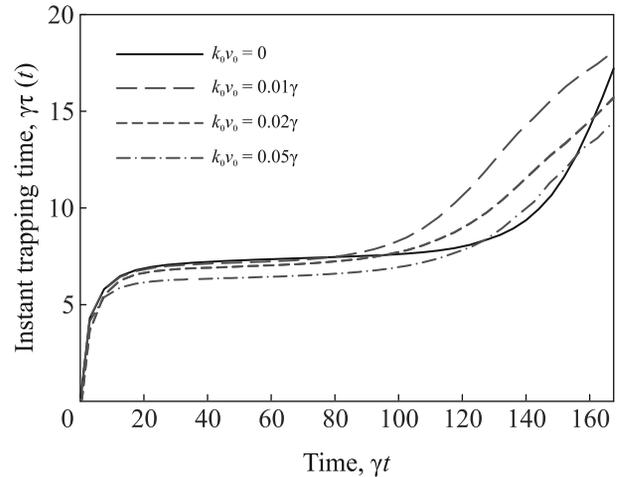


Рис. 1. (Цветной онлайн) Динамика мгновенного времени задержки флуоресценции при различных температурах (различных $k_0 v_0$). Число атомов $N = 1080$

Как и для неподвижных атомов [22, 23], можно выделить несколько характерных этапов флуоресценции. Вначале, на временах $t < 1/\gamma$, после окончания импульса возбуждения наблюдается эффект суперизлучения. Скорость распада $\Gamma(t)$ больше естественной ширины γ , а $\gamma\tau(t) < 1$. Затем наступает этап пленения излучения, который можно разделить на две части. Вначале скорость распада уменьшается, а время пленения нарастает. Здесь диффузия излучения описывается многомодовой динамикой. Затем наступает режим одномодовой диффузии, когда распад описывается одноэкспоненциальным законом. Хорошо видны прямолинейные практически горизонтальные участки на кривых $\tau(t)$.

Наконец, после одноэкспоненциального этапа наблюдается заметное уменьшение скорости распада и нарастание времени пленения $\tau(t)$. Здесь мы имеем дело с излучением кластеров, случайно образующихся из близко расположенных атомов. У этих кластеров есть долгоживущие состояния, которые ответственны за “классический” процесс субизлучения, предсказанный Дике [24].

Результаты, показанные на рис. 1, позволяют сделать несколько важных выводов о роли движения. Часть этих выводов вполне ожидаема. Так, в рассматриваемом диапазоне температур движение сравнительно слабо влияет на скорость суперизлучения

и время пленения излучения на этапе диффузии, что, по нашему мнению, и наблюдалось в эксперименте [21]. Небольшое увеличение скорости связано с незначительным изменением длины свободного пробега, обусловленным уменьшением сечения рассеяния из-за доплеровского уширения, роль которого мала при субдоплеровских температурах.

Наиболее неожиданным является заметное усиление роли атомных кластеров, которое сокращает длительность этапа пленения, а также приводит к существенному уменьшению скорости распада атомного возбуждения на определенных временных интервалах. Во всем рассмотренном диапазоне температур, приближенно соответствующих параметрам магнитооптических ловушек, имеется область времен, когда пунктирные линии идут выше сплошной, соответствующей модели неподвижных атомов, что говорит об ограниченной применимости этой модели для описания коллективных эффектов в МОЛ.

Роль атомных кластеров наиболее ярко проявляется, если ее не надо выявлять на фоне диффузионного пленения, т.е. для атомных ансамблей с малой оптической толщиной. Это хорошо демонстрируется рис. 2, на котором приведены зависимости $\tau = \tau(t)$ для фиксированной температуры, соответствующей $k_0 v_0 = 0.02\gamma$, и фиксированной концентрации атомов $nk_0^{-3} = 0.005$, но для ансамблей разного размера.

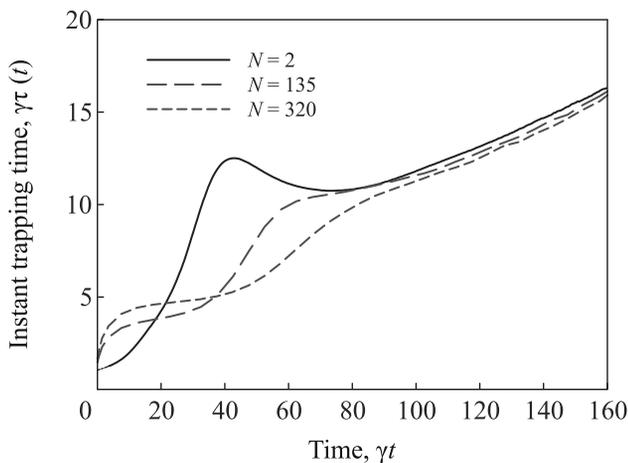


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость $\tau = \tau(t)$ для ансамблей разного размера. Температура соответствует $k_0 v_0 = 0.02\gamma$. Концентрация атомов равна $nk_0^{-3} = 0.005$

При уменьшении размеров системы область времен, на которых роль пар доминирует, увеличивается. Для малых систем наблюдается еще один качественный эффект – немонотонное изменение со временем скорости затухания флуоресценции, что никогда не предсказывалось моделью неподвижных ато-

мов. При этом на больших временах кривые $\tau = \tau(t)$ для разных размеров ансамбля имеют одну асимптоту, причем различия в скоростях распада находятся в пределах точности вычислений. Здесь зависимость характера субизлучения от размеров системы практически исчезает, поскольку характерное время распада долгоживущих возбужденных состояний атомных кластеров зависит от среднего расстояния атомов в них и не зависит от размеров ансамбля.

Все описанные выше особенности субизлучения можно понять, если рассмотреть динамику возбужденного состояния конкретной пары атомов при изменении расстояния между ними. Известно, что у системы двух рассматриваемых атомов есть шесть однократно возбужденных коллективных состояний. Половина состояний суб-, а половина суперизлучательные. Рассмотрим, как с течением времени изменяется заселенность возбужденного состояния системы при сближении атомов, если это возбуждение произошло при межатомном расстоянии r_0 .

На рисунке 3 показана эволюция рассматриваемой квазимолекулы для двух случаев. Кривая 1 соответствует возбуждению самого долгоживущего при r_0 состояния, 2 – самого короткоживущего. Для сравнения приведена кривая 3, которая имела бы место в отсутствие коллективных эффектов, когда возбужденные состояния атомов распадаются со скоростью γ .

Обращает на себя внимание, что для рассматриваемого случая изначально суперизлучательное состояние (кривая 2) при сближении становится долгоживущим. При малых межатомных расстояниях населенность возбужденного состояния уменьшается очень медленно. Система практически перестает излучать. Для начального субизлучательного состояния картина обратная. Оно очень быстро распадается при сближении атомов.

В реальном многоатомном облаке лазерное излучение возбуждает не одно, а суперпозицию всех возможных состояний. При этом те из них, которые при сближении становятся субизлучательными и определяют характер субизлучения, поскольку остальные распадаются быстро и их заселенность оказывается пренебрежимо мала (см. рис. 3).

В заключение заметим, что проведенные в работе расчеты показали, что модель неподвижных атомов может оказаться недостаточно хорошей при описании коллективных эффектов. Она может приводить к качественным ошибкам даже при субдоплеровских температурах. Величина ошибок нарастает при уменьшении размеров системы, когда основным механизмом становится формирование коллективных

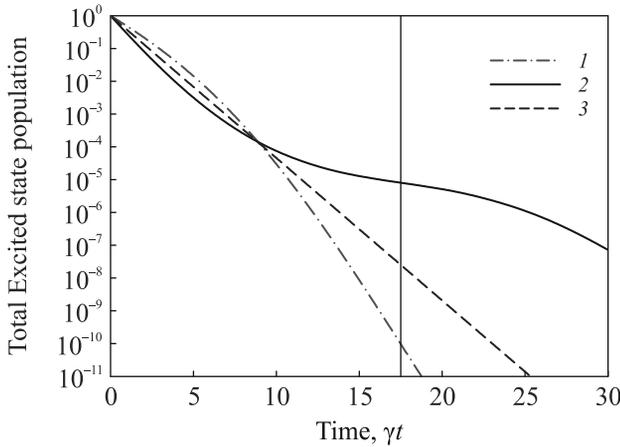


Рис. 3. (Цветной онлайн) Эволюция возбужденных состояний двухатомной квазимолекулы при изменении расстояния между атомами. Относительная скорость атомов $k_0 v_{\text{rel}} = 0.2\gamma$. Расстояние наименьшего сближения $-r_m = k_0^{-1}$. Кривая 1 соответствует возбуждению самого долгоживущего при $r_0 = 3.5k_0^{-1}$ состояния; 2 – самого короткоживущего. Кривая 3 – спонтанный распад со скоростью γ . Вертикальная линия соответствует моменту наибольшего сближения атомов

многочастотных кластерных состояний, формируемых в результате резонансного диполь-дипольного межатомного взаимодействия.

Проведение исследований было поддержано грантом Фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

Результаты работы были получены с использованием вычислительных ресурсов суперкомпьютерного центра Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого (<http://www.spbstu.ru>).

1. L. L. Foldy, Phys. Rev. **67**, 107 (1945).
2. M. Lax, Rev. Mod. Phys. **23**, 287 (1951).
3. J. Javanainen, J. Ruostekoski, B. Vestergaard, and M. R. Francis, Phys. Rev. A **59**, 649 (1999).

4. M. Rusek, J. Mostowski, and A. Orłowski, Phys. Rev. A **61**, 022704 (2000).
5. F. A. Pinheiro, M. Rusek, A. Orłowski, and B. A. van Tiggelen, Phys. Rev. E **69**, 026605 (2004).
6. H. Fu and P. R. Berman, Phys. Rev. A **72**, 022104 (2005).
7. A. A. Svidzinsky, J. Chang, and M. O. Scully, Phys. Rev. A **81**, 053821 (2010).
8. Д. В. Кузнецов, Вл. К. Рерих, М. Г. Гладуш, ЖЭТФ **140**, 742 (2011).
9. T. Bienaimé, R. Bachelard, P. W. Courteille, N. Piovella, and R. Kaiser, Fortschr. Phys. **61**, 377 (2013).
10. S. E. Skipetrov and I. M. Sokolov, Phys. Rev. Lett. **112**, 023905 (2014).
11. L. Bellando, A. Gero, E. Akkermans, and R. Kaiser, Phys. Rev. A **90**, 063822 (2014).
12. W. Guerin, M. O. Araújo, and R. Kaiser, Phys. Rev. Lett. **116**, 083601 (2016).
13. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, Phys. Rev. A **94**, 022511 (2016).
14. W. Guerin, M. T. Rouabah, and R. Kaiser, J. Mod. Opt. **64**, 895 (2017).
15. A. S. Kuraptsev, I. Sokolov, and M. D. Havey, Phys. Rev. A **96**, 023830 (2017).
16. S. E. Skipetrov and I. M. Sokolov, Phys. Rev. B **99**, 134201 (2019).
17. И. М. Соколов, Д. В. Куприянов, М. Д. Хэви, ЖЭТФ **139**, 288 (2011).
18. J. Javanainen, J. Ruostekoski, Y. Li, and S.-M. Yoo, Phys. Rev. Lett. **112**, 113603 (2014).
19. S. D. Jenkins, J. Ruostekoski, S. Jennewein, R. Bourgain, J. Pellegrino, Y. R. P. Sortais, and A. Browaeys, Phys. Rev. A **94**, 023842 (2016).
20. T. Bienaime, N. Piovella, and R. Kaiser, Phys. Rev. Lett. **108**, 123602 (2012).
21. P. Weiss, A. Cipris, M. O. Araújo, R. Kaiser, and W. Guerin, Phys. Rev. A **100**, 033833 (2019).
22. Y. A. Fofanov, I. M. Sokolov, R. Kaiser, and W. Guerin, Phys. Rev. A **1104**, 023705 (2021).
23. И. М. Соколов ЖЭТФ **159**, 68 (2021).
24. R. H. Dicke. Phys. Rev. **93**, 99 (1954).

Температурная вращающаяся волна в тонком слое воды

И. В. Керкелица⁺, Л. М. Мартюшев^{+*1)}

⁺Уральский федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия

^{*}Институт промышленной экологии Уральского отделения РАН, 620219 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 3 февраля 2023 г.

После переработки 9 марта 2023 г.

Принята к публикации 9 марта 2023 г.

Конвективное движение воды в небольшом цилиндрическом контейнере, дно и боковые стенки которого нагреты и поддерживаются при постоянной температуре, а с верхней поверхности происходит теплоотвод, численно исследуется. На границе вода–воздух задается условие прилипания жидкости, моделирующее влияние тонкой адсорбционной пленки. Для этой системы впервые обнаружена температурная волна, вращающаяся параллельно поверхности с угловой скоростью 0.06 ± 0.02 рад/с. Эта волна является высокомодовой и, имея частоту порядка 0.1 Гц, наблюдается в очень небольшом диапазоне размеров контейнера и температуры.

DOI: 10.31857/S1234567823070078, EDN: jtstoq

1. Введение. В тонких слоях жидкости с открытой верхней поверхностью при равномерном подогреве снизу наблюдаются различные конвективные структуры, наиболее известными и исследованными из которых являются ячейки и роллы [1–3]. В случае когда, нагрев снизу не равномерен, а на поверхности возможно интенсивное испарение, движение жидкости и, как следствие, структуры, может быть значительно разнообразнее [4–11]. Очевидна научная и технологическая важность подобных процессов, особенно если в качестве жидкости выступает вода. Несмотря на продолжительные исследования подобных процессов, новая структура, так называемая древовидная, была недавно обнаружена экспериментально [12, 13]. Исследование происходило в небольшом контейнере (диаметр контейнера около 90 мм, толщина слоя воды 6–15 мм) с температурой дна и стенок 28–47 °С. Свободная поверхность ячейки граничила с воздухом при комнатных условиях. Попытки математического моделирования подобных структур с использованием классической системы уравнений тепломассопереноса, дополненной граничными условиями, учитывающими термокапиллярную конвекцию, обнаружили отсутствие не только количественного, но и качественного соответствия с результатами эксперимента [13]. Анализ результатов расчетов [13–15], а также данные работ [7, 16, 17], позволили высказать гипотезу, что обнаруженное несоответствие связано с наличием на поверхности тонкой адсорбционной примесной пленки, присутствующей

как на природной, так и дистиллированной воде. Подобная пленка изменяет движение жидкости вблизи поверхности, а, следовательно, оказывает влияние и на весь теплообмен рассматриваемой системы.

В работах [13–17] предложено моделировать данную пленку с помощью простейшего граничного условия – условия прилипания на поверхности. Однако, как показал расчет для исследованной геометрии, использование данного граничного условия не привело к получению древовидных структур – структуры оказывались в основном ячеисто-подобными [14, 15]. Вместе с тем в процессе расчетов было обнаружено интересное численное решение: возникновение в горизонтальной плоскости воды изменения температуры в виде волны, вращающейся с постоянной угловой скоростью относительно центра контейнера. Важно отметить, что температура стенок и дна была задана одинаковой и постоянной, а на верхней поверхности осуществлялся теплообмен с внешней средой постоянной температуры и влажности. Подобное решение классической задачи тепломассопереноса при рассмотренных граничных условиях ранее в литературе не описывалось. Действительно, спиралевидные вращающиеся волны удавалось наблюдать при учете либо термокапиллярного переноса, либо свободного скольжения на верхней границе, однако при этом задавались существенно более изощренные граничные условия (контейнер в виде цилиндрического кольца определенных размеров с различной температурой боковых стенок либо цилиндрический контейнер со специальным образом

¹⁾e-mail: leonidmartyushev@gmail.com

неравномерно нагреваемым дном (см. [10] и ссылки в этой работе). Таким образом, исследование обнаруженного необычного решения [14, 15] важно в связи с тем, что граничное условие, при котором наблюдается вращающаяся волна существенно более простое и распространенное для процессов, наблюдаемых в природе. Подробное численное исследование данного модельного решения явилось целью настоящей работы.

2. Математическая модель и особенности ее численной реализации. Для описания конвекции в контейнере цилиндрической формы с высотой d и радиусом основания r используется стандартная математическая модель тепломассопереноса несжимаемой вязкой жидкости в приближении Буссинеска [18, 19]:

$$\nabla \mathbf{u} = 0, \quad (1)$$

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \rho \mathbf{u} \nabla \mathbf{u} = -\nabla p + \mu \nabla \nabla \boldsymbol{\tau} + \mathbf{g} \rho (1 - \beta(T - T_0)), \quad (2)$$

$$\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{u} \nabla) T \right) = \nabla (\lambda \nabla T), \quad (3)$$

где \mathbf{u} – вектор скорости, p – давление, t – время, λ – коэффициент теплопроводности, C_p – удельная теплоемкость при постоянном давлении, ρ – постоянная справочная плотность жидкости при некоторой температуре T_0 (обычно выбираемой в середине исследуемого температурного диапазона), T – текущая температура, β – температурный коэффициент расширения, μ – динамическая вязкость, $\boldsymbol{\tau}$ – тензор вязких напряжений ($\tau_{ji} = [\partial u_i / \partial x_j + \partial u_j / \partial x_i]$), g – ускорение свободного падения.

На верхней поверхности ячейки задается суммарный тепловой поток Q , включающий потоки за счет конвекции, испарения и излучения [13–15]:

$$Q = h(T_S - T_\infty) + \Delta H_{\text{vap}} \dot{m} + \varepsilon \sigma (T_S^4 - T_\infty^4), \quad (4)$$

где T_∞ и T_S – температура окружающей среды и поверхности, h – коэффициент теплоотдачи от поверхности испарения за счет естественной конвекции воздуха, ΔH_{vap} – энтальпия парообразования воды, \dot{m} – массовый расход, ε – степень черноты, σ – постоянная Стефана–Больцмана. Явные полуэмпирические выражения для h , \dot{m} , используемые в расчете, можно найти в [13, 15]. Уменьшение массы жидкости из-за испарения в модели не рассматривается (оно учитывается лишь при расчете суммарного теплового потока).

На нижней и боковой поверхности контейнера задается постоянная температура T_w . Начальная температура жидкости предполагалась равной T_∞ , а начальная скорость жидкости считалась нулевой.

Условие прилипания (no-slip) задается на всех границах жидкости ($\mathbf{u} = 0$). Выбор условия прилипания на верхней границе является простейшим способом описания наличия пленки на поверхности воды [13–17]. Предполагается, что эта пленка полностью покрывает верхнюю поверхность жидкости и теплоотвод через нее происходит согласно уравнению (4), полуэмпирические коэффициенты в котором учитывают наличие пленки, всегда присутствующей в обычных условиях на поверхности воды. Верхняя поверхность жидкости считается недеформируемой, горизонтальной и плоской (т.е. образующимися искажениями границы, в частности, из-за конвекции жидкости, пренебрегается).

Численное моделирование проводилось в пакете Comsol Multiphysics 6.0, использующем для численного решения метод конечных элементов. Элементы выбраны тетраэдрические. Общее число элементов расчетной сетки находилось в диапазоне от $4.5 \cdot 10^5$ до $9 \cdot 10^5$ в зависимости от толщины и диаметра исследуемого слоя воды. Шаг по времени при расчетах варьировался от 10^{-1} до 10^{-4} с. Такая дискретизация выбиралась исходя из компромисса между точностью вычислений и временных затрат на расчет. Погрешность рассчитанных скоростей и температуры составляла не более 1%.

Расчет модели (1)–(4) происходил в течение 720 с. Это время существенно превышает время, в течение которого тепловой поток и средняя температура на поверхности жидкости стабилизируются (~ 300 – 420 с). Известные справочные теплофизические параметры чистой воды использовались при моделировании жидкости [13]. Для верификации полученных основных результатов расчета модели (1)–(4) дополнительно проводилось тестирование в прикладном пакете программ ANSYS FLUENT, как известно, использующем абсолютно другой метод численного расчета – метод конечных объемов. Результаты тестов совпадали с очень хорошей точностью.

3. Общая морфологическая диаграмма. Область нахождения температурной волны. Результаты расчета структур в зависимости от размера цилиндрического контейнера показаны на рис. 1. Можно выделить три основных типа структур на поверхности контейнера с размерами вблизи значений $d = 0.7$ см и $r = 3$ см.

Первая группа – это роллы (рис. 2). Они занимают левую и нижнюю часть диаграммы (рис. 1). Роллы образуются вертикальными вихрями, в которых жидкость движется от боковых границ контейнера вдоль поверхности, в центре опускается, а затем возвращается обратно вдоль дна. Может наблю-

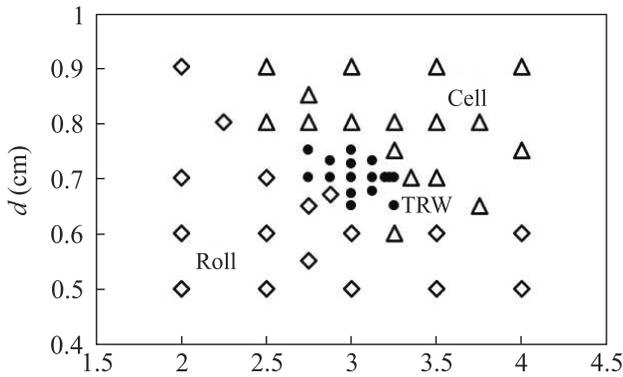


Рис. 1. Морфологическая диаграмма рассчитанных структур. Каждый символ соответствует проведенному расчету. Ролло-подобные структуры обозначены ромбами, ячейко-подобные – треугольниками, волноподобные (температурные вращающиеся волны, TRW) – закрашенными точками. $T_w = 45^\circ\text{C}$, $T_\infty = 25^\circ\text{C}$

даться как один симметричный ролл (рис. 2а), так и несколько (рис. 2б). Данные структуры достаточно стабильны и практически не видоизменяются во времени.

Вторая группа – это ячейки (рис. 3). Они занимают правую и верхнюю часть диаграммы (рис. 1). Здесь конвективное движение воды происходит более сложно: жидкость двигается вблизи поверхности от боковой стенки к центру и начинает опускаться вдоль многочисленных ветвей (стенок), достаточно хаотически расположенных и пересекающихся. Вблизи дна жидкость в основном движется к боковым стенкам. Даже когда система приходит в стационарное состояние по средним теплофизическим характеристикам, ветви, образующие ячейки, могут изменяться по длине и ширине, исчезать и возникать, а также пересекаться, создавая между собой временные конвективные ячейки (это продемонстрировано на рис. 3а, б).

Третья группа – это температурные вращающиеся волны (*temperature rotating wave*, TRW), визуально напоминающие температурный вихрь (рис. 4). Эти структуры занимают очень небольшую область в центре диаграммы (см. рис. 1). Ветви “вихря” могут быть немного загнуты как по ходу горизонтального вращения, так и против. Движение жидкости вблизи поверхности происходит от стенок к центру. В центре, а также вдоль ветвей вихря, холодные слои опускаются ко дну. У дна жидкость двигается от центра контейнера к стенкам (рис. 4, 5а). Волна вращается со средней угловой скоростью $(6 \pm 2) \cdot 10^{-2}$ рад/с, имеет частоту примерно $(7 \pm 2) \cdot 10^{-2}$ Гц (рис. 5б) и волновое число, равное 8 (в редких случаях 6, 7 и 9)

(рис. 4). Связь между угловой частотой и волновым числом является линейной.

“Вращение” температурного поля в горизонтальном направлении является следствием самоорганизации обычных термогравитационных вихрей, благодаря которой в ячейке возникает температурная волна (рис. 5). Наблюдаемое можно считать именно волной, а не вихрем, поскольку вращение температурного поля происходит вдоль поверхности ячейки с конечной скоростью, хотя сама жидкость не перемещается вдоль поверхности в связи с используемым граничным условием. Скорость TRW значительно меньше имеющегося вихревого движения жидкости в объеме ячейке. Действительно, согласно расчетам, в плоскостях, перпендикулярных поверхности жидкости, соответствующие компоненты ротора скорости жидкости имеют значения, распределенные в диапазоне от -2.1 до 2.0 1/с, а для плоскостей параллельной поверхности компоненты ротора находятся в диапазоне от -0.2 до 0.2 1/с (имеются в виду плоскости, отстоящие от поверхности не менее доли миллиметра). Это соответствует локальным угловым скоростям вращающихся вихрей в вертикальной плоскости до 6 рад/с (среднее значение около 2 рад/с), а в горизонтальной до 0.6 рад/с (среднее значение около 0.2 рад/с). Здесь, также очень важно отметить, что приведенные значения угловых скоростей жидкости имеют не только при условиях, соответствующих TRW структурам (рис. 4), но и для роллов (рис. 2) и ячеек (рис. 3). Как следствие, с точки зрения скорости движения жидкости в изучаемом контейнере все структуры, представленные на рис. 1, тождественны.

Температурная вращающаяся волна наблюдается не только вблизи поверхности, но и практически на всю глубину контейнера, хотя с глубиной становится менее выраженной. Стоит отметить, что вращение волны не при всех расчетах устойчиво существует после установления постоянной теплоотдачи с поверхности контейнера: в ряде расчетов (особенно вблизи границы с другими областями, см. рис. 1) наблюдалась смена типа структур на короткие промежутки времени длительности около 20 – 60 с.

Обнаруженная температурная вращающаяся волна является очень необычным явлением для используемых граничных условий. Для более подробного ее исследования были проведены дополнительные расчеты.

4. Параметры, влияющие на возникновение волны.

4.1. *Температура.* Этот параметр является крайне важным. Действительно, если на дне и стенках слоя $T_w = 45^\circ\text{C}$, то вращающаяся волна

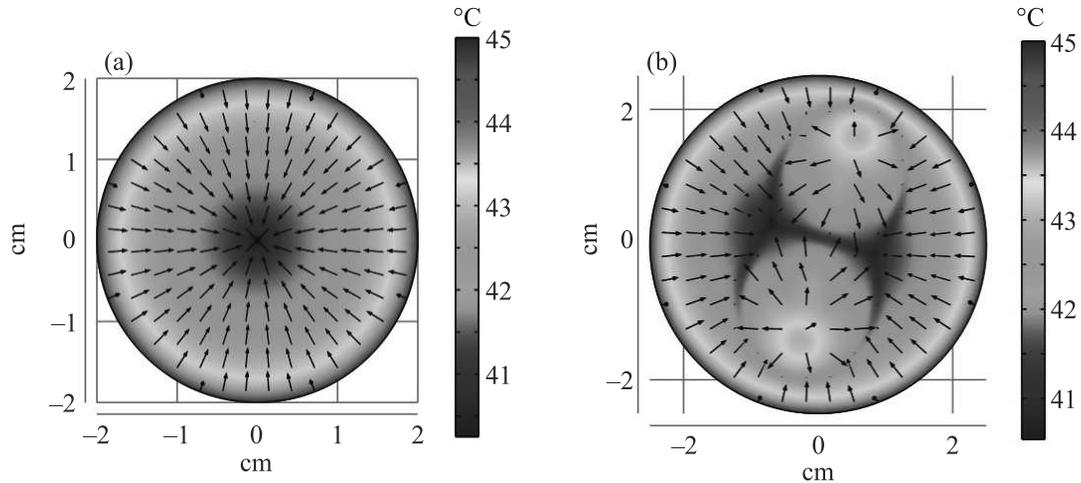


Рис. 2. (Цветной онлайн) Роллы (вид сверху на контейнер с водой). (a) – $r = 2$ см, $d = 0.6$ см; (b) – $r = 2.5$ см, $d = 0.5$ см. Стрелками указано направление движения жидкости на расстоянии 0.1 см от поверхности. $T_w = 45$ °C, $T_\infty = 25$ °C

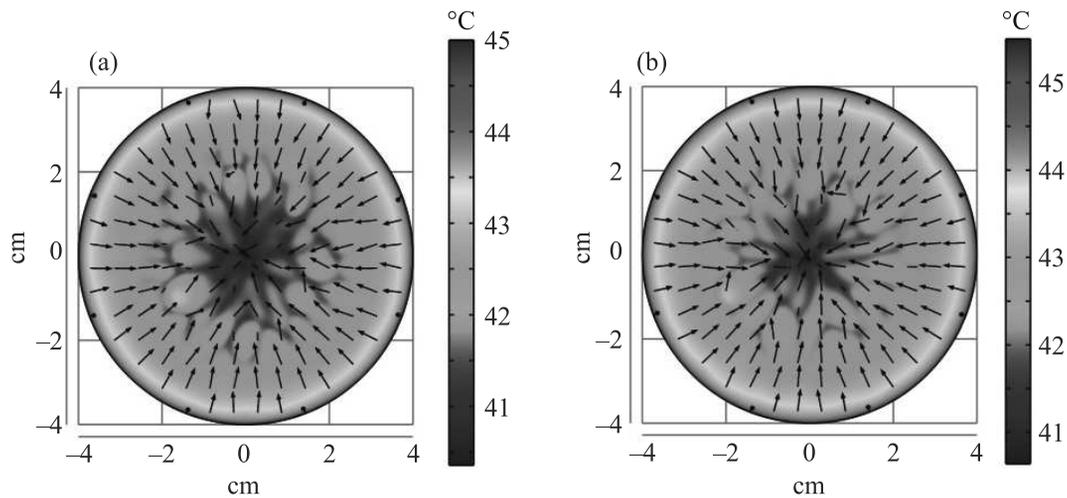


Рис. 3. (Цветной онлайн) Ячейки (вид сверху на контейнер с водой). (a) – Время расчета 700 с; (b) – время расчета 720 с. Стрелками указано направление движения жидкости на расстоянии 0.1 см от поверхности. $r = 4$ см, $d = 0.75$ см, $T_w = 45$ °C, $T_\infty = 25$ °C

наблюдается при размерах контейнера вблизи значений $r = 3$ см, $d = 0.7$ см (рис. 4). Однако, если не меняя контейнер с водой, уменьшать температуру T_w до 40 °C, то волнообразная структура постепенно перестраивается в роллы (рис. 6a, b). Если же увеличить температуру T_w до 50 °C, то уже начинают формироваться ячеистые структуры (рис. 6c, d). Расчеты показывают, что изменение T_w приводит к уменьшению области существования волновых структур, представленной на морфологической диаграмме (рис. 1), вплоть до исчезновения (см. рис. 7). Если температуру стенок не изменять, $T_w = 45$ °C, а изменить температуру окружающей среды T_∞ вблизи $T_\infty = 25$ °C, то это также приводит к уменьшению и небольшому смещению центра области существования волн (рис. 8). Так при $T_\infty = 20$ °C

центр области сместился чуть левее и ниже (сравни рис. 1 и рис. 8a), а для $T_\infty = 30$ °C – чуть правее и ниже (сравни рис. 1 и рис. 8b). Несмотря на столь значительное влияние температуры на область существования волны, скорость ее вращения достоверно при этом не изменяется.

4.2. Влажность. Изменение этого параметра во всей возможной области значений не влияло ни на область, ни на скорость вращения волны.

4.3. Влияние теплоотвода с поверхности. Общий тепловой поток с поверхности жидкости в случае контейнера размеров: $r = 3$ см, $d = 0.7$ см и температур $T_w = 45$ °C, $T_\infty = 25$ °C оказывается равным примерно 900 Вт/м². Этот теплоотвод состоит из потоков энергии благодаря испарению (83 %), конвекции (16 %) и излучению (1 %). Как показал расчет,

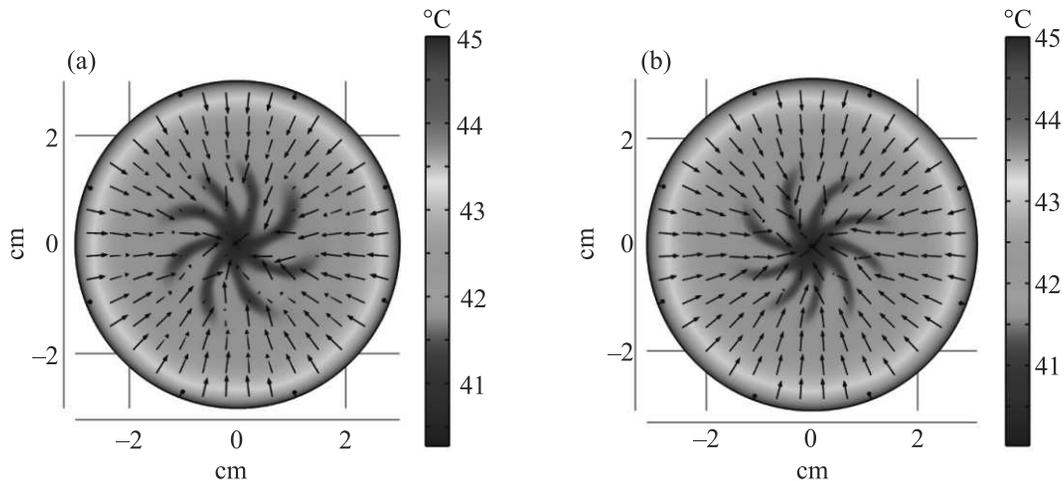


Рис. 4. (Цветной онлайн) Температурные вращающиеся волны (TRW) (вид сверху на контейнер с водой). (a) – $r = 3.0$, $d = 0.7$ см; (b) – $r = 3.0$ см, $d = 0.67$ см. Стрелками указано направление движения на расстоянии 0.1 см от поверхности. $T_w = 45^\circ\text{C}$, $T_\infty = 25^\circ$

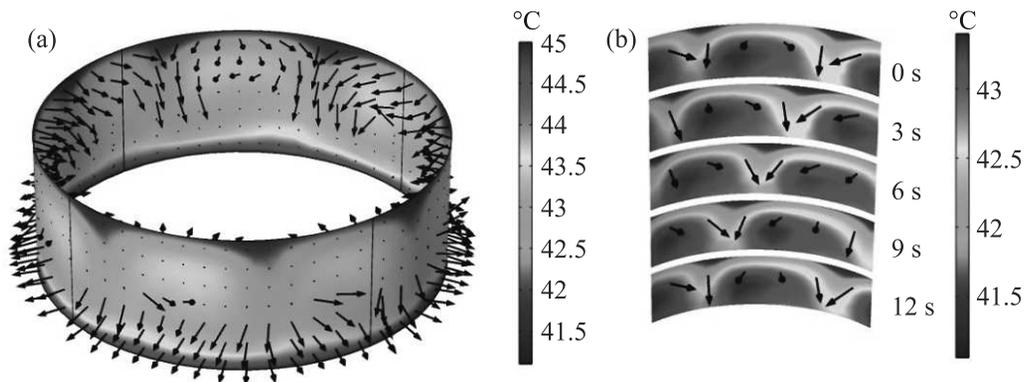


Рис. 5. (Цветной онлайн) Температурные вращающиеся волны (вид в вертикальном сечении). Стрелками указано направление движения жидкости. (a) – Сечение в виде кольца радиусом 1 см; (b) – верхняя часть (высотой 0.25 см) четверти кольца, представленного на (a) в различные интервалы времени. $r = 3$ см, $d = 0.7$ см, $T_w = 45^\circ$, $T_\infty = 25^\circ\text{C}$

если исключить из теплоотвода испарение или конвекцию, то температурная волна исчезает. Исключение потока излучения не оказывает влияние на существование вращающейся волны.

4.4. Наличие неоднородного градиента температуры. Важным условием образования волны, является одновременный нагрев как стенок, так и дна контейнера. Если сохранять нагретым лишь дно, а стенки оставить при температуре окружающей среды (либо наоборот: стенки нагревать, а дно оставлять при температуре окружающей среды), то никаких волн не образуется: температурное распределение достаточно равномерно изменяется от центра к краям контейнера (соответственно, в первом случае в центре температура выше, а во втором случае – ниже).

5. Заключение. В результате численного моделирования нагрева воды в небольшом цилиндрическом контейнере обнаружено, что в достаточно узкой области размеров и температур наблюдается температурная волна, вращающаяся с постоянной угловой скоростью. Существенным условием ее появления является условие прилипания жидкости на верхней поверхности, а также неоднородность нагрева (наличие как вертикального, так и горизонтального температурного градиента). Важной особенностью обнаруженной вращающейся температурной волны, является то, что она создается не периодически действующими источниками тепла, а стационарно нагретой границей, приводящей к сложному взаимодействию конвективных вихрей, которые самоорганизуются, генерируют

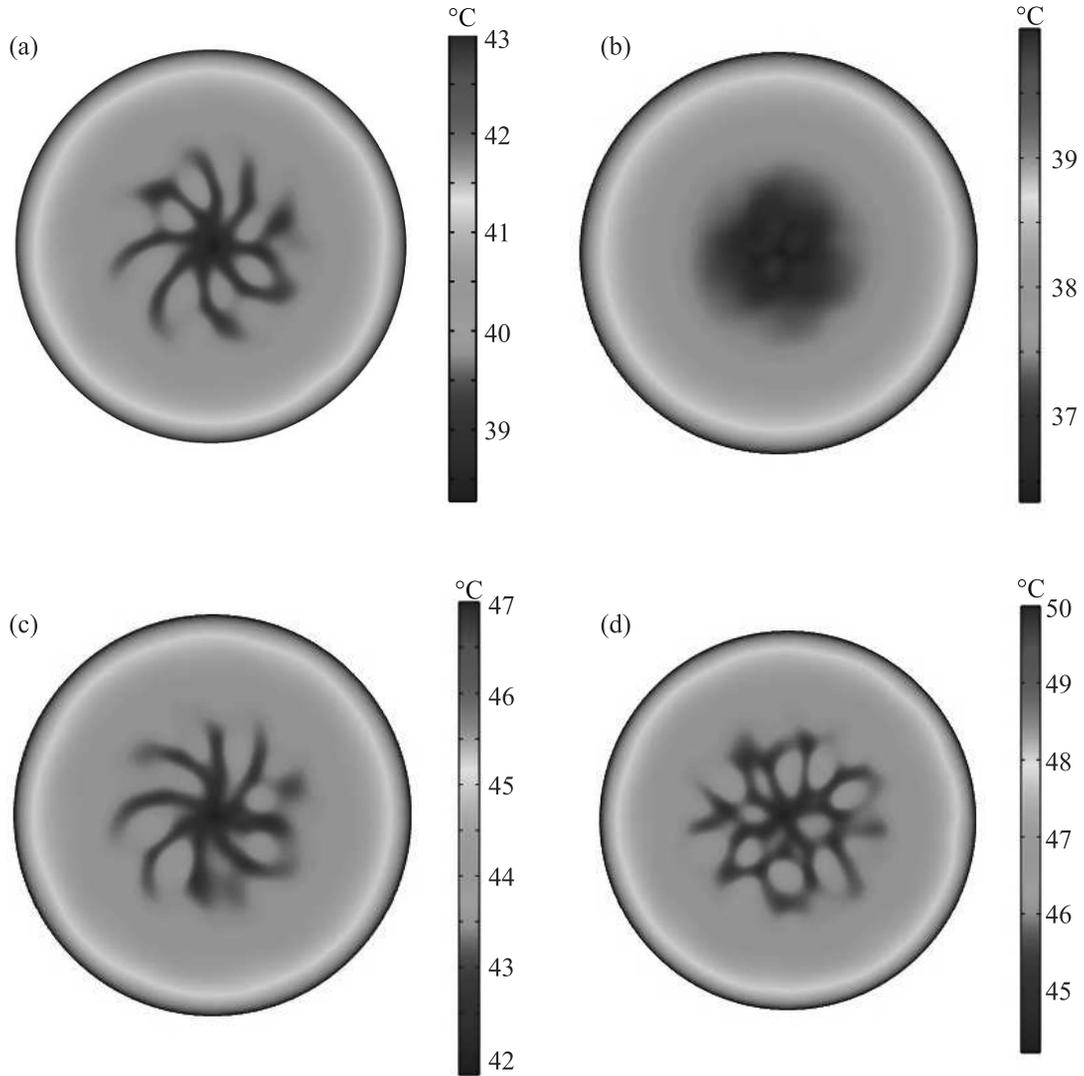


Рис. 6. (Цветной онлайн) Формы структур на поверхности испарения при изменении температуры нагрева T_w . (a) – $T_w = 43^\circ\text{C}$; (b) – $T_w = 40^\circ\text{C}$; (c) – $T_w = 47^\circ\text{C}$; (d) – $T_w = 50^\circ\text{C}$. $r = 3\text{ см}$, $d = 0.7\text{ см}$, $T_\infty = 25^\circ\text{C}$

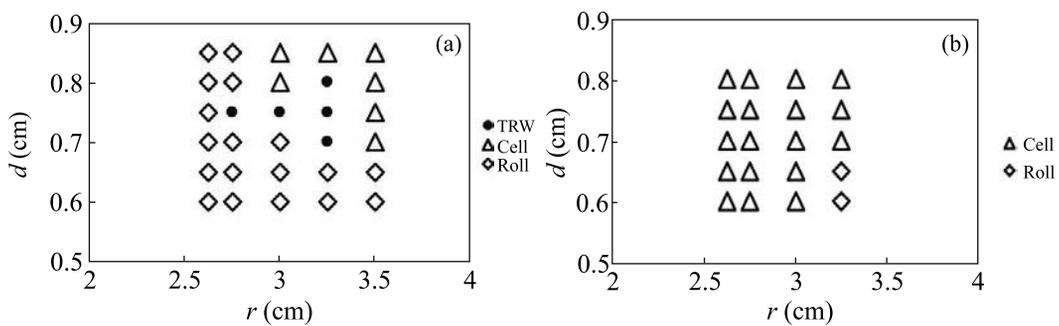


Рис. 7. Морфологическая диаграмма рассчитанных структур вблизи области наблюдения температурных вращающихся волн. Каждый символ соответствует проведенному расчету. (a) – $T_w = 40^\circ\text{C}$; (b) – $T_w = 50^\circ\text{C}$, $T_\infty = 25^\circ\text{C}$

волну. Обнаруженное волновое поведение требует подтверждения в экспериментах на воде с

различными адсорбирующимися на поверхности примесями.

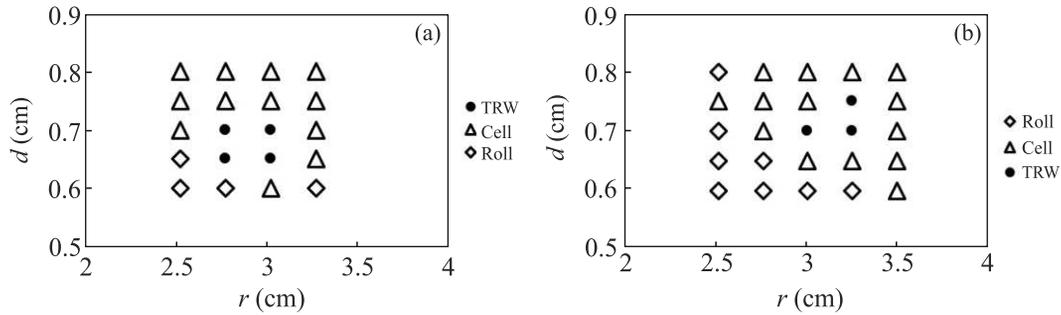


Рис. 8. Морфологическая диаграмма рассчитанных структур вблизи области наблюдения температурных вращающихся волн. Каждый символ соответствует проведенному расчету. (a) – $T_\infty = 20^\circ\text{C}$; (b) – $T_\infty = 30^\circ\text{C}$, $T_w = 45^\circ\text{C}$

Теоретическая модель возникновения волны для системы, схожей с представленной (капля жидкости, находящаяся одновременно в горизонтальном и вертикальном градиентах температуры, которые устанавливаются самопроизвольно и саморегулируются благодаря теплообмену с поверхностью, включающего испарение) рассматривается в [20]. В этой работе сделана попытка аналитически описать эксперименты с обнаруженным волнообразным движением, представленные в [21] (см. также [22, 23]). Представленная теория смогла дать качественное описание явления. Наша система отличается от рассмотренной тем, что вместо условия Марангони на верхней границе используется условие отсутствия скольжения. Таким образом, возможным теоретическим направлением развития настоящей работы может быть модернизация модели [20] и ее аналитический анализ. Это позволит лучше понять вопрос о масштабируемости обнаруженного явления и о его распространности в окружающем нас мире.

Исследование выполнено при частичной финансовой поддержке в рамках научного гранта #FEUZ-2023-0013.

1. F. H. Busse, Rep. Prog. Phys. **41**, 1929 (1978).
2. A. V. Getling, *Bénard–Rayleigh Convection: Structures and Dynamics*, World Scientific (1998).
3. M. F. Schatz1 and G. P. Neitzel, Annu. Rev. Fluid Mech. **33**, 93 (2001).
4. W. G. Spangenberg and W. R. Rowland, Phys. Fluids **4**, 743 (1961).
5. K. B. Katsaros, W. T. Liu, J. A. Businger, and J. E. Tillman, J. Fluid Mech. **83**, 311 (1977).
6. R. J. Volino and G. B. Smith, Exp. Fluids **27**, 70 (1999).

7. K. A. Flack, J. R. Saylor, and G. B. Smith, Phys. Fluids **13**, 3338 (2001).
8. K. E. Torrance, J. Fluid Mech. **96**, 477 (1979).
9. A. I. Mizev, J. Appl. Mech. Tech. Phys. **45**(4), 486 (2004).
10. M. C. Navarro, A. M. Mancho, and H. Herrero, Chaos **17**, 023105 (2007).
11. A. Sukhanovskii, A. Evgrafova, and E. Popova, Physica D **316**, 23 (2016).
12. D. A. Rusova and L. M. Martyushev, AIP Conf. Proc. **2174**, 020162 (2019).
13. L. M. Martyushev, D. A. Rusova, and K. V. Zvonarev, Phys. Fluids **34**, 053112 (2022).
14. I. V. Kerekelitsa, K. V. Zvonarev, and L. M. Martyushev, AIP Conf. Proceed. **2466**, 070007 (2022).
15. K. V. Zvonarev, D. A. Rusova, and L. M. Martyushev, Phys. Fluids **34**, 123114 (2022).
16. N. A. Vinnichenko, Y. Y. Plaksina, K. M. Baranova, A. V. Pushtaev, and A. V. Uvarov, Environ. Fluid Mech. **18**, 1045 (2018).
17. Y. Rudenko, N. Vinnichenko, Y. Plaksina, A. V. Push-taev, and A. V. Uvarov, J. Fluid Mech. **944**, A35 (2022).
18. D. J. Tritton, *Physical Fluid Dynamics*, Van Nostrand Reinhold Co., N.Y. (1977).
19. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Fluid Mechanics*, 2nd ed., Course of Theoretical Physics, v. 6, Pergamon Press, Oxford (1987).
20. G. Karapetsas, O. K. Matar, P. Valluri, and K. Sefiane, Langmuir **28**, 11433 (2012).
21. K. Sefiane, J. R. Moffat, O. K. Matar, and R. V. Craster, App. Phys. Lett. **93**, 074103 (2008).
22. С. В. Филатов, А. А. Левченко, Л. П. Межов-Деглин, Письма в ЖЭТФ **111**(10), 653 (2020).
23. А. А. Гаврили́на, Л. Ю. Бараш, ЖЭТФ **159**(2), 359 (2021).

3D ($H-\varphi-\theta$) магнитная фазовая диаграмма антиферромагнетика ErB_{12} с динамическими зарядовыми страйпами¹⁾

К. М. Красиков⁺²⁾, А. В. Богач⁺, Н. Ю. Шицевалова*, В. Б. Филиппов*, Н. Е. Случанко⁺

⁺Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

*Институт проблем материаловедения им. И. Н. Францевича НАНУ, 03142 Киев, Украина

Поступила в редакцию 31 января 2023 г.

После переработки 20 февраля 2023 г.

Принята к публикации 27 февраля 2023 г.

В антиферромагнитном металле $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ с амплитудно-модулированной магнитной структурой и электронной неустойчивостью (динамические зарядовые страйпы) впервые построена 3D (H, φ, θ , $T = 2\text{K}$) магнитная фазовая диаграмма. На основе измерений магнетосопротивления восстановлены границы, задающие форму основных магнитных фаз в $H-\varphi-\theta$ пространстве. Обсуждается роль динамических зарядовых страйпов, подавляющих непрямого обмена Рудермана–Киттеля–Касуя–Иосиды между магнитными моментами ближайших ионов Er^{3+} , и одноионной анизотропии в формировании сложной, многокомпонентной фазовой диаграммы $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$.

DOI: 10.31857/S123456782307008X, EDN: kargod

1. Наличие сложных, многокомпонентных фазовых диаграмм типично для сильнокоррелированных электронных систем (СКЭС), что обусловлено конкуренцией нескольких одновременно активных зарядовых, спиновых, решеточных и орбитальных степеней свободы [1]. Одним из известных и наиболее изученных примеров являются манганиты с колоссальным магнетосопротивлением, демонстрирующие большое разнообразие состояний, включая ферро- и антиферромагнитные (АФ) фазы, ближний магнитный порядок, волны зарядовой и спиновой плотности (ВЗП и ВСП), электронное фазовое расслоение и др. [1–3]. Сложные фазовые диаграммы были обнаружены также в рутенатах [4], органических солях с переносом заряда [5], металлах с тяжелыми фермионами на основе Се [6], высокотемпературных сверхпроводниках, включая купраты, железо-содержащие пниктиды и халькогениды [7–12], низкоразмерных соединениях с ВЗП [13, 14] и других СКЭС. Предполагается, что структурные и электронные неустойчивости различной природы лежат в основе усиления сверхпроводимости [7–12], электронного фазового расслоения [1–3], резкой перестройки термодинамических и транспортных свойств и магнитной структуры при варьировании внешних управляющих параметров (состав, магнитное поле, давление и др.). Возможности качественной и количественной пере-

стройки свойств СКЭС при варьировании внешних параметров (состав, магнитное поле, давление и др.) создают хорошие перспективы для их практического применения, однако анализ механизмов, обуславливающих изменение характеристик, оказывается затруднен в силу сложного химического состава и низкой симметрии кристаллической структуры.

Недавно было показано [15], что в качестве модельной системы с сильными корреляциями могут рассматриваться редкоземельные (РЗ) додекабориды RB_{12} с гцк решеткой. В антиферромагнитных металлах RB_{12} ($R = \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}$) при изменении заполнения $4f$ -оболочки РЗ иона в интервале $8 \leq n_{4f} \leq 12$ температура Нееля монотонно уменьшается от $T_N \approx 22\text{K}$ в TbB_{12} к $T_N \approx 6.7\text{K}$ в ErB_{12} (см. рис. S1 в дополнительных материалах) и далее к $T_N \approx 3.2\text{K}$ в TmB_{12} при сохранении зоны проводимости, состоящей из гибридных между собой $5d$ (R) и $2p$ (B) атомных орбиталей [16, 17]. Основным взаимодействием, связывающим магнитные моменты незаполненных $4f$ -оболочек в металлах RB_{12} с низким остаточным сопротивлением $\sim 1 \div 2 \cdot 10^{-6}\text{Om} \cdot \text{см}$ (см. рис. S1 в дополнительных материалах) и высокой концентрацией зонных носителей [15], является не прямой обмен через электроны проводимости Рудермана–Киттеля–Касуя–Иосиды (РККИ), который в присутствии электронного фазового расслоения (динамические страйпы) и других, конкурирующих взаимодействий приводит к фрустрации и формированию сложных магнитных структур. Рефлексы, обнаруженные в

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

²⁾e-mail: krasikokirill@yandex.ru

экспериментах по магнитной дифракции нейтронов [18–20], позволили установить структуру магнитного упорядочения в отсутствие внешнего магнитного поля. Было показано, что в HoV_{12} и TmV_{12} реализуется амплитудно-модулированная $4\mathbf{q}$ структура с $\mathbf{q} = (1/2 \pm \delta, 1/2 \pm \delta, 1/2 \pm \delta)$, где $\delta = 0.035$, в то время как в ErV_{12} наблюдается $2\mathbf{q}$ структура с $\mathbf{q} = (3/2 \pm \delta, 1/2 \pm \delta, 1/2 \pm \delta)$, $\delta = 0.035$. Прецизионные рентгеноструктурные исследования немагнитного металла LuV_{12} [21, 22] и парамагнитного полупроводника $\text{Tm}_{0.19}\text{Yb}_{0.81}\text{V}_{12}$ [24] обнаружили, что вследствие динамического кооперативного эффекта Яна–Теллера кластеров $[\text{B}_{12}]^{2-}$ в RV_{12} возникает электронная неустойчивость с образованием динамических зарядовых страйпов, причем электронное фазовое расслоение с характерными нанометровыми размерами является общим свойством всех додекаборидов [24]. Было показано, что быстрые (~ 240 ГГц [23]) флуктуации электронной плотности в страйпах в направлениях $\langle 110 \rangle$ подавляют РККИ осцилляции спиновой плотности носителей, что приводит к перенормировке магнитного обмена и возникновению в АФ додекаборидах сложных магнитных фазовых диаграмм с многочисленными магнитоупорядоченными фазами [25, 26] (для ErV_{12} см., например, рис. S2 в дополнительных материалах). В работе [26] впервые была построена трехмерная (3D) $H-\varphi-\theta$ магнитная фазовая диаграмма АФ металла HoV_{12} , и было показано, что расположение и характер магнитных фаз определяются направлением и напряженностью внешнего магнитного поля. Недавние исследования магнетосопротивления и намагниченности позволили установить, что для $\mathbf{H} \parallel (110)$ анизотропия угловых фазовых диаграмм для HoV_{12} и TmV_{12} имеет форму “мальтийского креста” [26, 27] и при изменении \mathbf{H} в этой плоскости существенно отличается от анизотропии в форме “бабочки”, которая наблюдается в ErV_{12} [28]. Учитывая различную симметрию основного состояния ионов Ho^{3+} (триплет Γ_5^1) и Er^{3+} (квартет Γ_8^3), представляет интерес построить 3D ($H, \varphi, \theta, T = 2\text{K}$) магнитную фазовую диаграмму ErV_{12} . С этой целью в настоящей работе впервые проведены детальные прецизионные угловые измерения магнетосопротивления в плоскостях изменения внешнего магнитного поля $\mathbf{H} \parallel (100)$, $\mathbf{H} \parallel (111)$ и $\mathbf{H} \parallel (112)$, и в результате совместного анализа с данными выполненными ранее исследований [28] для $\mathbf{H} \parallel (110)$ впервые восстановлен вид магнитной фазовой $H-\varphi-\theta$ диаграммы $\text{Er}^{11}\text{V}_{12}$.

2. Детальные исследования поперечного магнетосопротивления ($\mathbf{H} \perp \mathbf{I}$) выполнены на высококачественных монокристаллах, изотопически чистых

(^{11}V) монокристаллах $\text{Er}^{11}\text{V}_{12}$, выращенных методом индукционного зонного плавления в атмосфере инертного газа [29]. Измерения в магнитном поле до 80 кЭ проводились в ИОФ РАН на оригинальной установке для гальваномагнитных исследований с использованием стандартного четырехконтактного метода, который состоит в следующем. Образцы в форме параллелепипеда с характерным размером $0.5 \times 0.5 \times 4$ мм³ монтируются на измерительный столик, контакты к образцу подводятся электроискровым методом, для дополнительной механической прочности места касания токовых контактов к образцу смазываются серебряной пастой. Для исключения паразитных вкладов (термоЭДС и т.д.) используется коммутация измерительного тока через образец. Использование специальной вставки с шаговым двигателем позволяет производить вращение исследуемого образца вокруг направления измерительного тока \mathbf{I} в поперечном магнитном поле, меняя пошагово угол φ между нормалью \mathbf{n} к боковой поверхности образца и магнитным полем. Для получения информации о фазовых границах в различных плоскостях нами был подготовлен набор из четырех образцов $\text{Er}^{11}\text{V}_{12}$, вырезанных из одного монокристалла с направлениями измерительного тока $\mathbf{I} \parallel [001]$, $\mathbf{I} \parallel [110]$ (см. также [28]), $\mathbf{I} \parallel [111]$ и $\mathbf{I} \parallel [112]$.

3. На рисунке 1a и b, соответственно, представлены угловые и полевые зависимости магнетосопротивления $\text{Er}^{11}\text{V}_{12}$ в магнитном поле до 80 кЭ при температуре $T = 2\text{K}$, полученные в эксперименте с вращением вокруг оси $\mathbf{I} \parallel [001]$. На угловых зависимостях в АФ фазе при $H \leq 20$ кЭ (рис. 1a) удельное сопротивление изотропно и практически линейно растет с увеличением H (см. также рис. 1b); далее, в окрестности $H \sim 15$ кЭ на угловых кривых регистрируются небольшие особенности вблизи направлений $\langle 100 \rangle$. Выше 25 кЭ на зависимостях $\Delta\rho/\rho = \frac{\rho(H) - \rho(H=0)}{\rho(H=0)}$ в окрестности $\langle 100 \rangle$ наблюдается аномалия из двух пиков, отвечающих ориентационным фазовым переходам, одновременно на полевых кривых при $H \sim 25$ кЭ для направления $\mathbf{H} \parallel [100]$ обнаружена особенность в форме ступеньки (отмечена стрелкой на рис. 1b). Отметим, что указанные особенности, по-видимому, обусловлены возникновением ферромагнитной компоненты магнитной структуры, наблюдавшейся ранее при измерениях намагниченности ErV_{12} [22]. Дальнейший рост магнитного поля приводит к появлению значительной анизотропии $\Delta\rho/\rho(\varphi)$, достигающей максимальных значений в интервале 52–58 кЭ непосредственно перед переходом в парамагнитное (P) состояние (на рис. 1b обозначено неелевское поле H_N). Особен-

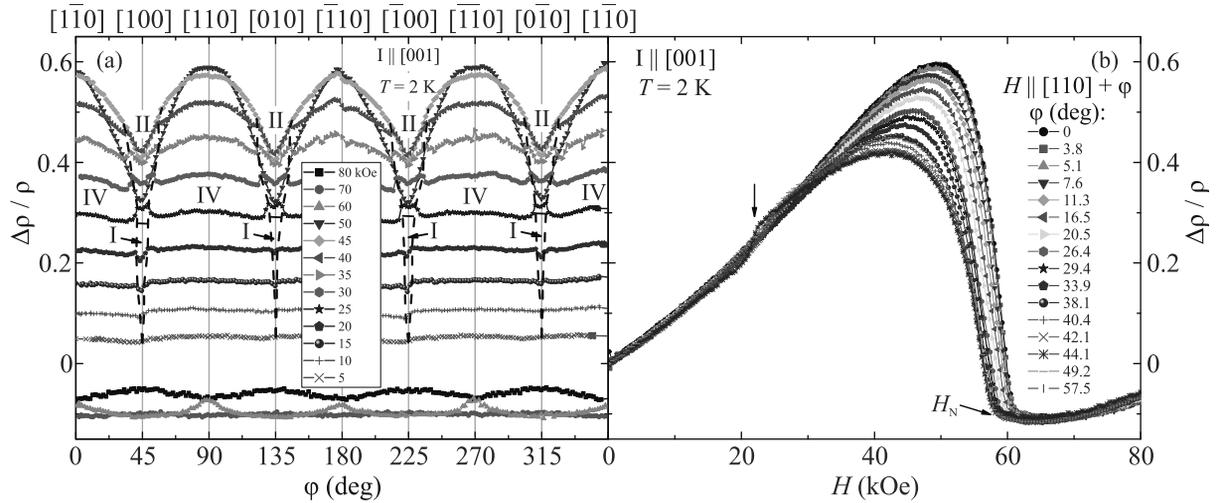


Рис. 1. (Цветной онлайн) Угловые (а) и полевые (б) зависимости магнетосопротивления $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ во внешнем магнитном поле до 80 кЭ при $T = 2$ К. Вращение отвечает изменению \mathbf{H} в плоскости (001). Римскими цифрами показаны разные магнитные фазы в АФ состоянии (сохранена нумерация фаз [29], см. также рис. S2 в дополнительных материалах)

ности на угловых и полевых кривых рис. 1 связаны с ориентационными фазовыми переходами между различными магнитными фазами [28, 30]. Резкое уменьшение $\Delta\rho/\rho(\varphi)$ в интервале 50–60 кЭ (см. рис. 1b) и переход к режиму отрицательного магнетосопротивления (ОМС) в парамагнитном состоянии, по-видимому, следует связать с подавлением $5d$ -компоненты магнитной структуры (волны спиновой плотности (ВСП)), приводящего к уменьшению амплитуды рассеяния на ВСП. В свою очередь, ОМС в Р-фазе считается обусловленным рассеянием с переворотом спина на локализованных магнитных моментах РЗ ионов [15, 25]. Отметим также небольшую анизотропию поля Нееля $H_N = 58\text{--}61$ кЭ (рис. 1b) в зависимости от ориентации внешнего магнитного поля \mathbf{H} .

Угловые и полевые кривые $\Delta\rho/\rho = f(H, \varphi)$, полученные при $T = 2$ К в экспериментах с вращением образцов вокруг четырех различных токовых направлений, удобнее представлять в едином формате в цилиндрических и полярных координатах. На рисунке 2а, б и с, д приведены зависимости магнетосопротивления в $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$, измеренные при $T = 2$ К при вращении кристаллов вокруг направлений тока $\mathbf{I} \parallel [100]$ и $\mathbf{I} \parallel [111]$, соответственно, а на рис. S3 и S4 в дополнительных материалах представлены такие же результаты для $\mathbf{I} \parallel [112]$. Данные эксперимента для $\mathbf{I} \parallel [110]$ опубликованы ранее в [28]. Белыми точками и черными линиями на рис. 2а, с обозначены границы между различными магнитоупорядоченными фазами в АФ состоянии. Номера фаз указаны римскими цифрами аналогично [28]. Отметим высокое ка-

чество измеряемых монокристаллов, – полученные диаграммы рассеяния имеют симметрию 4-го и 6-го порядков при вращении вокруг $\mathbf{I} \parallel [100]$ и $\mathbf{I} \parallel [111]$, соответственно. Как видно из рис. 2а и с, основные области на $H\text{--}\varphi$ диаграммах в плоскостях (100) и (111) занимают фазы II, IV и V. Построенные $H\text{--}\varphi$ диаграммы существенно отличаются от полученных ранее для HoB_{12} и TmB_{12} [26, 27], в частности, в ErB_{12} не наблюдается практически изотропной низкополевой фазы I со сферической границей, а также значительно отличается форма и расположение основных магнитных фаз в $H\text{--}\varphi$ плоскостях (см. также рис. S5 в дополнительных материалах).

4. Полученные в работе $H\text{--}\varphi$ фазовые диаграммы в плоскостях $\mathbf{H} \parallel (100)$, $\mathbf{H} \parallel (111)$ и $\mathbf{H} \parallel (112)$ (рис. 2, рис. S4 в дополнительных материалах, а также $\mathbf{H} \parallel (110)$ в [28]) являются сечениями сферической 3D $H\text{--}\varphi\text{--}\theta$ магнитной фазовой диаграммы и могут быть использованы для ее построения. На рисунке 3а показаны совмещенные плоскости $H\text{--}\varphi$, полученные в экспериментах с вращением вокруг $\mathbf{I} \parallel [100]$, $\mathbf{I} \parallel [110]$ для $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ при $T = 2$ К. Видно, что фазовые границы, найденные в различных экспериментах (показаны белыми линиями), хорошо согласуются между собой. На рисунке 3б для удобства восприятия схематически представлено сечение сферической поверхностью $H = 50$ кЭ трех основных фаз II, IV и V этой 3D-диаграммы. Отметим, что три отмеченных области, соответствующие трем разным магнитоупорядоченным фазам, практически полностью заполняют пространство внутри АФ-фазы на трехмерной $H\text{--}\varphi\text{--}\theta$ диаграмме. Пунктирные линии

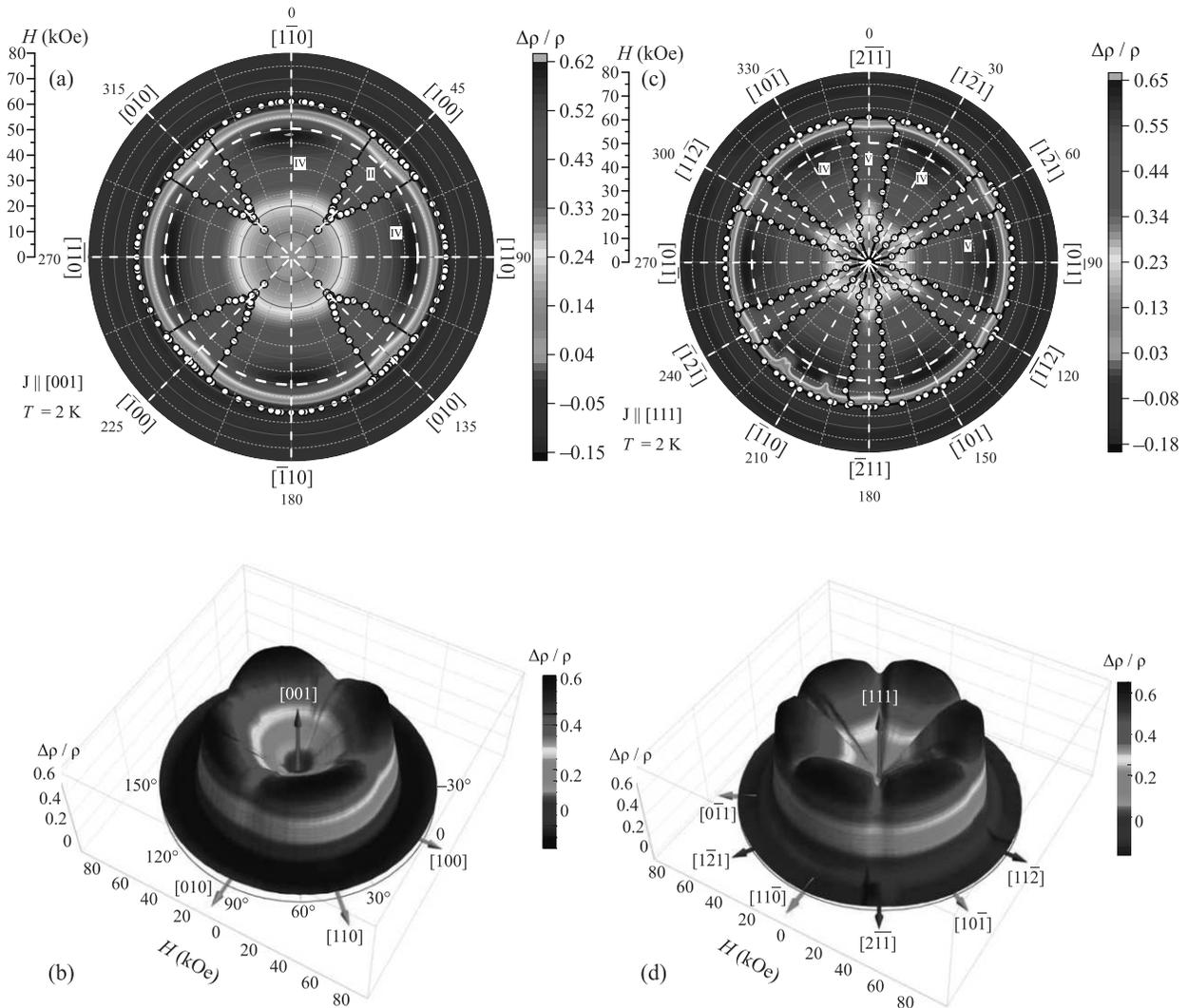


Рис. 2. (Цветной онлайн) Магнетосопротивление $\Delta\rho/\rho = f(H, \varphi)$ в $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ при $T = 2\text{ K}$ в полярных (а), (с) и цилиндрических (b), (d) координатах для направлений тока $\mathbf{I} \parallel [001]$ и $\mathbf{I} \parallel [111]$, соответственно. Римскими цифрами показаны разные магнитные фазы в АФ состоянии (сохранена нумерация фаз [28], см. также рис. S2 в дополнительных материалах). Белый пунктир при $H = 50\text{ кЭ}$ показывает сферу, для которой на рис. 3b представлен контур сечения магнитных фаз построенной 3D $H-\varphi-\theta$ фазовой диаграммы

на рис. 3b обозначают четверть круговых траекторий на сфере $H = 50\text{ кЭ}$, пройденных при вращении вектора \mathbf{H} в четырех выполненных нами экспериментах: (i) А-В-А соответствует вращению от $\mathbf{H} \parallel [010]$ до $\mathbf{H} \parallel [001]$ (ось $[100]$, см. рис. 2а); (ii) А-С-В отвечает изменению между $\mathbf{H} \parallel [001]$ и $\mathbf{H} \parallel [110]$ (ось $[110]$, см. [28]); (iii) В-с-В соответствует вращению от $\mathbf{H} \parallel [011]$ к $\mathbf{H} \parallel [110]$ (ось $[111]$, см. рис. 2с), и (iv) В-а-б-С отвечает повороту от $\mathbf{H} \parallel [011]$ к $\mathbf{H} \parallel [111]$ (ось $[112]$, см. дополнительные материалы). Как видно из рис. 3b, форма областей с различным магнитным упорядочением в $(H-\varphi-\theta)$ пространстве, крайне необычна: фазы II и IV (показаны красным и желтым цве-

том соответственно) имеют похожие очертания, но разные размеры; фаза V заполняет оставшееся пространство между ними, отличаясь по форме. Отметим, что топология построенной 3D фазовой диаграммы $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ значительно отличается от полученной ранее для $\text{Ho}^{11}\text{B}_{12}$ [26] (см. сравнение на рис. S5 в дополнительных материалах).

Столь сильная анизотропия рассеяния носителей заряда и фазовых границ на трехмерной ($H-\varphi-\theta$) магнитной диаграмме в $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$, по-видимому, обусловлена несколькими причинами, среди которых можно выделить (i) усиление $5d$ - (ВСП) компоненты магнитной структуры во внешнем магнитном по-

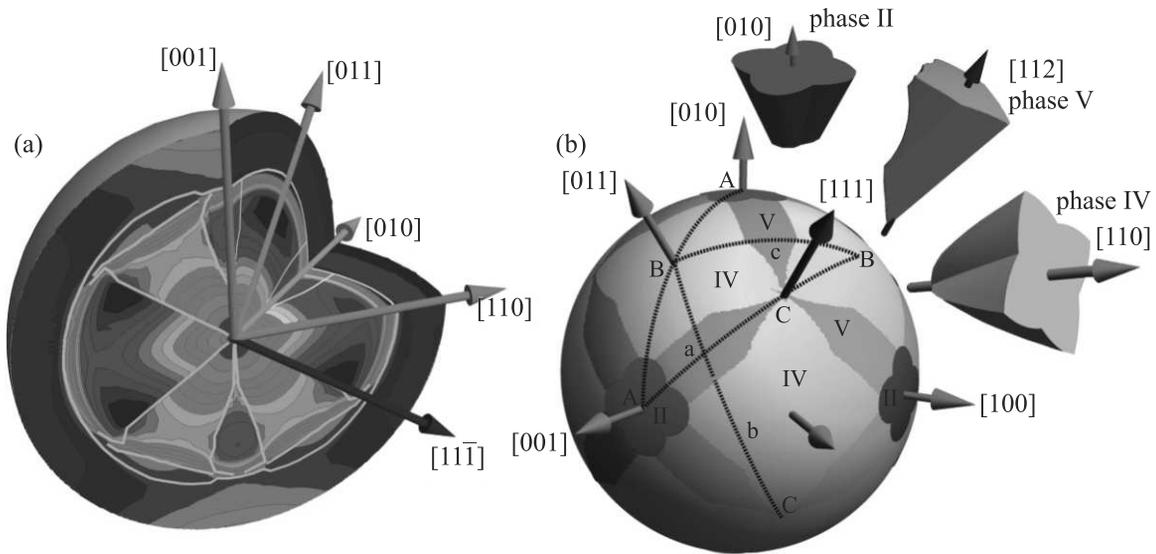


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Фазовые 2D $H-\varphi$ диаграммы $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ для направлений тока $\mathbf{I}||[100]$, $\mathbf{I}||[110]$, объединенные в 3D $H-\varphi-\theta$ диаграмму. Цветом показана амплитуда магнетосопротивления (см. рис. 1, 2 и рис. S3 в дополнительных материалах). (б) – Схематическое изображение сечения сферической поверхностью $H = 50$ кЭ трех основных фаз (II, IV и V) $H-\varphi-\theta$ фазовой диаграммы (сохранена нумерация фаз [28], см. также рис. S2 в дополнительных материалах). Пунктирными линиями на панели (б) показаны траектории изменения направления вектора \mathbf{H} в четырех экспериментах с вращением образца

ле, (ii) эффекты спиновой поляризации (ферромагнитная компонента) зонных электронов с ростом H , (iii) подавление в магнитном поле рассеяния с переворотом спина на локализованных моментах и (iv) взаимодействие магнитного поля с динамическими зарядовыми страйпами [15, 31–33]. Возникновение положительного линейного МС в магнитоупорядоченной фазе часто объясняется усилением ВСП во внешнем магнитном поле [15, 25, 32] и образованием магнитных поляронов в $5d$ полосе зоны проводимости со стабилизацией ВСП (см., например, [31, 34]). При этом ориентационным фазовым переходам в поле отвечает как резкое изменение параметров ВСП, так и перестройка филаментарной структуры флуктуирующих зарядов, приводящая также и к спин-флуктуационным переходам (см., например, [35]). Дополнительным фактором, определяющим характер рассеяния носителей в РЗ додекаборидах, является возникновение колебательно связанных димеров РЗ-ионов, обнаруженных недавно в HoB_{12} [36] и YbB_{12} [37].

Отметим, что ранее в [19] было предложено объяснение сложной магнитной диаграммы в несоизмеримой АФ-фазе додекаборидов, связанное с фрустрацией магнитных моментов РЗ ионов в гцк решетке антиферромагнетика, что обуславливает метастабильное состояние магнитной системы в RB_{12} . В этом сценарии учет зарядовых страйпов

вдоль $\langle 110 \rangle$ в системе с непрямым РККИ обменом через электроны проводимости приводит к подавлению РККИ-осцилляций спиновой плотности и перенормировке обменного взаимодействия, вызывая сильную зависимость магнитного упорядочения от величины и направления внешнего магнитного поля.

Следует подчеркнуть, что магнитная анизотропия в RB_{12} существенным образом зависит и от конфигурации основного состояния РЗ ионов в кристаллическом электрическом поле. Действительно, для $\text{Ho}^{11}\text{B}_{12}$ и $\text{Tm}^{11}\text{B}_{12}$ с основным триплетным состоянием Γ_5^3 [17, 36] в плоскости $\mathbf{H}||\langle 110 \rangle$ обнаружены анизотропные угловые магнитные фазовые диаграммы в виде “мальтийского креста” [25–27], тогда как для $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ с квинтетом Γ_8^3 наблюдается анизотропия $H-\varphi$ диаграммы в виде “бабочки” [28]. Очевидно, столь существенные различия в 3D $H-\varphi-\theta$ магнитных фазовых диаграммах (см. рис. S5 в дополнительных материалах) определяются одноионной анизотропией, и, таким образом, выяснение роли одноионных эффектов представляется одной из приоритетных задач ближайших исследований.

5. В результате выполненных прецизионных измерений магнетосопротивления в модельном СКЭС антиферромагнетике $\text{Er}^{11}\text{B}_{12}$ с несоизмеримой АФ-структурой, кооперативной ян-теллеровской структурной неустойчивостью борного каркаса и

динамическими зарядовыми страйпами впервые восстановлена 3D магнитная фазовая диаграмма АФ состояния. Показано, что в $H-\varphi-\theta$ пространстве она состоит из трех основных секторов различной формы, обнаруживаемых в окрестностях главных направлений: (а) вдоль ($\mathbf{H}||[110]$, фаза IV) и (б) поперек ($\mathbf{H}||[001]$, фаза II) направления зарядовых страйпов и (с) в окрестности $\mathbf{H}||[112]$ в гцк решетке. Сильная анизотропия как фазовой диаграммы, так и диаграммы рассеяния носителей заряда предположительно является следствием наличия электронной неустойчивости, связанной с формированием нитевидной структуры неравновесных электронов вдоль $\langle 110 \rangle$. В результате не прямое РККИ-обменное взаимодействие между ближайшими соседними магнитными ионами Er^{3+} подавляется, что приводит к понижению симметрии и возникновению сложных многокомпонентных фазовых диаграмм с большим количеством магнитных фаз и фазовых переходов.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда # 22-22-00243.

1. E. Dagotto, *Science* **309**, 257 (2005).
2. J. F. Mitchell, D. N. Argyriou, A. Berger, K. E. Gray, R. Osborn, and U. Welp, *ACS Publ.* **105**(44), 10731 (2001).
3. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
4. S. Nakatsuji, V. Dobrosavljević, D. Tanasković, M. Minakata, H. Fukazawa, and Y. Maeno, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 146401 (2004).
5. T. Sasaki, N. Yoneyama, A. Matsuyama, and N. Kobayashi, *Phys. Rev. B* **65**, 1 (2002).
6. S. V. Demishev, V. N. Krasnorussky, A. V. Bogach, V. V. Voronov, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filipov, V. V. Glushkov, and N. E. Sluchanko, *Sci. Rep.* **7**, 1 (2017).
7. B. Keimer, S. A. Kivelson, M. R. Norman, S. Uchida, and J. Zaanen, *Nature* **518**, 179 (2015).
8. E. Berg, E. Fradkin, S. A. Kivelson, and J. M. Tranquada, *New J. Phys.* **11**, 115004 (2009).
9. S. Sachdev and B. Keimer, *Phys. Today* **64**, 29 (2011).
10. P. J. Hirschfeld, M. M. Korshunov, and I. I. Mazin, *Rep. Prog. Phys.* **74**, 124508 (2011).
11. G. R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1589 (2011).
12. M. Zehetmayer, *Supercond. Sci. Technol.* **26**, 43001 (2013).
13. С. Г. Зыбцев, В. Я. Покровский, С. А. Никонов, А. А. Майзлах, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 158 (2023).
14. А. В. Фролов, А. П. Орлов, Д. М. Воропаев, А. А. Синченко, П. Монсо, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 171 (2023).
15. N. E. Sluchanko, *Magnetism, Quantum Criticality, and Metal-Insulator Transitions in RB12*, in *Rare-Earth Borides*, ed. by D. S. Inosov, Jenny Stanford Publishing Pte. Ltd., Singapore (2021), ch. 4, p. 331.
16. N. E. Sluchanko, A. V. Bogach, V. V. Glushkov, S. V. Demishev, K. S. Lyubshov, D. N. Sluchanko, A. V. Levchenko, A. B. Dukhnenko, V. B. Filipov, S. Gabani, and K. Flachbart, *JETP Lett.* **89**, 256 (2009).
17. A. Czopnik, N. Shitsevalova, A. Krivchikov, V. Pluzhnikov, Y. Paderno, and Y. Onuki, *J. Solid State Chem.* **177**, 507 (2004).
18. A. Kohout, I. Batko, A. Czopnik, K. Flachbart, S. Matas, M. Meissner, Y. Paderno, N. Shitsevalova, and K. Siemensmeyer, *Phys. Rev. B* **70**, 1 (2004).
19. K. Siemensmeyer, K. Habicht, T. Lonkai, S. Mat'as, S. Gabani, N. Shitsevalova, E. Wulf, and K. Flachbart, *J. Low Temp. Phys.* **146**, 581 (2007).
20. A. Czopnik, A. Murasik, L. Keller, N. S. Alova, and Y. Paderno, *Phys. Status Solidi B Basic Res.* **221**, R7 (2000).
21. N. B. Bolotina, A. P. Dudka, O. N. Khrykina, V. N. Krasnorussky, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, *J. Phys. Condens. Matter* **30**, 265402 (2018).
22. N. Sluchanko, A. Bogach, N. Bolotina, V. Glushkov, S. Demishev, A. Dudka, V. Krasnorussky, O. Khrykina, K. Krasikov, V. Mironov, V. B. Filipov, and N. Shitsevalova, *Phys. Rev. B* **97**, 035150 (2018).
23. N. E. Sluchanko, A. N. Azarevich, A. V. Bogach, N. B. Bolotina, V. V. Glushkov, S. V. Demishev, A. P. Dudka, O. N. Khrykina, V. B. Filipov, N. Y. Shitsevalova, G. A. Komandin, A. V. Muratov, Y. A. Aleshchenko, E. S. Zhukova, and B. P. Gorshunov, *J. Phys. Condens. Matter* **31**, 065604 (2019).
24. N. B. Bolotina, A. P. Dudka, O. N. Khrykina, and V. S. Mironov, *Crystal Structures of Dodecaborides: Complexity in Simplicity*, in *Rare-Earth Borides*, ed. by D. S. Inosov, Jenny Stanford Publishing Pte. Ltd., Singapore (2021), ch. 3, p. 293.
25. A. L. Khoroshilov, V. N. Krasnorussky, K. M. Krasikov, A. V. Bogach, V. V. Glushkov, S. V. Demishev, N. A. Samarin, V. V. Voronov, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filipov, S. Gabani, K. Flachbart, K. Siemensmeyer, S. Y. Gavrilkina, and N. E. Sluchanko, *Phys. Rev. B* **99**, 174430 (2019).
26. K. Krasikov, V. Glushkov, S. Demishev, A. Khoroshilov, A. Bogach, V. Voronov, N. Shitsevalova, V. Filipov, S. Gabani, and K. Flachbart, *Phys. Rev. B* **102**, 214435 (2020).
27. A. Azarevich, V. Glushkov, S. Demishev, A. Bogach, V. Voronov, S. Gavrilkina, N. Shitsevalova, V. Filipov, S. Gabani, J. Kačmarčík, K. Flachbart, and N. Sluchanko, *J. Phys. Condens. Matter* **34**, 065602 (2022).

28. K. M. Krasikov, A. V. Bogach, S. V. Demishev, V. V. Voronov, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, *J. Magn. Magn. Mater.* **545**, 168796 (2022).
29. N. Shitsevalova, *Crystal Chemistry and Crystal Growth of Rare-Earth Borides*, in *Rare-Earth Borides*, ed. by D. S. Inosov, Jenny Stanford Publishing Pte.Ltd., Singapore (2021), ch. 1, p. 1.
30. K. M. Krasikov, A. N. Azarevich, A. V. Bogach, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filippov, and N. E. Sluchanko, *J. Magn. Magn. Mater.* **563**, 170011 (2022).
31. N. E. Sluchanko, A. V. Bogach, V. V. Glushkov, S. V. Demishev, N. A. Samarin, D. N. Sluchanko, A. V. Dukhnenko, and A. V. Levchenko, *JETP* **108**, 668 (2009).
32. N. E. Sluchanko, A. L. Khoroshilov, M. A. Anisimov, A. N. Azarevich, A. V. Bogach, V. V. Glushkov, S. V. Demishev, V. N. Krasnorussky, N. A. Samarin, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filippov, A. V. Levchenko, G. Pristas, S. Gabani, and K. Flachbart, *Phys. Rev. B* **91**, 1 (2015).
33. K. M. Krasikov, A. V. Bogach, A. D. Bozhko, V. V. Glushkov, S. V. Demishev, A. L. Khoroshilov, N. Y. Shitsevalova, V. Filipov, S. Gabáni, K. Flachbart, and N. E. Sluchanko, *Solid State Sci.* **104**, 106253 (2020).
34. H. Li, Y. Xiao, B. Schmitz, J. Persson, W. Schmidt, P. Meuffels, G. Roth, and T. Bruckel, *Sci. Rep.* **2**, 1 (2012).
35. S. V. Demishev, *Appl. Magn. Reson.* **51**, 473 (2020).
36. B. Z. Malkin, E. A. Goremychkin, K. Siemensmeyer, S. Gabani, K. Flachbart, M. Rajvňák, A. L. Khoroshilov, K. M. Krasikov, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, *Phys. Rev. B* **104**, 134436 (2021).
37. N. Bolotina, O. Khrykina, A. Azarevich, S. Gavrilkin, and N. Sluchanko, *Acta Crystallogr. Sect. B Struct. Sci. Cryst. Eng. Mater.* **76**, 1117 (2020).

Последовательность трехмерных (3D), двумерных (2D) и одномерных (1D) структур, образующихся из холестерического жидкого кристалла при изменении хиральности

К. Д. Бакланова⁺, В. К. Долганов⁺, Е. И. Кац*, П. В. Долганов⁺¹⁾

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

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

Поступила в редакцию 21 февраля 2023 г.

После переработки 1 марта 2023 г.

Принята к публикации 1 марта 2023 г.

В работе изучается образование модулированных структур в хиральных жидких кристаллах. Для различных хиральных нематиков, которые при низкой температуре образуют обычную холестерическую фазу (с закруткой в одном направлении), мы обнаружили, что при высокой температуре в окрестности фазового перехода в изотропную жидкость наблюдается универсальная последовательность структурных превращений. Планарный холестерик трансформируется при коротком шаге спирали в трехмерные (3D) фазы с кубической симметрией (Голубые Фазы), в двумерную (2D) структуру при промежуточном шаге спирали и в одномерную (1D) структуру в плоскости образца при большом шаге. Структуры обладают периодическим ориентационным и трансляционным порядком на масштабах существенно больше молекулярных масштабов. Оптические измерения проведены на упорядоченных структурах, полученных вблизи температуры перехода в изотропную фазу. Возможные причины образования структур обсуждаются на основе существующих экспериментальных данных и теоретических подходов.

DOI: 10.31857/S1234567823070091, EDN: kbzcaa

Фрустрация является причиной появления большого числа необычных структур. Хиральные нематики – наиболее богатая система, где могут образовываться структуры, индуцированные фрустрациями [1–3]. Стабильные и метастабильные конфигурации наблюдаются в том числе в системах конечного размера из-за конкуренции между хиральностью, упругостью и поверхностным сцеплением. Их изучение важно как с фундаментальной точки зрения, так и в связи со многими техническими приложениями. Исследования в этом направлении представляют общефизический интерес, в частности, в таких областях физики, как фазовые переходы в средах с многокомпонентным параметром порядка, топологические дефекты и фрустрации. Наиболее простая хиральная структура – холестерический жидкий кристалл, который имеет геликоидальное упорядочение, образованное поворотом средней ориентации длинных осей молекул (так называемого *n*-директора). Период структуры (шаг спирали *p*) существенно больше характерного молекулярного масштаба. Более сложные структуры могут быть получены из холестерической фазы при высоких температурах.

Несмотря на то, что скачок ориентационного параметра порядка при этих переходах мал, локальный ориентационный порядок и макроскопическая структура могут существенно отличаться. Наиболее известные фазы, образующиеся из холестерика, – это так называемые Голубые Фазы (BP) [4–7]. Их структура оставалась загадочной в течение многих десятилетий и оказалась довольно интересной и сложной. Голубые Фазы образованы упорядоченной структурой дефектов (дисклинаций) из-за пространственной фрустрации локального молекулярного упорядочения (так называемой двойной закрутки, которая не может непрерывно заполнить трехмерное пространство). Кубические ячейки Голубых Фаз содержат несколько миллионов молекул. Модулированные структуры с двойной закруткой, образованные периодически упорядоченными дефектами, могут наблюдаться также в других системах, в частности, в кубических хиральных магнетиках [8]. Отметим, что хиральность магнетиков определяется величиной и знаком взаимодействия Дзялошинского–Мория [8, 9].

Данная статья посвящена хиральным структурам с упорядочением различной размерности, образующимся из холестерика вблизи перехода в изотропную жидкость. Последовательность трехмерных

¹⁾e-mail: pauldol@issp.ac.ru

(3D), двумерных (2D) и одномерных (1D) структур образуется при увеличении шага холестерика. Исследования были выполнены на жидкокристаллических смесях нехирального нематика и хирального вещества. Образцы приготовлены из жидкого кристалла E7 с широким температурным интервалом нематической фазы и хирального вещества CB15 (Synthon Chemicals). В холестерической фазе имеется фотонная запрещенная зона для света правой круговой поляризации. Холестерический жидкий кристалл капиллярным образом вводился в ячейку с планарным сцеплением на поверхности. Мы использовали коммерческие ячейки производства Instec Inc. с ориентирующим слоем, благоприятствующим однородной планарной ориентации молекул на поверхности, самодельные планарные и клиновидные ячейки. Толщина ячеек варьировалась от 9 до 50 мкм. В клиновидных ячейках, в частности, определялся шаг спирали холестерика методом Кано–Гранжана [1]. Мы использовали поляризационный оптический микроскоп Olympus VX51, оборудованный видеокамерой и волоконным спектрометром Avantes. Наблюдения проводились в проходящем и отраженном свете, с линейной и круговой поляризацией света.

Нами исследовалось образование различных структур в зависимости от шага холестерика. Все исследованные смеси образуют холестерическую фазу. Изменяя содержание хирального вещества, мы изменяли величину шага холестерика p и спектральное положение фотонной запрещенной зоны $\lambda_B = pn$, где n – средний показатель преломления [3]. На рисунке 1а показана зависимость шага холестерика p и волнового числа $q = 2\pi/p$ от концентрации хиральной добавки X . Сплошные символы – результаты, полученные методом клина Кано–Гранжана для холестерика с шагом $p > 0.3$ мкм (рис. 1b). Полые символы – величины, определенные из измерений спектров селективного отражения холестерика с коротким шагом $p < 0.7$ мкм, рис. 1с. Данные, полученные двумя методами на одной и той же смеси, хорошо согласуются друг с другом (рис. 1а). Линейное увеличение q при увеличении X типично для смесей нематика с хиральными добавками [10]. Три структуры с 3D, 2D и 1D упорядочением образовывались из холестерика при нагреве вблизи перехода в изотропную фазу. В работе описываются их оптические и структурные особенности.

Трехмерные структуры (3D). В хиральных веществах с малым шагом холестерика (p меньше примерно 0.32 мкм, правая часть диаграммы рис. 1а) вблизи перехода в изотропную жидкость холестерик

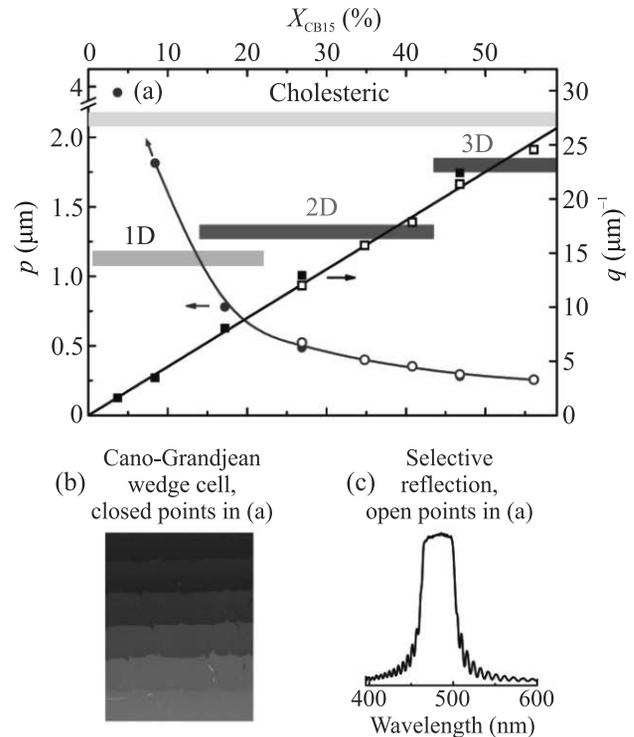


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость шага спирали p и волнового числа холестерика $q = 2\pi/p$ от содержания хиральной добавки X в нематическом жидком кристалле. Сплошные символы – данные, полученные методом Кано–Гранжана (рис. 1b). Полые символы – данные, полученные из измерения спектров селективного отражения (рис. 1с). Во всех смесях планарный холестерик существует при низкой температуре (желтая полоса). Различные структуры с трехмерным (3D), двумерным (2D) и одномерным (1D) упорядочением образуются вблизи перехода в изотропную фазу при изменении шага холестерической спирали: трехмерные Голубые Фазы (синяя полоса), двумерная структура (красная полоса), одномерная полосчатая структура (серая полоса)

трансформируется в трехмерные структуры: Голубая Фаза I (ВРI) и Голубая Фаза II (ВРII) [4–7]. На рисунке 2а, б показаны фотографии поликристаллического образца ВРI и монокристаллического образца ВРII. Локальное молекулярное и макроструктурное упорядочение в Голубых Фазах существенно отличаются от холестерика. Локальный минимум энергии соответствует двойной закрутке – повороту ориентации длинных осей молекул в двух перпендикулярных направлениях. Образование макроскопической кубической структуры происходит из-за геометрических фрустраций [3]. Цилиндры с двойной закруткой не могут заполнить трехмерное пространство. Одним из способов избежать фрустрации является образование топологических дефектов (дискли-

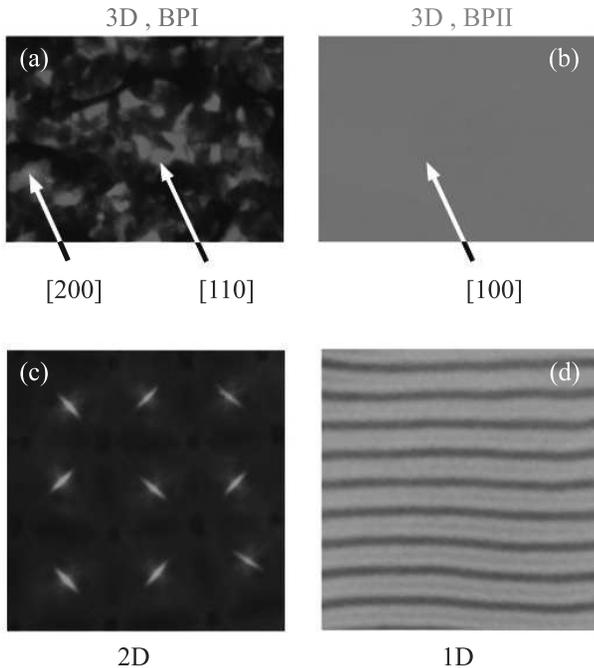


Рис. 2. (Цветной онлайн) Фотографии трехмерных (3D), двумерной (2D) и одномерной (1D) структур. (a) – Поликристаллическая текстура ВРІ; (b) – монокристаллическая пленка ВРІІ. Упорядоченные 2D (c) и 1D (d) структуры. Шаг спирали холестерика $p = 0.29$ мкм (3D), $p = 0.352$ мкм (2D) и $p = 4$ мкм (1D). Фотографии сняты в отражении (a)–(c) и в пропускании (d). Горизонтальный размер фотографий 60 мкм (a)–(c) и 23 мкм (d)

наций с силой $-1/2$), располагающихся между областями с двойной закруткой. В результате образуются регулярные кубические ячейки. Макроскопические кубические фазы также могут рассматриваться как структуры, образованные набором Фурье-гармоник с различным периодом и ориентацией. В настоящее время установлено, что ВРІ имеет объемноцентрированную кубическую ячейку (пространственная группа O^8), ВРІІ имеет простую кубическую ячейку (пространственная группа O^2), размер элементарных ячеек составляет несколько сотен нанометров. “Фоговая” фаза (ВРІІІ) образуется в веществах с малым шагом спирали и макроскопически изотропна [7]. В отличие от холестерика, где имеется единственная полоса селективного отражения, в трехмерных Голубых Фазах ВРІ и ВРІІ могут наблюдаться отражения от различных кристаллических плоскостей. Спектры отражения ВРІ и ВРІІ (рис. 2а, b) показаны на рис. 3а. В полидоменной структуре ВРІ (рис. 2а) различные цвета соответствуют кристаллическим плоскостям (110) и (200), ориентированным параллельно плоскости пленки. Дифракция разрешается от указанных на рис. 3а плоскостей. Моно-

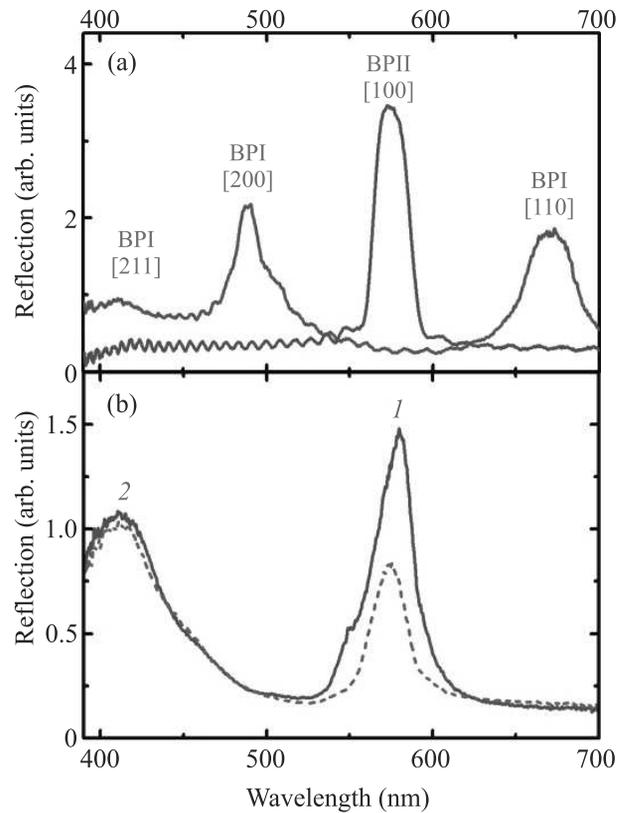


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Спектры отражения поликристаллической пленки ВРІ с отражениями [110], [200], [211] и монокристаллической пленки ВРІІ с отражением [100]. (b) – Спектры отражения двумерной структуры в свете правой круговой поляризации (сплошная кривая) и левой круговой поляризации (пунктирная кривая). В каждом спектре видны две полосы (1 и 2). Отношение длин волн максимумов двух полос в каждом спектре около 1.4. Шаг спирали холестерика $p = 0.29$ мкм (a) и $p = 0.352$ мкм (b)

доменный образец ВРІІ имеет единичный пик отражения [100].

При увеличении температуры наблюдается последовательность переходов холестерик–ВРІ–ВРІІ–ВРІІІ. На фазовой диаграмме температура – концентрация хиральной добавки при уменьшении хиральности (увеличении шага спирали холестерика) вблизи перехода в изотропную жидкость Голубые Фазы появляются в последовательности ВРІІІ–ВРІІ–ВРІ, т.е. макроскопически изотропная структура – простая кубическая – объемноцентрированная кубическая [7]. Подобного типа последовательность соответствует общей фазовой диаграмме и последовательности фаз, следующей из теории Ландау слабой кристаллизации [4, 11]. Нами продолжена и обобщена эта последовательность переходов при уменьшении хиральности, включающая в себя не только трехмер-

ные 3D фазы, но и структуры меньшей размерности (2D и 1D).

Двумерная структура (2D). Ситуация со структурами, образующимися при большем шаге спирали (p больше, чем примерно $0.32 \mu\text{м}$), более сложная. Ранее в литературе описывалось образование различных необычных текстур [12–26], в том числе в свободно подвешенных пленках [27–29]. Однако не всегда ясно, соответствуют ли эти текстуры одним и тем же или различным структурам. Отчасти причина состоит в том, что измерения проводились на неупорядоченных образцах. Нам удалось получить двумерную упорядоченную структуру вблизи перехода в изотропную фазу [30]. Медленный нагрев холестерика (как правило, со скоростью около $0.1^\circ/\text{мин}$) позволил получить области с регулярно упорядоченной системой доменов (рис. 2с). Спектры отражения двумерной структуры в правой и левой круговой поляризации показаны на рис. 3б. Вытянутые зеленые домены (рис. 2с) сохраняют ориентацию планарного холестерика вблизи поверхности и имеют ту же длину волны отражения света, что и холестерик (около 575 нм в нашем случае, рис. 3б). Широкая полоса при меньших длинах волн связывается с двойными отражениями от областей, где ось холестерика образует угол примерно 45° по отношению к плоскости образца [30]. Обнаружено, что упорядоченные двумерные области легче образуются, когда холестерическая фаза имеет планарную ориентацию вблизи поверхности. Двумерная структура стабильна при высокой температуре (в температурном интервале около 1°C вблизи перехода холестерик–изотропная жидкость) и может сохраняться как метастабильная структура при низкой температуре (вдалеке от перехода). Шаг холестерика существенно меньше, чем период квадратной решетки и толщина пленки. Иногда мы наблюдали образование другой текстуры, образованной большими доменами с изогнутыми границами (рис. 4). Внутри больших доменов в отражении видна точечная особенность (рис. 4а). Ее цвет и длина волны отражения соответствуют планарному холестерика. В ряде случаев большие домены образуют пространственно упорядоченные группы (рис. 4с). Особенности этой структуры довольно интересны и напоминают текстуру конфокальных доменов в смектических жидких кристаллах [1]. Объяснение этих текстур (связанное с тем обстоятельством, что на масштабах больше шага спирали холестерик в ряде случаев можно рассматривать эквивалентным смектику, см., например, [3]) может быть предметом дальнейших теоретических исследований.

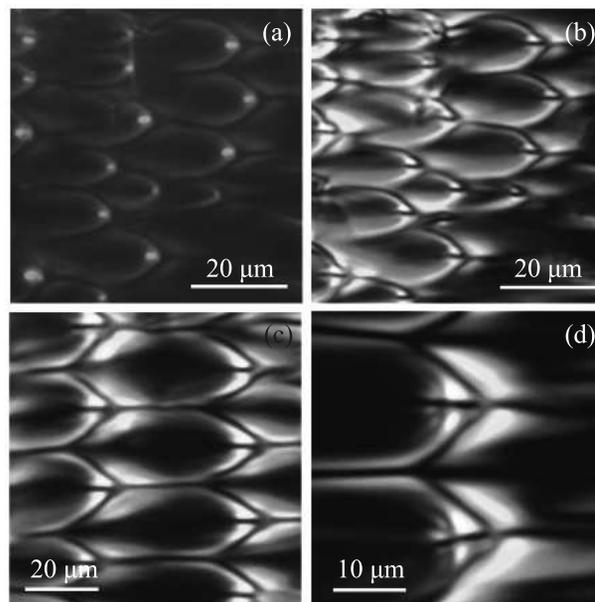


Рис. 4. (Цветной онлайн) Текстура, образованная из холестерика с шагом $p = 0.352 \mu\text{м}$. Картина напоминает текстуру конфокальных доменов в смектических жидких кристаллах. Отражение (а), пропускание (б)–(д), поляризаторы скрещены. Домены могут образовывать пространственно упорядоченные группы (с). (д) – Два домена показаны в увеличенном масштабе

Одномерная структура (1D). При большом шаге холестерика (p больше $1 \mu\text{м}$) образуется одномерная полосчатая структура (рис. 2d). Период решетки – примерно половина шага холестерической спирали. Изогнутые полосчатые и более сложные структуры образуются из капель холестерика [31]. В наших экспериментах мы также наблюдали подобные структуры. Имеется несколько объяснений образования полосчатых структур в холестерике [31–34].

Обсудим теперь причины образования модулированных структур, сделав упор на двумерное квадратное упорядочение. Некоторые оптические особенности нашей двумерной структуры напоминают конфокальные домены [12–15]. Конфокальные домены были впервые обнаружены в смектических жидких кристаллах, и их структуру объяснили Фридель, Гражан [35, 36] и Брэгг [37] как образованную комплементарными (сопряженными) дефектами в виде эллипса и гиперболы. Розенблат и соавторы [13] предложили модель конфокальной структуры с двумя сопряженными параболами для объяснения текстур, наблюдавшихся в смектической и холестерической фазах. Существенный вклад в понимание конфокальных холестерических доменов внесли, в частности, Булиган [12, 38] и Яда, Ямамото и Йокояма

[39, 40]. Одним из главных результатов Булигана [12] было то, что структуры на противоположных сторонах жидкокристаллической пленки сдвинуты на половину периода двумерного упорядочения. Нами также обнаружена эта особенность у двух поверхностей в нашей двумерной структуре.

Двумерные и особенно одномерные структуры часто образуются в электрическом поле. В частности, их образование связано с эффектом Хельфриха–Юро [1, 3]. Детальные исследования индуцированных полем двумерной и одномерной структур провели Сенюк, Смалюх, и Лаврентович [17] с использованием флюоресцентной конфокальной поляризованной микроскопии. Двумерные структуры имели квадратную решетку в плоскости холестерической пленки. Образование доменов зависело от поверхностного сцепления на границах ячейки. В одномерной структуре наблюдались периодически расположенные параболические дефекты в вертикальном сечении пленки с центрами изгиба в фокусе параболы ($\lambda^{+1/2}$ дисклинация) и вблизи поверхности ($\lambda^{-1/2}$ дисклинация) [17]. Однако в этих экспериментах двумерная и одномерная структуры были индуцированы электрическим полем с переходом от двумерной к одномерной при увеличении поля. В нашем случае переход между двумерной и одномерной структурами происходит спонтанно при увеличении шага холестерика без приложения внешних сил.

В недавних работах Селинджер [41] и Лонг и Селинджер [42] предложили новый подход для объяснения множества различных модулированных структур в хиральных нематиках и роль фрустрации в их образовании. Основным результатом работ [41, 42] – то, что хиральный нематик имеет тенденцию образовывать локальную конфигурацию с двойной закруткой из-за так называемого слагаемого седловидного изгиба в упругой энергии (модуль Франка K_{24}). Поскольку эта структура не может заполнить трехмерное пространство, она должна быть фрустрирована. Поэтому обычный холестерик образуется как один из вариантов снятия фрустраций. Как показано в [41, 42], очень слабое ориентационное сцепление на границе или свободные поверхности позволяют также избежать фрустраций. Возможно, что похожий механизм может реализовываться в наших экспериментах вблизи фазового перехода в изотропную фазу. В результате двумерная структура заменяет трехмерные Голубые Фазы при большом шаге холестерика.

В заключение, вблизи перехода в изотропную жидкость три различные структуры могут образовываться из холестерической фазы: трехмерные (3D)

Голубые Фазы при коротком шаге спирали, двумерная (2D) структура в плоскости пленки при промежуточном шаге и одномерная (1D) структура при большом шаге. Следует отметить, что все эти структуры и их последовательность могут быть получены с использованием одного и того же нематического вещества с различной величиной хиральной добавки в ячейках одной и той же толщины, используя коммерческие ячейки, самодельные ячейки и даже ячейки без специальной обработки поверхности. Это позволяет предположить, что наблюдаемые явления связаны с универсальными свойствами хиральных материалов. В настоящее время упорядочение конфокальных доменов – наиболее подходящая модель для объяснения особенностей наблюдаемых двумерных структур, а фрустрация может рассматриваться как причина их образования.

Работа выполнена в рамках государственного задания ИФТТ РАН.

1. M. Kleman and O.D. Lavrentovich, *Soft Matter Physics: An Introduction*, Springer, N.Y. (2003).
2. I. Dierking, *Textures of Liquid Crystals*, WILEY-VCH, Weinheim (2003).
3. P. Oswald and P. Pieranski, *Nematic and Cholesteric Liquid Crystals: Concepts and Physical Properties Illustrated by Experiments*, Taylor and Francis, Boca Raton (2005).
4. С. А. Бразовский, С. Г. Дмитриев, *ЖЭТФ* **69**, 979 (1975).
5. S. Meiboom and M. Sammon, *Phys. Rev. A* **24**, 468 (1981).
6. V. A. Belyakov and V. E. Dmitrienko, *Sov. Phys. Usp.* **28**, 535 (1985).
7. D. C. Wright and N. D. Mermin, *Rev. Mod. Phys.* **61**, 385 (1989).
8. В. А. Чижииков, *ЖЭТФ* **159**, 656 (2021).
9. V. E. Dmitrienko, E. N. Ovchinnikova, J. Kokubun, and K. Ishida, *Pis'ma v ZhETF* **92**, 424 (2010).
10. S.-W. Ko, S.-H. Huang, A. Y.-G. Fuh, and T.-S. Lin, *Opt. Express* **17**, 15926 (2009).
11. E. I. Kats, V. V. Lebedev, and A. R. Muratov, *Phys. Rep.* **228**, 1 (1993).
12. Y. Bouligand, *Journal de Physique* **33**, 715 (1972).
13. Ch. S. Rosenblatt, R. Pindak, N. A. Clark, and R. B. Meyer, *Journal de Physique* **38**, 1105 (1977).
14. W. J. Benton, E. W. Toor, C. A. Miller, and T. Fort, *Le journal de Physique* **40**, 107 (1979).
15. A. M. Donald, C. Viney, and A. P. Ritter, *Liq. Cryst.* **1**, 287 (1986).
16. R. Meister, M.-A. Hallé, H. Dumoulin, and P. Pieranski, *Phys. Rev. E* **54**, 3771 (1996).

17. B. I. Senyuk, I. I. Smalyukh, and O. D. Lavrentovich, *Phys. Rev. E* **74**, 011712 (2006).
18. G. Agez, R. Bitar, and M. Mitov, *Soft Matter* **7**, 2841 (2011).
19. B. Zappone, C. Meyer, L. Bruno, and E. Lacaze, *Soft Matter* **8**, 4318 (2012).
20. A. Bobrovsky, O. Sinityna, S. Abramchuk, I. Yaminsky, and V. Shibaev, *Phys. Rev. E* **87**, 012503 (2013).
21. R. S. Zola, L. R. Evangelista, Y.-C. Yang, and D.-K. Yang, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 057801 (2013).
22. A. Nych, J.-I. Fukuda, U. Ognysta, S. Zumer, and I. Mušević, *Nat. Phys.* **13**, 1215 (2017).
23. H. K. Bisoyi, T. J. Bunning, and Q. Li, *Adv. Mater.* **30**, 1706512 (2018).
24. A. Jullien, A. Scarangella, U. Bortolozzo, S. Residori, and M. Mitov, *Soft Matter* **15**, 3256 (2019).
25. M. O. Lavrentovich and L. Tran, *Phys. Rev. Research* **2**, 023128 (2020).
26. W.-S. Wei, J. Jeong, P. J. Collings, and A. G. Yodh, *Soft Matter* **18**, 4360 (2022).
27. J.-C. Loudet, P. V. Dolganov, P. Patrício, H. Saadaoui, and P. Cluzeau, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 117802 (2011).
28. A. Choudhary, S. Kumar, A. Bawa, S. P. Singh, A. K. Thakur, Rajesh, and A. M. Biradar, *Phys. Rev. E* **105**, 044706 (2022).
29. П. В. Долганов, В. К. Долганов, Е. И. Кац, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 236 (2022).
30. P. V. Dolganov, R. D. Baklanova, and V. K. Dolganov, *Phys. Rev. E* **106**, 014703 (2022).
31. X. Du, F. Yang, Y. Liu, H. F. Gleeson, and D. Luo, *Langmuir* **39**, 1611 (2023).
32. I. Rault and P. E. Cladis, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **15**, 1 (1971).
33. P. E. Cladis and M. Kleman, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **16**, 1 (1972).
34. О. О. Прищепа, В. С. Сутормин, М. Н. Крахалев, А. А. Иваненко, А. Д. Шефер, В. Я. Зырянов, *Жидкие кристаллы и их практическое использование* **22**, 111 (2022).
35. G. Friedel and F. Grandjean, *Bull. Soc. Fr. Miner. Cristallogr.* **33**, 409 (1910).
36. G. Friedel, *Ann. Phys.* **18**, 273 (1922).
37. W. Bragg, *Trans. Faraday Soc.* **29**, 1056 (1933).
38. Y. Bouligand, *Journal de Physique* **34**, 603 (1973).
39. M. Yada, J. Yamamoto, and H. Yokoyama, *Langmuir* **18**, 7438 (2002).
40. M. Yada, J. Yamamoto, and H. Yokoyama, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **409**, 119 (2004).
41. J. V. Selinger, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **13**, 49 (2022).
42. C. Long and J. V. Selinger, *Soft Matter* **19**, 519 (2023).

Ультразвуковое спиновое эхо, обусловленное необратимой фазовой релаксацией

С. В. Сазонов¹⁾

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

^{*}Московский авиационный институт (Национальный исследовательский университет), 125993 Москва, Россия

Поступила в редакцию 13 февраля 2023 г.

После переработки 1 марта 2023 г.

Принята к публикации 1 марта 2023 г.

Предсказана возможность генерации первичного ультразвукового эха в системе эквидистантных зеемановских триплетов благодаря наличию необратимой фазовой релаксации. Исчезновение фазовой релаксации влечет за собой исчезновение сигнала эха. Механизм данного эффекта заключается в деструктивной интерференции излучающих в противофазе двух разрешенных квантовых переходов. Различие времен фазовой релаксации на данных переходах приводит к неполному гашению результирующей когерентности, вследствие чего порождается сигнал эха.

DOI: 10.31857/S1234567823070108, EDN: kdpzna

1. Введение. Физические явления типа эха возникают благодаря когерентности атомных состояний, которая наводится в среде импульсами различной физической природы. Для фотонного эха речь идет о лазерных импульсах видимого и инфракрасного диапазонов [1–4]. В случае эффектов спинового эха ядерной и электронной природы диапазон зондирующих электромагнитных импульсов простирается от радио- до микроволновых частот [5, 6]. Этот же частотный диапазон ультразвуковых импульсов задействован в формировании фононного эха в парамагнитных кристаллах [7–10].

Сигналы эха демонстрируют сохранение памяти о предыстории воздействия на различные среды [3, 11]. Поэтому эффекты эха могут найти приложения в системах хранения и обработки информации.

Обычно для формирования эхо-сигналов на среду подаются когерентные классические импульсы, характеризующиеся очень узким частотным спектром. С появлением фемтосекундных лазеров появилась возможность использовать широкополосные зондирующие импульсы с шумовым спектральным распределением энергии по спектру [12, 13]. Такие некогерентные сигналы также способны наводить когерентность в атомных состояниях различных сред [14–16]. Эхо-отклики, порождаемые данными сигналами, называются некогерентным эхо [17–21]. В данном случае некогерентностью обладают подаваемые на среду импульсы. В этой связи возникает естественный,

но в то же время парадоксальный вопрос: способны ли некогерентные процессы, происходящие в среде, быть причиной появления когерентных сигналов эха?

Хорошо известно, что атомные когерентные состояния разрушаются под действием необратимой фазовой релаксации. Например, в двухуровневых атомах фазовая релаксация приводит к очевидному уменьшению интенсивности эхо-откликов [3, 4]. В многоуровневых средах процессы фазовой релаксации могут дополняться квантовой внутриатомной интерференцией различных квантовых переходов. Поэтому здесь следует ожидать нетривиальных явлений, связанных с влиянием фазовой релаксации на свойства эхо-сигналов после воздействия на среду когерентными резонансными импульсами.

Настоящая работа посвящена исследованию роли необратимой фазовой релаксации в формировании сигналов спин-фононного эха при воздействии на парамагнитный кристалл когерентными ультразвуковыми импульсами.

2. Основные уравнения. Рассмотрим помещенный в магнитное поле \mathbf{B} кубический кристалл, содержащий в качестве примесей парамагнитные ионы. Известно, что наиболее сильное взаимодействие с колебаниями кристаллической решетки испытывают парамагнитные ионы, обладающие эффективным спином $S = 1$ [22]. В этом случае зеемановское расщепление приводит к формированию триплета – трех стационарных состояний, различающихся проекцией $S_z = 0, \pm 1$ эффективного спина на направ-

¹⁾e-mail: sazonov.sergey@gmail.com

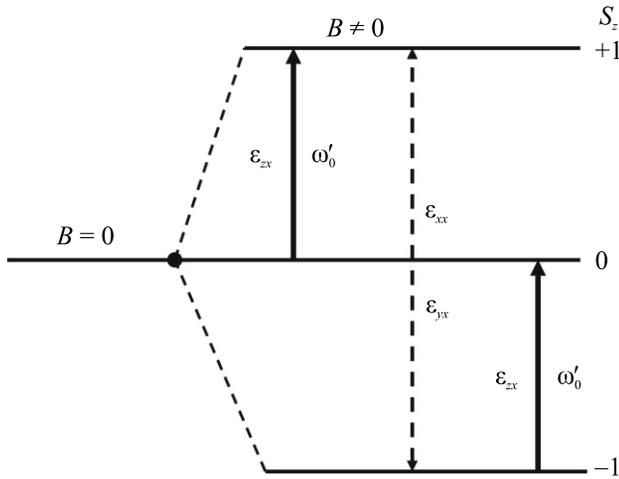


Рис. 1. Расщепление квантового уровня на три зеемановских подуровня парамагнитного иона с эффективным спином $S = 1$. Разрешенные спин-фононные переходы для волн поперечного ультразвука ε_{zx} , поляризованных параллельно магнитному полю \mathbf{B} , обозначены жирными стрелками. Спин-фононные переходы для продольных ε_{xx} и поперечных ε_{yx} ультразвуковых волн, поляризованных перпендикулярно к \mathbf{B} , обозначены пунктирной стрелкой

ление \mathbf{B} (рис. 1). Пусть при этом магнитное поле направлено вдоль оси z , являющейся одной из осей симметрии четвертого порядка кубического кристалла. В то же время подаваемые на среду ультразвуковые импульсы распространяются вдоль оси x , перпендикулярной к z . Данные импульсы сдвиговой деформации, являясь поперечными, поляризованы вдоль магнитного поля.

В описанной выше ситуации гамильтонов оператор для выделенного иона, взаимодействующего с локальными деформациями кубического кристалла, запишем следующим образом [22]:

$$\hat{H} = \hbar\omega'_0\hat{S}_z + \hat{H}_{\text{int}}, \quad (1)$$

где \hbar – постоянная Планка, ω'_0 – частота расщепления в зеемановском триплете (рис. 1), \hat{H}_{int} – оператор Гамильтона, описывающий спин-фононное взаимодействие, имеет вид

$$\hat{H}_{\text{int}} = \frac{1}{2}G_{\perp}(\hat{S}_x\hat{S}_z + \hat{S}_z\hat{S}_x)\frac{\partial u_z}{\partial x}, \quad (2)$$

G_{\perp} – постоянная спин-фононной связи, u_z – проекция локального смещения узлов кристаллической ре-

шетки на направление \mathbf{B} , \hat{S}_x и \hat{S}_z – трехрядные матрицы, соответствующие спину $S = 1$ [22]:

$$\hat{S}_x = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{S}_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Спин-фононное взаимодействие здесь возникает благодаря механизму ван Флека [10, 22]. Согласно данному механизму локальные искажения кристаллической решетки, порождаемые ультразвуковыми импульсами, приводят к появлению градиентов внутрикристаллического электрического поля. В свою очередь данные градиенты вызывают электрические квадрупольные переходы между зеемановскими подуровнями парамагнитного иона.

В соответствии со значениями проекций эффективного спина на ось z для различных квантовых состояний парамагнитного иона (рис. 1) матрицу плотности представим в виде

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{++} & \rho_{+0} & \rho_{+-} \\ \rho_{0+} & \rho_{00} & \rho_{0-} \\ \rho_{-+} & \rho_{-0} & \rho_{--} \end{pmatrix}. \quad (4)$$

Здесь нижние индексы “+”, “0” и “–” обозначают соответственно проекции эффективного спина +1, 0 и –1. При этом выполняется условие нормировки $\rho_{++} + \rho_{00} + \rho_{--} = 1$.

Используя (1)–(4), запишем уравнения для элементов $\rho_{\mu\nu}$ ($\mu, \nu = -, 0, +$) матрицы плотности $\hat{\rho}$ в виде

$$\frac{\partial \rho_{\mu\nu}}{\partial t} = -i(\omega'_{\mu\nu} - i/T_{\mu\nu})\rho_{\mu\nu} - \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{\text{int}}, \hat{\rho}]_{\mu\nu}. \quad (5)$$

Здесь $\omega'_{+0} = \omega'_{0-} = \omega'_0$, $\omega'_{+-} = 2\omega'_0$, $\omega'_{++} = \omega'_{00} = \omega'_{--} = 0$, $T_{\mu\nu} = T_{\nu\mu}$ – время необратимой фазовой релаксации на квантовом переходе $\mu \leftrightarrow \nu$.

В (5) мы пренебрегли релаксацией населенностей стационарных квантовых зеемановских состояний, так как соответствующие времена значительно короче времен $T_{\mu\nu}$ фазовой релаксации [23]. Кроме того, мы полагаем, что характерное время Δt проведения эхо-эксперимента также значительно больше, чем времена релаксации населенностей зеемановских подуровней.

Используя далее стандартный полуклассический подход, дополним (1) и (2) классическим гамильтонианом для поля упругих деформаций поперечных ультразвуковых импульсов $H_a = \int \mathcal{H}_a d^3\mathbf{r}$, где интегрирование ведется по всему объему образца среды,

а плотность гамильтониана \mathcal{H}_a определяется выражением

$$\mathcal{H}_a = \frac{p_z^2}{2\rho} + \frac{\rho}{2} a_\perp^2 \left(\frac{\partial u_z}{\partial x} \right)^2, \quad (6)$$

где ρ – плотность среды, p_z – декартова компонента плотности импульса поперечных локальных смещений кристалла, a_\perp – скорость поперечного звука в среде, окружающей рассматриваемый парамагнитный кристалл.

При экспериментальном детектировании эхосигналов эффекты распространения ультразвука в рассматриваемом парамагнитном кристалле не являются существенными. Регистрация эхо-откликов обычно происходит вдали от данного кристалла. Поэтому гамильтониан (6) содержит параметры среды, находящейся между парамагнитным кристаллом и датчиком эхо-сигналов.

Используем уравнения Гамильтона для механики сплошных сред [24]

$$\frac{\partial p_z}{\partial t} = -\frac{\delta}{\delta u_z} (H_a + \langle \hat{H}_{\text{int}} \rangle), \quad \frac{\partial u_z}{\partial t} = \frac{\delta}{\delta p_z} (H_a + \langle \hat{H}_{\text{int}} \rangle). \quad (7)$$

Здесь $\langle \hat{H}_{\text{int}} \rangle = Sp(\hat{\rho} \hat{H}_{\text{int}})$ – квантовое среднее оператора Гамильтона, описывающего взаимодействие эффективного спина с полем поперечных деформаций.

Отсюда, а также из (2)–(4) приходим к волновому уравнению

$$\begin{aligned} & \frac{\partial^2 \varepsilon_{zx}}{\partial t^2} - a_\perp^2 \frac{\partial^2 \varepsilon_{zx}}{\partial x^2} = \\ & = \frac{nG_\perp}{8\sqrt{2}\rho} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \int_{-\infty}^{+\infty} (\rho_{+0} + \rho_{0+} - \rho_{0-} - \rho_{-0}) g(\Delta) d\Delta, \end{aligned} \quad (8)$$

где $\varepsilon_{zx} = 0.5\partial u_z/\partial x$ – относительная деформация сдвига, n – концентрация парамагнитных ионов, $g(\Delta)$ – функция контура неоднородного уширения на квантовом переходе $- \leftrightarrow +$, центрированная на частоте ω_0 , $\Delta = \omega'_0 - \omega_0$ – отстройка квантовых переходов $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$ выделенного парамагнитного иона от центральной частоты спектральной линии.

Неоднородное волновое уравнение (8) описывает распространение поперечного ультразвука в среде, окружающей парамагнитный кристалл, который является источником излучения эхо-откликов. Параметры данного источника содержатся в правой части (8).

Используем теперь стандартное приближение медленно меняющихся амплитуд (ММА) [25], записывая

$$\begin{aligned} \varepsilon_{zx} &= \psi e^{i\omega_0(t-x/a_\perp)} + \text{c.c.}, \\ \rho_{-+} &= R_{-+} e^{2i\omega_0(t-x/a_\perp)}, \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \rho_{-0} &= R_{-0} e^{i\omega_0(t-x/a_\perp)}, \\ \rho_{0+} &= R_{0+} e^{i\omega_0(t-x/a_\perp)}, \end{aligned} \quad (10)$$

где ψ и $R_{\mu\nu}$ – комплексные ММА импульсов сдвиговой деформации и недиагональных элементов матрицы плотности соответственно ($\mu, \nu = -, 0, +$), несущая частота ω_0 данных импульсов совпадает с центральной частотой контуров неоднородного уширения для переходов $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$.

При учете (9), (10) и приближения ММА из (8) приходим к волновому уравнению для комплексной амплитуды излучаемых возбужденной средой сигналов

$$\frac{\partial \psi}{\partial x} + \frac{1}{a_\perp} \frac{\partial \psi}{\partial t} = i \frac{nG_\perp \omega_0}{16\sqrt{2}\rho a_\perp^3} \int_{-\infty}^{+\infty} (R_{0+} - R_{-0}) g(\Delta) d\Delta. \quad (11)$$

В свою очередь из (2)–(5), (9) и (10) после пренебрежения в материальных уравнениях быстро осциллирующими слагаемыми, считая заданную амплитуду ψ воздействующих на среду импульсов вещественной, получим

$$\frac{\partial R_{\mu\nu}}{\partial t} = -i(\omega'_{\mu\nu} - \omega_{\mu\nu} - i/T_{\mu\nu}) R_{\mu\nu} + i \frac{G_\perp \psi}{2\sqrt{2}\hbar} [\hat{R}, \hat{Q}]_{\mu\nu}, \quad (12)$$

где

$$\begin{aligned} \hat{R} &= \begin{pmatrix} \rho_{++} & R_{+0} & R_{+-} \\ R_{0+} & \rho_{00} & R_{0-} \\ R_{-+} & R_{-0} & \rho_{--} \end{pmatrix}, \\ \hat{Q} &= \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & -1 \\ 0 & -1 & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (13)$$

Из (13) видно, что в выбранной геометрии подаваемые на среду поперечные ультразвуковые импульсы формируют каскадную схему квантовых переходов $- \rightarrow 0 \rightarrow +$ (рис. 1). При этом переход $- \leftrightarrow +$ оказывается запрещенным.

3. Режимы эха. Для исследования режимов эха разделим динамику эффективных спинов парамагнитных ионов на периоды возбуждения и периоды свободной эволюции.

Будем считать ниже, что длительности τ_p воздействующих импульсов удовлетворяют условию $\tau_p \ll \ll T_{\mu\nu}, T_{\mu\nu}^*$ ($\mu, \nu = 0, +, -$), где $T_{\mu\nu}^*$ – времена обратимой фазовой релаксации, обусловленной неоднородным уширением квантовых переходов $\mu \leftrightarrow \nu$. Как результат, ширины $\delta\omega_p \sim 1/\tau_p$ импульсных спектров значительно превышают неоднородные ширины $\delta\omega \sim 1/T_{\mu\nu}^*$ данных переходов. Поэтому при описании возбуждения парамагнитных ионов пренебрежем в (12) частотными отстройками $\omega'_{\mu\nu} - \omega_{\mu\nu}$ от

соответствующих резонансов и положим формально $T_{\mu\nu} = \infty$. В этом случае систему (12) можно записать в символическом виде

$$\frac{\partial \hat{R}}{\partial t} = i \frac{G_{\perp} \psi}{2\sqrt{2}\hbar} [\hat{R}, \hat{Q}]. \quad (14)$$

Решение операторного уравнения (14) можно записать в виде

$$\hat{R}(t) = \hat{U}(t, t_0) \hat{R}(t_0) \hat{U}^+(t, t_0), \quad (15)$$

где

$$\hat{U}(t, t_0) = e^{-i\hat{S}}, \quad \hat{S} = \hat{Q} \frac{G_{\perp}}{2\sqrt{2}\hbar} \int_{t_0}^t \psi dt', \quad (16)$$

t_0 – время начала воздействия импульса.

Возводя последовательно в степень матрицу \hat{Q} , легко для целых значений k придти к соотношениям $\hat{Q}^{2k+1} = 2^k \hat{Q}$, $\hat{Q}^{2k+2} = 2^k \hat{Q}^2$. Тогда, разлагая в ряд Тейлора экспоненту от матрицы $e^{-i\hat{S}}$, после его суммирования с учетом второго выражения (16) будем иметь для оператора эволюции

$$\hat{U}(t, t_0) = \hat{I} - \hat{Q}^2 \sin^2 \frac{\theta}{2} - i \frac{\hat{Q}}{\sqrt{2}} \sin \theta, \quad (17)$$

где \hat{I} – единичная матрица,

$$\theta = \frac{G_{\perp}}{2\hbar} \int_{t_0}^t \psi dt'. \quad (18)$$

Для периодов свободной эволюции из (12) при $\psi = 0$ после интегрирования получим

$$\begin{aligned} R_{-0}(t) &= R_{-0}(t_1) e^{i\Delta(t-t_1)} e^{-(t-t_1)/T_{-0}}, \\ R_{0+}(t) &= R_{0+}(t_1) e^{i\Delta(t-t_1)} e^{-(t-t_1)/T_{0+}}, \\ R_{-+}(t) &= R_{-+}(t_1) e^{2i\Delta(t-t_1)} e^{-(t-t_1)/T_{-+}}, \end{aligned} \quad (19)$$

где t_1 – время начала этапа свободной эволюции.

При этом диагональные элементы ρ_{--} , ρ_{00} и ρ_{++} остаются постоянными.

Важно заметить, что времена T_{-0} и T_{0+} фазовой релаксации на переходах $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$ соответственно не могут сильно отличаться друг от друга, так как равны друг другу частоты данных переходов, а также эти переходы обладают одной и той же постоянной G_{\perp} спин-фононной связи. Отличие между отмеченными временами может быть обусловлено каналами релаксации, вызванными взаимодействием квантовых переходов с полем продольной деформации ε_{xx} , а также с поперечными деформациями

ε_{yx} , поляризованными перпендикулярно магнитному полю. Такие фононы связаны с переходом $- \leftrightarrow +$ [23, 26] (рис. 1), который может оказывать влияние на времена фазовой релаксации T_{-0} и T_{0+} . Небольшое отличие во временах релаксации T_{-0} и T_{0+} может быть вызвано еще тем, что переход $0 \leftrightarrow +$ лежит выше по энергии, чем переход $- \leftrightarrow 0$. Суммируя сказанное, предположим, что выполняется неравенство

$$|T_{-0} - T_{0+}| \ll T_{-0}, T_{0+}. \quad (20)$$

Пусть в момент времени $t = 0$ на среду воздействует первый ультразвуковой импульс длительности τ_1 . Затем, спустя промежуток времени τ , соответствующий первому этапу свободной эволюции, среда подвергается воздействию второго импульса, длительность которого равна τ_2 . После этого, при $t = \tau + \tau_1 + \tau_2$, начинается второй этап свободной эволюции, во время которого формируются сигналы первичного эха (рис. 2). При этом с хорошей точностью выполняется неравенство $\tau \gg \tau_1, \tau_2$.

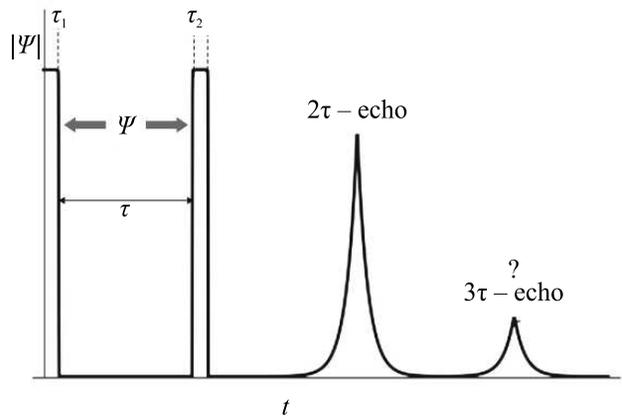


Рис. 2. Схематическое изображение временной последовательности воздействия на парамагнетик двух поперечных ультразвуковых импульсов с огибающей ψ и длительностями τ_1 и τ_2 , разделенных промежутком времени τ , а также появления двух эхо-сигналов в моменты времени 2τ и 3τ . Возникновение 3τ -эха возможно только при различии времен необратимой фазовой релаксации на квантовых переходах $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$

Будем считать, что при $t = 0$ матрица \hat{R} определяется только начальными населенностями w_+ , w_0 и w_- стационарных спиновых состояний парамагнитных ионов и поэтому имеет вид

$$\hat{R}(0) = \begin{pmatrix} w_+ & 0 & 0 \\ 0 & w_0 & 0 \\ 0 & 0 & w_- \end{pmatrix}.$$

Применяя в обозначенной последовательности формулы (15), (17) и (19), найдем выражения для элементов матрицы \hat{R} в моменты времени $t > \tau + \tau_1 + \tau_2$.

Из правой части волнового уравнения (11) видно, что вклад в ультразвуковые сигналы откликов среды дают разности $R_{0+} - R_{-0}$. Тогда для соответствующих выражений, вносящих вклады в эхо, найдем

$$(R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}} = (R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}}^{2\tau} + (R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}}^{3\tau}, \quad (21)$$

где эхо-отклики в моменты времени 2τ и 3τ имеют соответственно вид

$$(R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}}^{2\tau} = if_{2\tau} e^{-i\Delta(t-2\tau-\tau_1-\tau_2)} e^{-(t-\tau_1-\tau_2)/T_2}, \quad (22)$$

$$(R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}}^{3\tau} = if_{3\tau} e^{-\tau/T_{-+}} \times \left(e^{-(t-\tau-\tau_1-\tau_2)/T_{0+}} - e^{-(t-\tau-\tau_1-\tau_2)/T_{-0}} \right) \times e^{-i\Delta(t-3\tau-\tau_1-\tau_2)}. \quad (23)$$

Здесь

$$f_{2\tau} = \frac{w_- - w_+}{\sqrt{2}} \sin \theta_1 \sin^2 \frac{\theta_2}{2},$$

$$f_{3\tau} = \frac{w_- - 2w_0 + w_+}{4\sqrt{2}} \sin^2 \theta_1 \sin \theta_2 \sin^2 \frac{\theta_2}{2}, \quad (24)$$

$\theta_1 = \frac{G_+}{2\hbar} \int_0^{\tau_1} \psi dt$ и $\theta_2 = \frac{G_+}{2\hbar} \int_{\tau+\tau_1}^{\tau+\tau_1+\tau_2} \psi dt$ – “площади” первого и второго возбуждающих импульсов соответственно.

При записи выражения для $(R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}}^{2\tau}$, воспользовавшись неравенством (20), мы в целях простоты положили приближенно $T_{-0} \approx T_{0+} = T_2$. Если данным приемом воспользоваться в выражении для $(R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}}^{3\tau}$, то придем к равенству $(R_{0+} - R_{-0})_{\text{echo}}^{3\tau} = 0$. Поэтому для возникновения 3τ -эха необходимо выполнение условия $T_{-0} \neq T_{0+}$. Если в (23) вовсе пренебречь фазовой релаксацией, т.е. положить формально $T_{-0} = T_{0+} = \infty$, то данный эхо-сигнал также исчезает.

Для решения волнового уравнения (11) будем считать, что дистанции x , на которых регистрируются эхо-сигналы, значительно превышают размер l парамагнитного кристалла в направлении их распространения, а среда вне данного кристалла не содержит парамагнитных ионов. В этом случае парамагнитный кристалл можно представить как сосредоточенный в точке $x = 0$ источник. Поэтому в правой части (11) с хорошей точностью справедлива замена $n \rightarrow n\delta(x)$, где $\delta(x)$ – дельта-функция Дирака. Тогда решением неоднородного волнового уравнения

(11) является умноженная на l его правая часть, в которой произведена замена $t \rightarrow t - x/a_{\perp}$. В качестве среды, окружающей парамагнитный кристалл, может быть использована любая среда, в которой способны распространяться поперечные ультразвуковые волны. Удобнее всего здесь использовать изотропное твердое тело, в котором скорость a_{\perp} не зависит от направления распространения поперечной волны.

Суммируя сказанное в предыдущем абзаце, а также используя (22)–(24), для моментов времени $2\tau + x/a_{\perp}$ и $3\tau + x/a_{\perp}$ в месте их регистрации, на расстоянии x от парамагнитного кристалла, получим соответственно

$$\psi_{2\tau} = -\frac{nG_{\perp}\omega_0 l}{32\rho a_{\perp}^3} \frac{\sinh \zeta}{\cosh \zeta + 1/2} \sin \theta_1 \sin^2 \frac{\theta_2}{2} e^{-2\tau/T_2}, \quad (25)$$

$$\psi_{3\tau} = -\frac{nG_{\perp}\omega_0 l}{128\rho a_{\perp}^3} \frac{\cosh \zeta - 1}{\cosh \zeta + 1/2} \times \sin^2 \theta_1 \sin \theta_2 \sin^2 \frac{\theta_2}{2} e^{-\tau/T_{-+}} (e^{-2\tau/T_{0+}} - e^{-2\tau/T_{-0}}), \quad (26)$$

где $\zeta = \hbar\omega_0/k_B T$, k_B – постоянная Больцмана, T – температура парамагнитного кристалла.

Здесь мы использовали больцмановский закон распределения начальных населенностей спиновых подуровней.

Сосредоточим основное внимание на сигнале 3τ -эха. Как было сказано выше, для возникновения сигнала эха в момент времени $3\tau + x/a_{\perp}$ принципиально необходимо наличие фазовой релаксации. При этом времена релаксации на переходах $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$, как видно из (26), должны отличаться друг от друга. Нетривиальность данного вывода заключается в том, что для генерации эхо-сигналов любой физической природы необходима когерентность внутриатомных состояний. В свою очередь фазовая релаксация подавляет данную когерентность. С другой стороны, в рассматриваемом здесь случае именно благодаря фазовой релаксации способен генерироваться когерентный сигнал эха.

Физический механизм возникновения 3τ -эха состоит в деструктивной интерференции квантовых переходов $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$ при $t = 3\tau + x/a_{\perp}$. При абсолютной идентичности параметров данных переходов происходит полное гашение эхо-отклика. Однако в нашем случае идентичность нарушается разницей во временах фазовой релаксации данных переходов. Как результат, когерентность, порождаемая одним из переходов, затухает быстрее, что приводит к неполной компенсации когерентностей обоих переходов.

Важно отметить, что частоты переходов $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$ равны друг другу, т.е. трехуровневая среда при каскадной схеме разрешенных квантовых переходов является эквидистантной (рис. 1). Это приводит к тому, что противофазные когерентности на обоих переходах достигают максимумов в один и тот же момент времени $t = 3\tau + x/a_{\perp}$. При отсутствии эквидистантности соответствующие времена были бы разделены интервалом, определяемым разностью частот рассматриваемых переходов [14].

Заметим, что интерференция квантовых переходов $- \leftrightarrow 0$ и $0 \leftrightarrow +$ в момент времени $t = 2\tau + x/a_{\perp}$ является конструктивной (когерентности, порождаемые обоими переходами, синфазны). Поэтому данные переходы не гасят, а усиливают друг друга при генерации 2 τ -эха. Именно в силу этого обстоятельства в (22) мы без потери общности положили $T_{-0} \approx T_{0+} = T_2$.

Из (26) следует, что амплитуда сигнала 3 τ -эха максимальна при площадях возбуждающих импульсов $\theta_1 = \pi/2$ и $\theta_2 = 2\pi/3$. Подбором площадей возбуждающих импульсов никоим образом не удается подавить сигнал 2 τ -эха, чтобы наблюдался только сигнал 3 τ -эха. Более того, как следует из (25) и (26) при учете (20), интенсивность 3 τ -эха значительно меньше интенсивности 2 τ -эха (см. рис. 2).

Приведем численные оценки для возможной реализации рассмотренного варианта спин-фононного эха в экспериментальных условиях. В качестве рабочего образца рассмотрим кристалл MgO при температурах жидкого гелия с внедренными в него парамагнитными ионами Fe²⁺ [22, 23]. Времена обратимой фазовой релаксации для квантовых переходов между зеемановскими подуровнями ионов Fe²⁺ в кристалле MgO, как и характерные длительности эхо-сигналов, составляют $T_{\mu\nu}^* \sim 10^{-7}$ с [23, 27]. Для того, чтобы удовлетворить использованному выше условию $\tau_p \ll T_{\mu\nu}^*$, длительности возбуждающих импульсов должны быть порядка $\tau_p \sim 10^{-8}$ с. Взяв для времен необратимой фазовой релаксации $T_{-0} \sim T_{+0} \sim 10^{-5}$ с [10, 22, 23], примем для временной скважности между двумя возбуждающими импульсами $\tau \sim 10^{-5}$ с. При этом несущая частота импульсов $\omega_0 \sim 10^{11}$ с⁻¹ [10, 22, 23]. Взяв для скорости поперечного ультразвука $a_{\perp} = 3 \cdot 10^5$ см/с [10, 28], а для апертуры D возбуждающих импульсов и сигналов эха $D \approx l \sim 1$ мм, найдем характерную длину дифракционного уширения импульсов $l_D \sim \omega_0 D^2 / a_{\parallel} \sim 10^2 - 10^3$ см. Это значительно превосходит рассматриваемые нами пространственные масштабы и поэтому хорошо согласуется с использованным в (11) одномерным приближением. Таким

образом, эхо-сигналы можно фиксировать, установив соответствующие датчики, на расстояниях нескольких сантиметров от рабочего образца.

Для постоянной спин-фононной связи имеем оценку $G_{\perp} \sim 10^{-14}$ эрг. Тогда амплитуды относительных деформаций подаваемых на среду импульсов $\psi \sim \hbar / G_{\perp} \tau_p \sim 10^{-5}$. Пусть, в свою очередь, $l \sim 1$ мм, $T \sim 1$ К, $n \sim 10^{19}$ см⁻³, $\rho = 3.6$ г/см³ [10, 22, 23]. Учитывая небольшую разницу между временами T_{-0} и T_{0+} , положим $e^{-\tau/T_{-0}} (e^{-2\tau/T_{0+}} - e^{-2\tau/T_{-0}}) \sim 10^{-2}$, а также используя приведенные выше оценки для ω_0 , a_{\perp} и l , из (25) и (26) для амплитуд 2 τ - и 3 τ -эха будем иметь соответственно $|\psi_{2\tau}| \sim 10^{-5}$, $|\psi_{3\tau}| \sim 10^{-7} \ll |\psi_{2\tau}|$. Такие амплитуды относительной деформации вполне могут быть зафиксированы в условиях реального эксперимента [10, 22].

Здесь возникает вопрос о принципиальной возможности того, что времена необратимой фазовой релаксации на двух переходах отличаются друг от друга при том, что собственные частоты данных переходов одинаковы, как и постоянные спин-фононной связи. Именно в этом случае здесь возможно возникновение сигнала 3 τ -эха. Поэтому обнаружение в возможном эксперименте обсуждаемого относительно слабого эхо-сигнала может дать ответ на вопрос о соотношении между временами релаксации когерентности разрешенных квантовых переходов. Если данный эхо-сигнал не будет обнаружен в эксперименте, это будет серьезным аргументом в пользу утверждения, что соответствующие разрешенным переходам времена релаксации не отличаются друг от друга. При обнаружении же данного сигнала по его интенсивности можно будет определить разницу между обсуждаемыми временами релаксации.

4. Заключение. Проведенное в настоящей работе исследование демонстрирует принципиальную возможность генерации когерентного эхо-сигнала, обусловленного необратимой фазовой релаксацией в эквидистантной трехуровневой системе с каскадной схемой разрешенных переходов. В этой связи заметим, что обсуждаемый эхо-сигнал вряд ли обладает оптическим аналогом. Дело в том, что в оптическом диапазоне, видимо, не существует физических реализаций трехуровневых эквидистантных систем с каскадной схемой квантовых переходов. Здесь в качестве физической реализации рассмотрено ультразвуковое эхо на системе парамагнитных ионов, внедренных в кубический кристалл.

Важным представляется то, что некогерентные процессы, происходящие в среде, являются основной

причиной возникновения одного из когерентных откликов среды на внешнее резонансное воздействие. В двухуровневой системе такой эффект невозможен, так как он является результатом деструктивной интерференции двух различных излучающих в противофазе квантовых переходов.

1. У.Х. Копвиллем, В.Р. Нагибаров, *Физ. металлов и металловед.* **15**, 313 (1963).
2. N. A. Kurnit, I. D. Abella, and S. R. Hartmann, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 567 (1964).
3. В.В. Самарцев, В.А. Зуйков, Л.А. Нефедьев, *Журнал прикладной спектроскопии* **59**, 395 (1993).
4. Э.А. Маныкин, В.В. Самарцев, *Оптическая эхоспектроскопия*, Наука, М. (1984).
5. E. L. Hahn, *Phys. Rev.* **80**, 580 (1950).
6. Н.М. Померанцев, *УФН* **65**, 87 (1958).
7. В.Р. Нагибаров, У.Х. Копвиллем, *ЖЭТФ* **52**, 936 (1967) [V. R. Nagibarov and U. Kh. Korvillem, *Sov. Phys. JETP* **25**, 618 (1967)].
8. N. S. Shiren and I. G. Kazyaka, *Phys. Rev. Lett.* **28**, 1304 (1972).
9. D. R. Taylor and I. G. Bartlet, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 96 (1973).
10. В.А. Голенищев-Кутузов, В.В. Самарцев, Н.К. Соловаров, Б.М. Хабибуллин, *Магнитная квантовая акустика*, Наука, М. (1977).
11. А.М. Шегеда, С.Л. Кораблева, О.А. Морозов, В.Н. Лисин, Н.К. Соловаров, В.Ф. Тарасов, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 264 (2023).
12. R. Beah and S. R. Hartmann, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 663 (1984).
13. S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, and M. A. Matsuoka, *Phys. Rev. A* **29**, 2286 (1984).
14. А.Ю. Пархоменко, С.В. Сазонов, *Письма в ЖЭТФ* **67**, 887 (1998) [A. Yu. Parkhomenko and S. V. Sazonov, *JETP Lett.* **67**, 934 (1998)].
15. Н.В. Знаменский, С.В. Сазонов, *Письма в ЖЭТФ* **85**, 440 (2007) [N. V. Znamenskii and S. V. Sazonov, *JETP Lett.* **85**, 358 (2007)].
16. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, Н.Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 586 (2020) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, and N. N. Rosanov, *JETP Lett.* **111**, 484 (2020)].
17. J. E. Golub and T. W. Mossberg, *JOSA B* **3**, 554 (1986).
18. V. V. Samartsev, A. M. Shegeda, A. V. Shkalikov, K. R. Karimullin, T. G. Mitrofanova, and V. A. Zuikov, *Laser Phys. Lett.* **4**, 534 (2007).
19. В.Н. Лисин, А.М. Шегеда, В.В. Самарцев, Е.П. Чукалина, *Письма в ЖЭТФ* **107**, 360 (2018) [V. N. Lisin, A. M. Shegeda, V. V. Samartsev, and E. P. Chukalina, *JETP Lett.* **107**, 345 (2018)].
20. В.В. Федянин, К. Р. Каримуллин, *Известия РАН. Сер. Физическая* **84**, 361 (2020).
21. V. V. Fedyanin and K. R. Karimullin, *Laser Phys.* **29**, 124008 (2019).
22. Дж. Такер, В. Рэмington, *Гиперзвук в физике твердого тела*, Мир, М. (1975) [J. W. Tucker and V. W. Rampton, *Microwave Ultrasonics in Solid State Physics*, North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1972)].
23. N. S. Shiren, *Phys. Rev. B* **2**, 2471 (1970).
24. S. V. Sazonov, *J. Phys.: Condens. Matter* **6**, 6295 (1994).
25. Л. Аллен, Дж. Эберли, *Оптический резонанс и двухуровневые атомы*, Мир, М. (1978) [L. Allen and J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two-Level Atoms*, John Wiley and Sons, N.Y. (1975)].
26. С.В. Сазонов, *ЖЭТФ* **144**, 1016 (2013) [S. V. Sazonov, *JETP* **117**, 885 (2013)].
27. У.Х. Копвиллем, В.Р. Ризаев, *ЖЭТФ* **65**, 2297 (1973) [U. Kh. Korvillem and V. R. Rizaev, *Sov. Phys. JETP* **38**, 1147 (1974)].
28. Г. Кайно, *Акустические волны: устройства, визуализация и аналоговая обработка сигналов*, Мир, М. (1990) [G. Kino, *Acoustic Waves: Devices, Imaging, and Analog Signal Processing*, Prentice-Hall Inc., New Jersey (1987)].

Эффект резистивного переключения в мемристорах TaN/HfO_x/Ni с филаментом, сформированным под действием локальной электронно-лучевой кристаллизации

В. А. Воронковский⁺¹, А. К. Герасимова⁺, В. Ш. Алиев^{+*}

⁺Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

^{*}Новосибирский государственный технический университет, 630073 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 9 декабря 2022 г.

После переработки 2 марта 2023 г.

Принята к публикации 5 марта 2023 г.

Изучено влияние интенсивного воздействия электронного луча на слой нестехиометрического оксида HfO_x ($x \approx 1.8$) в составе мемристора со структурой TaN/HfO_x/Ni на его электрофизические свойства. Обнаружено, что в результате воздействия в пленке HfO_x образуются кристаллические фазы h -Hf, m -HfO₂, o -HfO₂ и t -HfO₂. Установлено, что при определенных значениях флюенса электронов мемристоры демонстрируют резистивное переключение. При этом, по сравнению с необлученными мемристорами, у таких мемристоров в несколько раз меньше величины напряжений резистивного переключения. Кроме того, у них наблюдается кратное снижение разброса напряжений резистивного переключения, а также сопротивлений в низко- и высокоомном состояниях. Вольт-амперные характеристики полученных мемристоров указывают на то, что транспорт заряда в них описывается механизмом тока, ограниченным пространственным зарядом.

DOI: 10.31857/S123456782307011X, EDN: kktpgx

Разработка и оптимизация ячеек ReRAM (мемристоров) до сих пор остается актуальной задачей. Принцип действия мемристора основывается на обратимом изменении его сопротивления при подаче напряжения определенной величины и полярности. При первом переключении мемристора осуществляется его формовка, которая завершается образованием в его активном диэлектрическом слое тонкого (диаметром от единиц до десятков нм [1–3]) проводящего филамента, соединяющего электроды мемристора. Формирование филамента при этом может осуществляться либо за счет электродиффузии атомов из электрода мемристора (металлический филамент) [3], либо за счет генерации вакансий кислорода (нематаллический филамент) [1, 2].

Несмотря на большой интерес к тематике ReRAM [4–6], в данной области решение ряда вопросов до сих пор остается актуальным. Одним из таких вопросов является необходимость формовки мемристора, поскольку стохастический характер формовки приводит к невоспроизводимости электрофизических характеристик мемристоров на одном и том же образце. Кроме того, напряжения формовки могут значительно превышать напряжения последую-

щих переключений, что также является нежелательным. Актуальным также является решение проблемы разброса напряжений переключения состояний и сопротивлений в низко- и высокоомном состояниях от одного цикла резистивного переключения мемристора к другому, которые могут составлять 0.5–1.0 В и 1–2 порядка, соответственно [7, 8]. Данный разброс, по всей видимости, также связан со стохастической природой образования и разрушения филамента. Так, из-за наличия неоднородностей на границе металл/диэлектрик в мемригоре возможно присутствие нескольких мест, в которых концентрируется электрическое поле. В результате, это приводит к одновременному зарождению и разрастанию конкурирующих филаментов под одним общим электродом мемристора [1, 9]. По всей видимости, это и обуславливает нежелательный большой разброс сопротивлений и снижает устойчивость резистивных переключений.

Таким образом, для решения проблем, вытекающих из формовки, необходимо максимально локализовать область диэлектрика, в которой образуется филамент. Известно, что разброс сопротивлений мемристоров в низко- и высокоомном состояниях может быть снижен в несколько раз за счет включения массива металлических наноостровков в объем ди-

¹)e-mail: voronkovskii@isp.nsc.ru

электрического слоя мемристора [10] либо их включения в межфазную границу металл/диэлектрик [8]. Считается, что это происходит вследствие локально усиления электрического поля в областях диэлектрика с наноструктурами, что способствует более интенсивной генерации вакансий кислорода, участвующих в формировании проводящего филамента.

В данной работе исследуется новый подход, заключающийся в использовании электронного луча для локализации области формирования филамента. Как было показано в нашей работе [11], воздействие электронного луча на пленку $\text{HfO}_{x < 2}$ приводит к образованию в ней кристаллических фаз в локальной области, определяемой пятном от электронного луча диаметром около нескольких десятков нм. В то же время, наши исследования мемристором со структурой $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$ показали, что филамент в них имеет неметаллическую природу [12]. В связи с этим можно ожидать, что интенсивное воздействие электронного луча на пленку оксида гафния в составе такого мемристора приведет к полному формированию филамента или, по крайней мере, его затравки. Следовательно, такое воздействие должно привести к локализации области образования филамента. Целью данной работы является исследование возможности локализации формирования проводящего филамента за счет интенсивного воздействия электронного луча в мемристорах со структурой $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$.

Для исследований было подготовлено два типа образцов. Образцы первого типа представляли собой пленки нестехиометрического оксида HfO_x толщиной около 30 нм на медных подложках с углеродным подслоем и использовались для исследования структурных изменений под действием электронного луча по изображениям с просвечивающего электронного микроскопа (ПЭМ) и картинам дифракции. Слой HfO_x наносился методом ионно-лучевого распыления-осаждения (ИЛРО) при парциальном давлении кислорода $P(\text{O}_2) = 2.4 \cdot 10^{-3}$ Па, находящемся внутри диапазона давлений, при которых в мемристорах $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$ наблюдается эффект резистивного переключения и соответствует $x \approx 1.81$ [13]. Локальная электронно-лучевая кристаллизация слоя HfO_x осуществлялась в камере сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) Hitachi SU8220 в области $50 \times 38 \text{ нм}^2$ электронным лучом с диаметром 1.5 нм, энергией электронов $E_e = 15 \text{ кэВ}$ при токе эмиссии электронов $I_e = 1 \text{ нА}$. Интенсивность воздействия электронного луча на пленку оксида варьировалась за счет изменения продолжительности воздействия $t = 5, 10$ и 15 мин с отклонением не бо-

лее 5 с. Картины ПЭМ снимались с помощью TITAN 80–300 CS.

Образцы второго типа имели структуру $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$ и использовались для изучения транспорта заряда. Слой TaN толщиной около 50 нм наносился на подложку Si/SiO_2 методом ИЛРО. Слой HfO_x наносился тем же методом и при тех же условиях, что и для образцов первого типа. Затем на пленку HfO_x в камере СЭМ оказывалось локальное электронно-лучевое воздействие в местах будущего нахождения верхнего массива электродов. Воздействие осуществлялось при тех же условиях, что и для образцов первого типа. Пространственный дрейф облучаемой области из-за зарядки поверхности был существенно минимизирован за счет электрического контакта прижимной лапки, удерживающей образец на держателе СЭМ, с нижним TaN электродом образца. Поверхность оксидного слоя после локального электронно-лучевого воздействия также была просканирована с использованием атомно-силового микроскопа (АСМ) NT-MDT Solver Pro в полуконтактном режиме. Радиус закругления зонда АСМ не превышал 10 нм. На завершающем этапе изготовления этих образцов на них методом электронно-лучевого испарения наносился массив Ni электродов толщиной 50 нм. Для этого использовался специальный держатель образца, который обеспечивал совмещение областей слоя HfO_x , подвергавшихся электронно-лучевому воздействию, с будущими Ni электродами. Вольт-амперные характеристики (ВАХ) образцов измерялись с помощью анализатора полупроводниковых приборов Agilent B1500A.

Длительность воздействия электронного луча на слой оксида выбиралась из следующих соображений. В нашей предыдущей работе, в которой изучалось локальное воздействие на пленку HfO_x электронного луча ПЭМ [11], были определены условия, при которых в ней появляются первые признаки кристаллизации. Из этих условий по формуле (1) была определена минимальная необходимая величина флюенса электронов $\Phi_{\min} = 1.9 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. При облучении минимальной доступной области в СЭМ размером $50 \times 38 \text{ нм}^2$ в течение 5 мин, величина флюенса электронов составляет $9.9 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, что, таким образом, превышает минимальный необходимый порог для начала кристаллизации. Соответственно, для времени облучения 10 мин $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$, а 15 мин – $3.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$.

$$\Phi = \frac{N_e}{S} = \frac{I_e t}{qS}, \quad (1)$$

где Φ – флюенс электронов, N_e – количество электронов, прошедших через площадку площадью S за время t , I_e – ток эмиссии электронов, q – заряд электрона.

Важно отметить, что энергии $E_e = 15$ кэВ в СЭМ, по нашим оценкам, достаточно для полного прохождения электронами слоя оксида толщиной 30 нм. Вопрос глубины проникновения электронов в мишень нетривиальный, однако ее можно грубо оценить по формуле Канайя–Окаямы [14] (2). В свою очередь, это позволяет оценить диффузионную длину падающих электронов в твердом теле (3), которая для такой величины энергии составила 224 нм.

$$R = \frac{3E_e^{5/3}}{5K_eNZ^{8/9}}, \tag{2}$$

$$x_D = \frac{R}{1 + 0.183Z^{2/3}}, \tag{3}$$

где R – максимальная глубина проникновения падающих электронов в мишень, E_e – энергия падающих электронов (в эВ), N – количество атомов в единице объема мишени, Z – атомный номер материала мишени, x_D – диффузионная длина падающих электронов.

Как следует из полученных ПЭМ-изображений пленки HfO_x на медной сетке с углеродным подслоем, при всех использованных значениях Φ в облучавшихся электронным лучом участках присутствуют признаки кристаллизации. В то же время, в других областях пленки оксида гафния признаков наличия кристаллических фаз не обнаружено. На рисунке 1а представлено ПЭМ-изображение участка пленки HfO_x , облучавшегося при $\Phi = 3.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$. Ана-

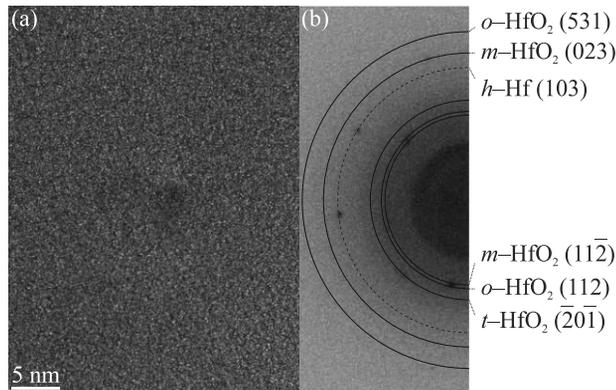


Рис. 1. (а) – ПЭМ-изображение области пленки HfO_x , подвергнутой воздействию электронного луча с $\Phi = 3.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ ($t = 15$ мин), и соответствующая картина дифракции (b)

лиз дифракционных паттернов пленки HfO_x в участках, подвергавшихся воздействию электронного луча, указывает на образование кристаллических фаз h -Hf, а также m - HfO_2 , o - HfO_2 и t - HfO_2 (рис. 1b). Отметим, что полученный результат, в целом, совпадает с полученным нами ранее результатом при облучении пленки оксида гафния электронным лучом в ПЭМ [11].

Анализ полученных с использованием АСМ данных показал, что максимальное отклонение высоты рельефа слоя HfO_x в областях, подвергавшихся локальному электронно-лучевому воздействию, не превышает 3 нм.

ВАХ мемристоров, полученных при различных величинах Φ , представлены на рис. 2а–с. Для всех

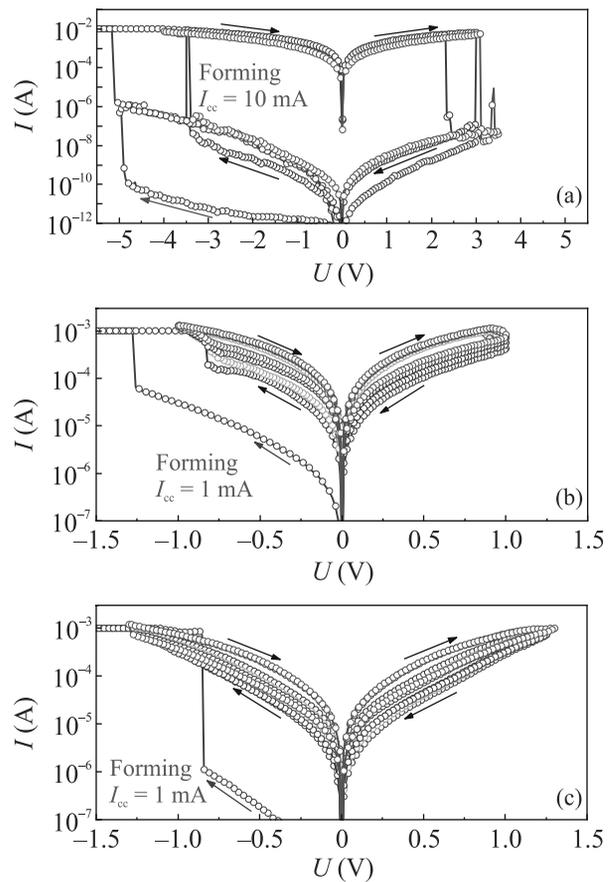


Рис. 2. (Цветной онлайн) ВАХ формовки и резистивного переключения мемристоров $TaN/HfO_x/Ni$, полученных при $\Phi = 0$ (а), $2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ (b) и $3.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ (с). Стрелками показано направление развертки напряжения

мемристоров требовалось провести формовку, однако напряжение формовки было достаточно близким к напряжению переключения из высокоомного состояния в низкоомное. В ходе формовки для предотвра-

щения необратимого пробоя мемристоров устанавливалось ограничение по максимальному току I_{cc} . Можно видеть, что ВАХ мемристора с $\Phi = 0$ (не подвергавшегося облучению) имеют типичный вид для мемристоров с биполярным переключением состояний, а напряжения резистивного переключения из высокоомного состояния в низкоомное (U_{SET}) и обратно (U_{RESET}) составляют около ± 3.5 В. Необходимо отметить, что мемристоры с $\Phi = 0$ на исследованном образце не демонстрировали устойчивого резистивного переключения и после нескольких циклов резистивного переключения выходили из строя. Мемристоры, полученные при $\Phi = 9.9 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, не демонстрировали эффект резистивного переключения, однако их сопротивление составляло порядка нескольких кОм, что намного ниже значения для исходной пленки HfO_x (рис. 2а). В то же время, мемристоры с $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ и $3.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ демонстрировали эффект резистивного переключения, причем для них напряжение формовки и напряжения U_{SET} достаточно близки, а напряжения переключения состояний в различных циклах резистивного переключения практически не отличаются друг от друга (рис. 2б, с). Кроме того, низкие значения напряжений переключения в диапазоне 1.0–1.5 В ранее нами не достигались ни при каких значениях величины x для пленки оксида гафния толщиной 30 нм и меньше типичных значений примерно в 2–3 раза [13]. Несмотря на то, что отношение токов в низкоомном и высокоомном состояниях для мемристоров с $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ и $3.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ невелико, наблюдаемый эффект изменения проводимости при подаче напряжения определенной величины и полярности связан именно с эффектом резистивного переключения, а не разогревом. При повторных измерениях ВАХ после переключения этих мемристоров в низкоомное либо высокоомное состояние получаемые кривые ВАХ полностью совпадали с измеренными ранее для этих состояний.

Сравнение функций распределения напряжений U_{SET} и U_{RESET} , а также сопротивлений в низко- и высокоомном состояниях (R_{ON} и R_{OFF} , соответственно) для мемристора с $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ и необлучавшегося мемристора $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$ из нашей предыдущей работы [13] с $x = 1.81$, представлено на рис. 3. Видно, что мемристоры на основе пленок HfO_x , облучавшихся электронным пучком, демонстрируют значительное уменьшение разброса напряжений переключения состояний и сопротивлений по сравнению с мемристорами на основе пленок, не подвергавшихся такому воздействию. Так, благодаря использованию электронно-лучевого воздействия, относи-

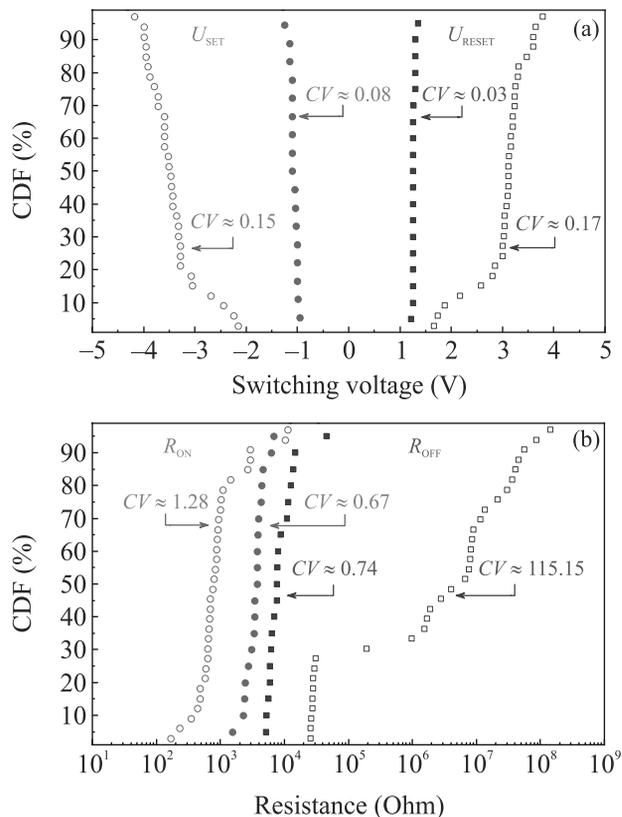


Рис. 3. (Цветной онлайн) Функции распределения напряжений переключения (а) и сопротивлений (б) мемристоров $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$ ($x = 1.81$), слой оксида которых подвергался воздействию электронного луча при $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ ($t = 10$ мин) и без него (сплошные и пустые точки, соответственно)

тельное среднеквадратичное отклонение CV (отношение среднеквадратического отклонения к математическому ожиданию) величин напряжений U_{SET} и U_{RESET} снизилось в ≈ 2 и ≈ 6 раз, соответственно, сопротивлений R_{ON} – в ≈ 2 раза, а R_{OFF} – на 2 порядка.

Тот факт, что в полученном образце без воздействия электронного луча мемристоры переключаются лишь малое количество раз, объясняется следующим образом. Вид ВАХ таких мемристоров весьма близок к виду ВАХ мемристоров $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$ с $x = 1.81$, изученных нами ранее [13]. При этом $x = 1.81$ является границей диапазона величин x , при которых наблюдается резистивное переключение. По всей видимости, полученная в настоящей работе пленка HfO_x имеет x , слегка выходящий за рамки этого диапазона, что и объясняет малое количество циклов резистивного переключения.

На рисунке 4а представлены экспериментальные ВАХ мемристора, полученного с использованием

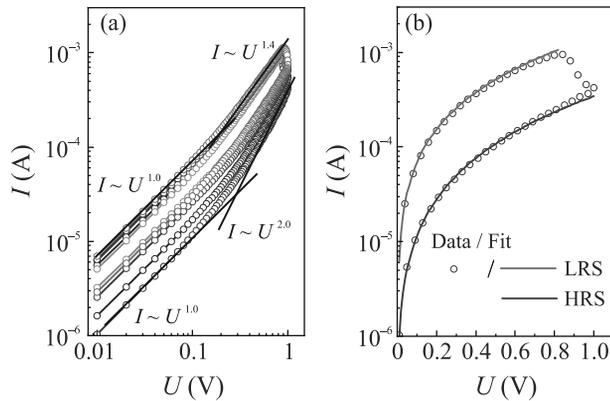


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – ВАХ мемристора TaN/HfO_x/Ni, полученного под воздействием электронного луча при $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ ($t = 10$ мин), в двойном логарифмическом масштабе и (b) – аппроксимация его экспериментальных ВАХ (точки) для низко- и высокоомного состояний (LRS и HRS, соответственно) модельными (линии)

электронно-лучевого воздействия при $\Phi = 2.0 \times 10^{23} \text{ см}^{-2}$, в двойном логарифмическом масштабе. Как можно видеть, в обоих состояниях мемристора ВАХ при малых напряжениях являются линейными, а по мере увеличения напряжения становятся квадратичными. Аналогичный характер ВАХ наблюдался нами для мемристоров со структурой TaN/HfO_x/Ni, слой оксида которых не подвергался воздействию электронного луча [12]. Как было установлено, транспорт заряда в таком случае описывается механизмом тока, ограниченного пространственным зарядом (ТОПЗ). При этом, проводимость мемристора определяется полупроводниковым филаментом с диаметром d_f с некоторой концентрацией донороподобных дефектов N_d и мелких ловушек для носителей заряда N_t . При переключении состояний происходит изменение величин d_f , N_d и N_t , а также степени заполнения ловушек. В низкоомном состоянии транспорт заряда в мемристоре описывается механизмом ТОПЗ в режиме полностью заполненных ловушек, а в высокоомном – механизмом ТОПЗ в режиме частично заполненных ловушек. Такая модель проводимости подробно описана и изучена нами в работе [12]. Учитывая качественное сходство ВАХ и аналогичную структуру мемристора в данной работе, ВАХ мемристоров, подвергавшихся электронно-лучевому воздействию можно описать в рамках описанной выше модели.

Как видно из рис. 4b, ВАХ, рассчитанные в рамках механизма ТОПЗ для мемристора с $\Phi = 2.0 \times 10^{23} \text{ см}^{-2}$ при комнатной температуре, имеют хорошее согласие с экспериментальными данными.

При аппроксимации ВАХ как низкоомного состояния, так и высокоомного, значения для эффективной массы электрона, подвижности и диэлектрической проницаемости были одинаковыми и составляли $m^* = 0.42 m_0$ (где m_0 – масса электрона), $\mu = 40 \text{ см}^2/(\text{В}\cdot\text{с})$ и $\epsilon = 40$. ВАХ в низкоомном состоянии аппроксимировалась моделью ТОПЗ в режиме полностью заполненных ловушек. При этом использовались следующие значения параметров: $d_f = 135 \text{ нм}$, $N_d = 2.0 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ и энергия ионизации донороподобного дефекта $E_c - E_d = 90 \text{ мэВ}$. В высокоомном состоянии ВАХ аппроксимировалась в рамках модели ТОПЗ в режиме частично заполненных ловушек при значениях параметров $d_f = 96 \text{ нм}$, $N_d = 8.0 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $E_c - E_d = 130 \text{ мэВ}$, энергии ионизации ловушек $E_c - E_t = 40 \text{ мэВ}$ и их концентрации $N_t = 1.0 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Полученные значения параметров достаточно близки к полученным ранее для мемристоров без электронно-лучевого воздействия [12]. По сравнению с такими мемристорами, у мемристора с $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ примерно в два раза выше концентрация донороподобных дефектов как в низкоомном, так и высокоомном состояниях. Кроме того, в высокоомном состоянии у мемристора с $\Phi = 2.0 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ примерно на один порядок ниже концентрация ловушек N_t , из-за чего его проводимость в данном состоянии достаточно высокая. К другим важным отличиям можно отнести высокое значение $\epsilon = 40$ (против 18 в мемристоре, полученном без локальной электронно-лучевой кристаллизации) и значение d_f для высокоомного состояния (96 нм против 35 нм и меньше). Высокое значение ϵ можно объяснить следующим образом. Как следует из полученных нами картин дифракции, в области локальной электронно-лучевой кристаллизации присутствует металлическая Hf фаза. Поскольку такая область играет роль затравки для филамента мемристора, в объем филамента будут включены металлические кластеры. В свою очередь, за счет этого диэлектрическая проницаемость филамента и будет высокой. Большой поперечный размер филамента в высокоомном состоянии связан, по-видимому, с большим размером затравки для филамента, сформированной в ходе локальной электронно-лучевой кристаллизации.

Таким образом, установлено, что воздействие электронного луча СЭМ на пленку HfO_x приводит к зарождению кристаллических фаз $h\text{-Hf}$, $m\text{-HfO}_2$, $o\text{-HfO}_2$ и $t\text{-HfO}_2$ в области, размер которой определяется областью сканирования. Получаемые с таким воздействием мемристоры со структурой TaN/HfO_x/Ni демонстрируют кратно меньший

разброс относительного среднеквадратичного отклонения напряжений резистивного переключения U_{SET} и U_{RESET} (в ≈ 2 и ≈ 6 раз, соответственно) и сопротивлений R_{ON} и R_{OFF} (в два раза ≈ 2 и на ≈ 2 порядка, соответственно), по сравнению с мемристорами с аналогичной структурой без такого воздействия. Учитывая, что локальная электронно-лучевая кристаллизация не приводит к существенному изменению толщины оксидного слоя, наблюдаемый эффект уменьшения разброса электрофизических характеристик связан именно с локализацией области образования филамента за счет образования его затравки в объеме данного слоя. При этом механизм транспорта в таких мемристорах остается прежним и описывается механизмом ТОПЗ.

Работа поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации.

Авторы выражают благодарность Ю. А. Живодкову за проведение работ по электронно-лучевому воздействию в камере СЭМ Hitachi SU8220, А. К. Гутаковскому за полученные ПЭМ-изображения, снятые на TITAN 80-300 CS (Центр коллективного пользования “Наноструктуры”, ИФП СО РАН, Новосибирск) и А. И. Иванову за осуществление АСМ-исследований.

1. D. H. Kwon, K. M. Kim, J. H. Jang, J. M. Jeon, M. H. Lee, G. H. Kim, X. S. Li, G. S. Park, B. Lee,

S. Han, M. Kim and C. S. Hwang, *Nat. Nanotechnol.* **5**, 148 (2010).

2. F. Miao, J. P. Strachan, J. J. Yang, M. X. Zhang, I. Goldfarb, A. C. Torrezan, P. Eschbach, R. D. Kelley, G. Medeiros-Ribeiro, and R. S. Williams, *Adv. Mater.* **23**, 5633 (2011).

3. Q. Liu, J. Sun, H. Lv, S. Long, K. Yin, N. Wan, Y. Li, L. Sun, and M. Liu, *Adv. Mater.* **24**, 1844 (2012).

4. I. Valov, *Semicond. Sci. and Technol.* **32**, 093006 (2017).

5. Y. Zhang, Z. Wang, J. Zhu, Y. Yang, M. Rao, W. Song, Y. Zhuo, X. Zhang, M. Cui, L. Shen, and R. Huang, *Appl. Phys. Lett.* **7**, 011308 (2020).

6. Y. Y. Chen, *IEEE T. Electron. Dev.* **67**, 1420 (2020).

7. A. Hardtdegen, H. Zhang, and S. Hoffmann-Eifert, *ECS Transactions* **75**, 177 (2016).

8. J. Wang, L. Li, H. Huyan, X. Pan, and S. S. Nonnenmann, *Adv. Funct. Mater.* **29**, 1808430 (2019).

9. E. Wu, T. Ando, Y. Kim, R. Muralidhar, E. Cartier, P. Jamison, M. Wang, and V. Narayanan, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 082901 (2020).

10. P. Bousoulas and D. Tsoukalas, *Int. J. High Speed Electron. Syst.* **25**, 1640007 (2016).

11. A. K. Gerasimova, V. S. Aliev, G. K. Krivyakin, and V. A. Voronkovskii, *SN Appl. Sci.* **2**, 1 (2020).

12. V. A. Voronkovskii, V. S. Aliev, A. K. Gerasimova, and D. R. Islamov, *Mat. Res. Express* **6**, 076411 (2019).

13. V. A. Voronkovskii, V. S. Aliev, A. K. Gerasimova, and D. R. Islamov, *Mat. Res. Express* **5**, 016402 (2018).

14. K. A. Kanaya and S. Okayama, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **5**, 43 (1972).

Acoustic metric and Planck constants

G. E. Volovik¹⁾

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

Landau Institute for Theoretical Physics, 142432 Chernogolovka, Russia

Submitted 25 February 2023

Resubmitted 3 March 2023

Accepted 4 March 2023

DOI: 10.31857/S1234567823070121, EDN: klnumv

Based on Akama–Diakonov (AD) theory of emergent tetrads in quantum gravity [1–5] it was suggested [6] that one can introduce two Planck constants, \hbar and \hbar , which are the parameters of the corresponding components of Minkowski metric, $g_{\text{Mink}}^{\mu\nu} = \text{diag}(-\hbar^2, \hbar^2, \hbar^2, \hbar^2)$. In the AD theory, the interval ds is dimensionless, as all the diffeomorphism invariant quantities (we call this “the dimensionless physics”). The metric elements and thus the Planck constants are not diffeomorphism invariant and have nonzero dimensions. The Planck constant \hbar has dimension of time, and the second Planck constant has dimension of length. It is natural to compare \hbar with the Planck length l_P . However, this connection remains an open question, because the microscopic (trans-Planckian) physics of the quantum vacuum is not known. Dimensionless physics emerges also in some other approaches. This includes the *BF*-theories of gravity [7–12] and the model of superplastic vacuum [13] described in terms of the so-called elasticity tetrads [14]. Here we study this question using the effective gravity emerging for sound wave quanta (phonons) in superfluid Bose liquid, where the microscopic physics is known [15, 16]. The interval of the effective acoustic metric is also dimensionless [17, 18].

For massive particles in the non-relativistic limit the wave equation has the following form:

$$i\sqrt{-g_{\text{Mink}}^{00}}\partial_t\psi = -\frac{1}{2M}g_{\text{Mink}}^{ik}\nabla_i\nabla_k\psi. \quad (1)$$

Here the mass M is the rest energy, which is diffeomorphism invariant and is dimensionless in the AD approach. Eq. (1) looks as the Schrödinger wave equation:

$$i\hbar\partial_t\psi = -\frac{\hbar^2}{2M}\nabla^2\psi, \quad (2)$$

which contains two Planck constants:

$$\sqrt{-g_{\text{Mink}}^{00}} = \hbar, \quad g_{\text{Mink}}^{ik} = \hbar^2\delta^{ik}. \quad (3)$$

The Planck constants \hbar and \hbar enter correspondingly the time derivative and space derivative terms in Schrödinger equation, and have different dimensions. Since M is dimensionless, the Planck constant \hbar has dimension of time, $[\hbar] = [t]$, while the second Planck constant \hbar has dimension of length, $[\hbar] = [L]$.

In dimensionless physics the Newton constant has the dimension of length, $[G] = [L]$, i.e. the same dimension as the spacelike Planck constant \hbar . There are two quantities, which can be constructed by combination of the Newton constant G and \hbar . One of them is the Planck mass $M_P = \sqrt{\hbar/G}$. It enters the Einstein equations as the diffeomorphism invariant quantity, and thus is dimensionless, $[M_P]^2 = [\hbar]/[G] = 1$. Another quantity is the Planck length

$$l_P = \frac{\hbar}{M_P} = \sqrt{\hbar G}, \quad (4)$$

with the natural dimension of length, $[l_P] = [L]$. Since the Planck length l_P and the Planck constant \hbar have the same dimension, the natural suggestion arises: maybe they are the equivalent quantities. This connection remains an open question, because the microscopic (trans-Planckian) physics of the quantum vacuum is not known. However we can study this problem using the acoustic metric of Bose liquid, where the microscopic physics is well known: it is atomic physics. The corresponding acoustic interval for phonons propagating in moving liquid is

$$ds^2 = g_{\mu\nu}dx^\mu dx^\nu = \frac{\hbar n}{ms}[-s^2 dt^2 + (dx^i - v^i dt)\delta_{ij}(dx^j - v^j dt)]. \quad (5)$$

Here n is the density of bosonic particles; m is the particle mass; s is the speed of sound; and \mathbf{v} is the superfluid velocity (the velocity of the “superfluid vacuum”), which is the shift function in the Arnowitt–Deser–Misner approach. The analog of the Minkowski metric corresponds to the zero value of the shift function, $\mathbf{v} = 0$, and thus

¹⁾e-mail: grigori.volovik@aalto.fi

$g^{0i} = 0$. Then the effective acoustic Minkowski metric experienced by the propagating phonons is:

$$g_{00} = \frac{\hbar n s}{m}, \quad g_{ik} = \frac{\hbar n}{m s} \delta_{ik}, \quad \sqrt{-g} = \frac{\hbar^2 n^2}{m^2 s}, \quad (6)$$

with dimensions

$$[g_{00}] = \frac{1}{[t]^2}, \quad [g_{ik}] = \frac{1}{[L]^2}, \quad [\sqrt{-g}] = \frac{1}{[t][L]^3}. \quad (7)$$

The acoustic interval (5) is dimensionless, $[ds] = 1$, which demonstrates that the interval ds describes the dynamics of phonons in the “superfluid vacuum”, rather than the distances and time intervals. The same is valid for the interval in general relativity, where it describes the dynamics of a point particle in the relativistic quantum vacuum.

One can also introduce the acoustic Planck constants \hbar_{ac} and \hbar_{ac} obeying the corresponding Eq. (3). Then one obtains that for phonons in liquid helium, the length of the acoustic Planck constant \hbar_{ac} is on the order of the interatomic distance $a = n^{-1/3}$. This suggests that in quantum vacuum, the Planck constant \hbar is on the order of the Planck length l_{P} . If this is so, then the Planck mass $M_{\text{P}} = \sqrt{\hbar/G}$, which enters the Einstein–Hilbert action and which is dimensionless as all the masses in the AD quantum gravity, is on the order of unity, $M_{\text{P}} \sim 1$. That is why the Planck mass becomes the natural choice for the unit of mass.

We considered liquid helium in its self-sustained vacuum state, i.e. in the ground state at $T = 0$ and in the absence of external pressure, $P = 0$. In applied pressure $P \neq 0$, the parameters of the quantum vacuum s and a deviate from their vacuum values. For pressure small compared with the ultraviolet (UV) scale, $P \ll n m s^2$, the relative change of these parameters is small, $\Delta s/s \sim \Delta a/a \sim P/n m s^2 \ll 1$. The same is valid for the relative change of the acoustic Planck constants:

$$\frac{\Delta \hbar_{\text{ac}}}{\hbar_{\text{ac}}} \sim \frac{\Delta \hbar_{\text{ac}}}{\hbar_{\text{ac}}} \sim \frac{P}{n m s^2} \ll 1. \quad (8)$$

In relativistic quantum vacuum, the non-zero vacuum pressure gives rise to the de Sitter expansion. Then, applying Eq. (8) with the corresponding Planck scale parameters, one may suggest that the Planck constants

acquire the following corrections in the expanding Universe:

$$\frac{\Delta \hbar}{\hbar} \sim \frac{\Delta \hbar}{\hbar} \sim \hbar^2 H^2 \sim T_{\text{GH}}^2 \ll 1. \quad (9)$$

Here H is the Hubble parameter and T_{GH} is the Gibbons–Hawking temperature, which is dimensionless in the AD quantum gravity.

This work has been supported by Academy of Finland (grant 332964).

This is an excerpt of the article “Acoustic metric and Planck constants”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S002136402360057X

1. K. Akama, Progress of Theoretical Physics **60**, 1900 (1978).
2. D. Diakonov, arXiv:1109.0091.
3. A. A. Vladimirov and D. Diakonov, Physics of Particles and Nuclei **45**, 800 (2014).
4. A. A. Vladimirov and D. Diakonov, Phys. Rev. D **86**, 104019 (2012).
5. Y. N. Obukhov and F. W. Hehl, Phys. Lett. B **713**, 321 (2012).
6. G. E. Volovik, DOI: 10.13140/RG.2.2.13398.73282.
7. M. Schönberg, Rivista Brasileira de Fisica **1**, 91 (1971).
8. H. Urbantke, J. Math. Phys. **25**, 2321 (1984).
9. R. Capovilla, J. Dell, T. Jacobson, and L. Mason, Class. Quantum Gravity **8**, 41 (1991).
10. Yu. N. Obukhov and S. I. Tertychniy, Class. Quantum Gravity **13**, 1623 (1996).
11. F. W. Hehl and Yu. N. Obukhov, *Foundations of classical electrodynamics*, Birkhauser, Boston (2003).
12. L. Friedel and S. Speziale, SIGMA **8**, 032 (2012).
13. F. R. Klinkhamer and G. E. Volovik, JETP Lett. **109**, 364 (2019).
14. J. Nissinen and G. E. Volovik, Phys. Rev. Research **1**, 023007 (2019).
15. W. G. Unruh, Phys. Rev. Lett. **46**, 1351 (1981).
16. C. Barcelo, S. Liberati, and M. Visser, Living Rev. Relativity **14**, 3 (2011).
17. G. E. Volovik, JETP **132**, 727 (2021).
18. G. E. Volovik, JETP **135**, 663 (2022).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 117

Выпуск 8

25 апреля 2023

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора

Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

© Российская академия наук, 2023

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

Измерение сечения деления ядер ^{238}U нейтронами с энергиями 0.3–500 МэВ

А. С. Воробьев⁺¹⁾, А. М. Гагарский⁺, О. А. Щербаков⁺, Л. А. Вайшнине⁺, А. Л. Барабанов^{*×}

⁺ Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”,
Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова, 188300 Гатчина, Россия

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

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

Поступила в редакцию 14 марта 2023 г.

После переработки 14 марта 2023 г.

Принята к публикации 18 марта 2023 г.

Представлены результаты измерения зависимости сечения деления ядер ^{238}U нейтронами от энергии нейтронов в диапазоне от 0.3 до 500 МэВ, выполненного на времяпролетном спектрометре нейтронного комплекса ГНЕЙС в НИЦ “Курчатовский институт” — ПИЯФ. Осколки деления регистрировались при помощи позиционно-чувствительных многопроволочных пропорциональных счетчиков низкого давления. Сечение деления $^{238}\text{U}(n, f)$ измерялось относительно сечения деления $^{235}\text{U}(n, f)$, являющегося принятым международным стандартом. Приведены также данные по энергетической зависимости угловой анизотропии выхода осколков деления ядер ^{238}U нейтронами. Проведено сравнение полученных данных с результатами экспериментальных работ, выполненных ранее с использованием как аналогичных, так и значительно отличающихся методик.

DOI: 10.31857/S1234567823080013, EDN: vojwou

В настоящее время предполагается, что развитие атомной энергетики пойдет по пути реализации замкнутого топливного цикла и таких его элементов, как ядерные энергетические установки (ЯЭУ) 4-го поколения [1, 2] и ядерные реакторы с приводом от сильноточных протонных ускорителей с энергиями от 1 ГэВ и выше (Accelerated Driven System – ADS) [3]. Создание подобных систем обеспечит безопасность и надежность ядерной энергетики, ее экономическую конкурентоспособность за счет меньшей стоимости жизненного цикла по сравнению с другими источниками энергии, а также более эффективное использование ядерного топлива при одновременном снижении выхода ядерных отходов. При этом уже сейчас нужно решать проблемы, связанные с накоплением, хранением и возможной утилизацией отработанного ядерного топлива. Его количество в мире по данным на 2020 г. составляет 400 тыс. тонн, из них в хранилищах находятся 275 тыс. тонн, тогда как темп пополнения хранилищ составляет 7 тыс. тонн в год [4]. На сегодняшний день трансмутация ядерных отходов в реакторах на быстрых нейтронах представляется одним из перспективных способов уменьшения радиотоксичности отработанного ядерного топ-

лива. Практическое осуществление планов как по созданию новых ядерных установок, так и по утилизации радиоактивных отходов невозможно, однако, без надежных и точных ядерных данных.

Сечения деления основных изотопов ^{235}U и ^{238}U нейтронами с энергиями до 200 МэВ являются в настоящее время стандартами [5, 6], поэтому их измерениям уделяется особое внимание. Исследования такого рода перекрывают как диапазон 1–20 МэВ (реакторный спектр), востребованный в современных ядерных технологиях и технологиях ближайшего будущего, так и наиболее трудную с экспериментальной точки зрения область от 20 МэВ до 1 ГэВ и выше, критически важную для развития перспективных ADS-технологий. Информация о проведенных за многие годы экспериментах по измерению сечения деления ^{238}U нейтронами и результаты этих экспериментов могут быть найдены в международной библиотеке экспериментальных ядерных данных EXFOR [7].

Имеющиеся в литературе данные по сечению деления ^{238}U нейтронами в основном ограничиваются областью энергий нейтронов ниже 20 МэВ, интересной с точки зрения расчетов ядерных реакторов. Большая часть этих данных была получена с использованием моноэнергетических нейтронов, полу-

¹⁾e-mail: vorobyev_as@npfi.nrcki.ru

ченых в различных реакциях на ускорителях [8–17]. Основная особенность подобных измерений заключается в том, что для каждого значения (выбранного интервала) энергии нейтронов, вызывающих деление, выполнялся отдельный эксперимент. При этом использовались разные реакции и нейтронообразующие мишени, а иногда проводилась дополнительная настройка/подстройка (калибровка) всей детектирующей аппаратуры. Для проверки данных по сечению деления ^{238}U , измеренных с использованием моноэнергетических пучков нейтронов, и оценки их точности подобные эксперименты были также проведены на пучках нейтронов с непрерывным спектром с использованием метода времени пролета [18, 19]. В области энергий нейтронов выше 20 МэВ измерения проводились как на квази-моноэнергетических пучках нейтронов [20, 21], так и на пучках нейтронов с непрерывным спектром с использованием метода времени пролета [22–27]. Недавно также были представлены первые результаты, полученные на Китайском нейтронном источнике нейтронов (CSNS – China spallation neutron source) [28, 29]. В указанных работах для регистрации осколков деления использовались газовый сцинтиляционный счетчик [8], пробойные счетчики (TFBC – Thin-film breakdown counters) [20], время-проекционная камера (TPC – Time projection chamber) [27] и ионизационные камеры деления [9–19, 21–24, 28, 29]. В работах [25, 26] измерения были выполнены с использованием двух типов детекторов: многосекционной ионизационной камеры и сборки из позиционно-чувствительных детекторов на основе плоскопараллельных лавинных счетчиков (PPAC – Parallel plate avalanche counter) в различной геометрии.

Во всех указанных выше работах, за исключением работы [15], в которой использовался прямой метод измерений, сечение деления исследуемого ядра измерялось относительно сечения реакции, известного с большой точностью (стандарта): либо это было n - p рассеяние, $^1\text{H}(n, n)p$ [17, 20, 21], либо реакции $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ и $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$ [16], либо деление ядра ^{235}U [8–14, 18, 19, 22–29]. Это позволило свести к минимуму ошибки измерений, связанные с неопределенностью потока нейтронов. При исследовании ядер, сечение деления которых имеет порог, часто дополнительно к относительному методу измерений сечения деления используется метод смешанных мишеней [9–11, 13, 14, 18, 19, 23], что позволяет также свести к минимуму ошибку, обусловленную неопределенностью массы исследуемых образцов.

При сравнении имеющихся в литературе экспериментальных данных обнаруживается некоторый раз-

брос для энергий нейтронов выше 30 МэВ. Так, данные из работ [22, 24, 25, 29] в целом, по мнению авторов указанных работ, согласуются друг с другом, тогда как данные [23] лежат систематически ниже, достигая наибольшего отличия $\sim 8\%$ для энергий нейтронов выше 100 МэВ. Данные [20, 21] имеют большую неопределенность, чем упомянутые выше данные, и в области энергий ниже 100 МэВ расположены выше на $\sim 7\%$, чем данные из работ [22, 24, 25, 29], при этом в области энергий нейтронов выше 100 МэВ данные [21] согласуются как с данными [23], так и с данными [22, 24, 25, 29].

В настоящей работе измерение сечения деления ядра ^{238}U было выполнено на нейтронном комплексе ГНЕЙС [30, 31], действующем в НИЦ “Курчатовский институт” – ПИЯФ на базе синхротрона СИ-1000 с энергией протонного пучка 1 ГэВ. Нейтронный комплекс ГНЕЙС включает в себя интенсивный импульсный источник нейтронов ($\sim 10^{14}$ нейтронов/с в телесный угол 4π) с длительностью вспышки ~ 10 нс и частотой повторений ~ 50 Гц, а также спектрометр по времени пролета, имеющий пять нейтронных пучков с базами длиной до 50 м. Импульс быстрых нейтронов формируется в результате сброса протонного пучка на охлаждаемую водой свинцовую мишень, представляющую из себя параллелепипед с размерами 400 мм \times 100 мм \times 50 мм (д \times ш \times в) и расположенную в вакуумной камере ускорителя. Следует отметить, что время между последовательными сбросами протонного пучка на свинцовую мишень составляет ~ 20 мс, что при длине пролетной базы 36.5 ± 0.05 м, использующейся в данных измерениях, соответствует энергии рециклических нейтронов менее 0.017 эВ. Для исключения таких рециклических нейтронов использовался Cd фильтр толщиной 0.1 мм (в этом случае пропускание нейтронов с энергиями ниже 0.3 эВ можно считать равным нулю), который располагался в зале ускорителя СИ-1000 за стеной толщиной 6 м из тяжелого бетона на расстоянии 14 м от измерительной установки. Измерения сечения деления $^{238}\text{U}(n, f)$ относительно сечения деления $^{235}\text{U}(n, f)$ проводились на пучке # 5. Диаметр нейтронного пучка составлял 90 мм.

Мишени исследуемых ядер ^{238}U и ^{235}U были изготовлены в АО “Радиевый институт им. В. Г. Хлопина” (г. Санкт-Петербург) методом “намазывания” на алюминиевые подложки толщиной 0.1 мм. Форма и размер активного слоя были различны. Мишень ^{238}U обогащением 99.996% и толщиной 1150 ± 56 мкг/см² представляла собой круг диаметром 60 мм, а мишень ^{235}U обогащением 99.992% и толщиной 203 ± 11 мкг/см² представляла собой прямоуголь-

ник со сторонами 50 мм на 100 мм. Однородность активного слоя исследовалась путем сканирования α -активности площади мишени при помощи кремниевых полупроводниковых детекторов с малым телесным углом и составила 10 %.

Для того чтобы при проведении измерений сечений деления обеспечить идентичность условий эксперимента, на мишенях ^{238}U и ^{235}U со стороны активного слоя размещалась “маска” из алюминиевой фольги толщиной 0.1 мм, с помощью которой на поверхности активного слоя выделялась область в виде круга диаметром 48.0 ± 0.1 мм. Далее в НИЦ “Курчатовский институт” – ПИЯФ при помощи кремниевых полупроводниковых детекторов было выполнено измерение полной α -активности мишеней ^{238}U и ^{235}U с наложенной на них “маской”, не пропускающей α -частицы и осколки деления. По измеренной активности были найдены массы ^{238}U и ^{235}U в мишенях, используемые при измерении сечений деления. Статистическая точность определения этих масс изотопов ^{238}U и ^{235}U составила 0.6 и 0.9 %, соответственно. При этом измеренное отношение N_{U8}/N_{U5} числа ядер основного изотопа в мишенях ^{238}U и ^{235}U составило 5.364 ± 0.083 , что в пределах ошибок измерений совпадает с оценкой выполненной в АО “Радиевый институт им. В. Г. Хлопина”.

Общий вид экспериментальной установки, системы накопления и предварительной обработки данных представлен на рис. 1. Экспериментальная установка для измерения сечений деления состоит из сборки из двух позиционно-чувствительных много-

проволочных пропорциональных счетчиков (МППС) низкого давления [32], ионизационной камеры деления (ИКД) с мишенями ^{238}U для относительного мониторинга потока нейтронов и фотоумножителя, расположенного в пучке нейтронов, для формирования сигнала стартовой отметки нейтронного импульса (СТАРТ-детектор). Данная установка является модифицированной версией установки, использовавшейся ранее в измерениях угловых распределений осколков деления [33–37].

В процессе измерений осколки деления, вылетающие из мишени исследуемого вещества (^{238}U) и из мишени с реперным веществом (^{235}U), регистрировались в одном и том же измерительном сеансе сборкой из двух МППС, которые размещались в центре цилиндрической камеры диаметром 28 см и толщиной боковых стенок 2 мм, заполненной изобутаном при давлении 8 мбар. Камера на пучке нейтронов ориентировалась таким образом, чтобы ось пучка совпала с осью камеры и была перпендикулярна плоскостям мишеней и электродов МППС. В основаниях цилиндрической камеры там, где проходит пучок нейтронов, были сделаны круглые, диаметром 14 см, входное и выходное окна из стали толщиной 0.5 мм. Расстояния между мишенями с исследуемым и реперным веществом и катодом счетчика МППС 1 были 6 и 37 мм, соответственно. Аналогичные расстояния до катода счетчика МППС 2 равнялись 37 и 6 мм, соответственно.

Каждый из двух МППС состоял из трех проволочных электродов: двух анодов и одного катода. Сигналы с 2-х анодов и катода каждого МППС, а также сигнал с мониторинговой ИКД с мишенями ^{238}U через быстрые предусилители подавались на 7 входов 2-х преобразователей формы сигнала (Acqiris DC-270, разрешение 8 бит, частота дискретизации 500 МГц), на 8-й вход преобразователя подавался сигнал со СТАРТ-детектора. Запуск цифровых преобразователей осуществлялся при каждом сбросе протонного пучка на свинцовую мишень спектрометра ГНЕЙС с помощью сигналов со СТАРТ-детектора, регистрирующего вылетающие из этой мишени γ -кванты и нейтроны. Время оцифровки сигналов по всем 8-ми входам преобразователя составляло 8 мкс, что соответствует энергиям нейтронов от ~ 0.1 МэВ до 1 ГэВ. Далее волновые формы, полученные с преобразователей формы сигналов, считывались в компьютер и сохранялись на жесткий диск для оперативного контроля получаемой информации и последующей офлайн обработки. В результате анализа полученных волновых форм формировались угловые распределения осколков де-

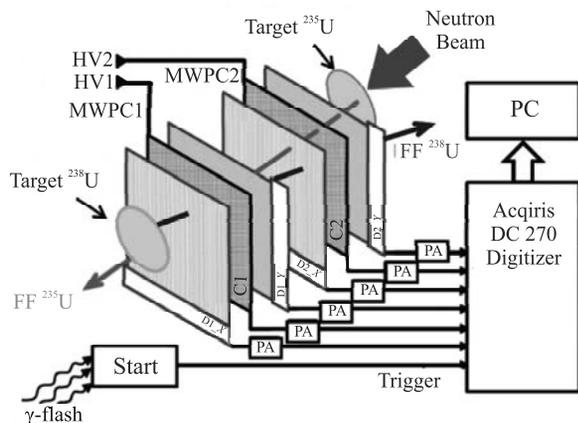


Рис. 1. (Цветной онлайн) Общий вид экспериментальной установки и системы накопления данных: Start – СТАРТ-детектор; PA – предусилитель; HV1, HV2 – источники высоковольтного питания; аноды D1 X, D2 X – детекторы 1, 2 (ось X); аноды D1 Y, D2 Y – детекторы 1, 2 (ось Y); C1, C2 – катоды МППС1 и МППС2 соответственно

ления и определялось отношение сечений деления исследуемого и реперного ядер.

Поскольку нейтрон, вызывающий деление, передает импульс делящемуся ядру, измеренное угловое распределение осколков отличается от углового распределения осколков в системе центра масс (с.ц.м.) делящегося ядра. Чтобы учесть данный эффект, измерения сечений деления и угловых распределений осколков были выполнены для двух ориентаций установки относительно падающего пучка нейтронов: 1 – направление пучка и продольная составляющая импульса регистрируемого осколка деления исследуемого ядра ^{238}U направлены противоположно и 2 – направление пучка и продольная составляющая импульса регистрируемого осколка деления исследуемого ядра совпадают. Изменение ориентации достигалось поворотом цилиндрической камеры с МППС на 180° вокруг оси, проходящей через ее центр и перпендикулярной направлению движения нейтронов в пучке. Такой поворот также позволяет свести к минимуму эффекты, связанные с ослаблением потока нейтронов на мишенях и конструкции МППС.

При проведении относительных измерений осколков деления исследуемого и реперного ядер регистрируются одними и теми же МППС. Поэтому при обработке данных возникает необходимость идентифицировать, осколок какого делящегося ядра был зарегистрирован. Если принять во внимание, что при делении исследуемого ядра осколок движется от МППС1 к МППС2, а при делении реперного – от МППС2 к МППС1, то такая идентификация может быть выполнена при помощи измерения времени пролета осколка от катода МППС2 (С2) до катода МППС1 (С1). На рисунке 2 представлены времяпролетные

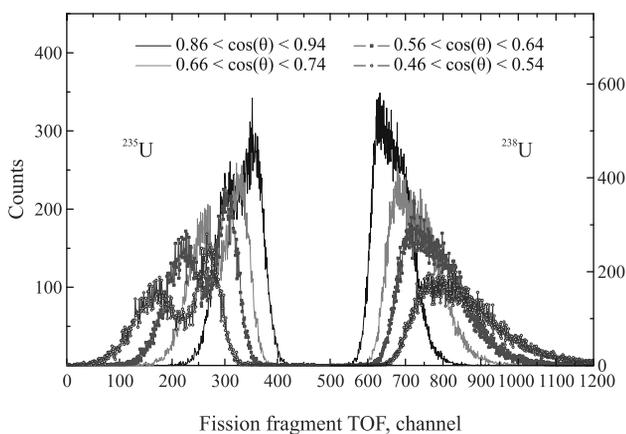


Рис. 2. (Цветной онлайн) Времяпролетный спектр осколков деления ^{238}U (справа от 480 канала) и ^{235}U (слева от 480 канала) в зависимости от угла θ

спектры осколков деления для выделенных углов разлета осколков относительно нормали к плоскости электродов МППС, полученные в одном измерительном сеансе. Хорошо заметны две отдельные группы событий, которые соответствуют делению $^{238}\text{U}(n, f)$ и $^{235}\text{U}(n, f)$.

Дальнейшая процедура выделения событий деления была организована способом, аналогичным тому, который достаточно полно описан в работах [34, 35]. Для примера на рис. 3 представлены амплитудные

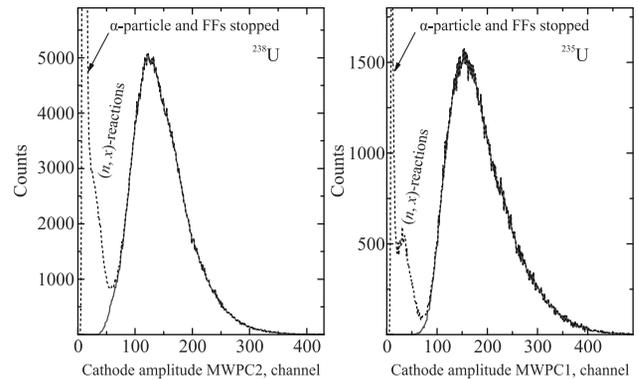


Рис. 3. (Цветной онлайн) Амплитудный спектр сигналов с катода МППС, ближайшего к мишени ^{238}U (слева) и ^{235}U (справа), соответственно. Непрерывной линией (красного цвета) обозначен спектр, полученный после отбора “полезных” событий деления, а прерывистой – до отбора

спектры с катода МППС, полученные до и после выделения “полезных” событий деления. Существенным моментом является то, что удается добиться практически идеального отделения “полезных” событий деления от фоновых реакций, индуцированных нейтронами в подложке мишени и на других материалах детектора.

Расчет эффективности регистрации осколков деления сборкой из двух позиционно-чувствительных МППС производился с использованием метода Монте-Карло, в котором, помимо геометрии МППС, также были учтены следующие особенности, связанные с процедурой измерений: профиль нейтронного пучка, размеры выделяемого “маской” активного пятна мишени и пространственное разрешение МППС. Эффективность регистрации осколков деления составила $\sim 45\%$, а максимальный угол регистрации осколков относительно нормали к плоскости электродов МППС – 71° . Так как при проведении измерений геометрия и условия проведения измерений для реперного ^{235}U и исследуемого ^{238}U ядер были идентичными, эффективность реги-

страции осколков деления является одинаковой для реперного и исследуемого ядер.

Отметим также, что в данной геометрии по сравнению с использовавшейся ранее [32–37] расстояние между двумя МППС увеличилось с 3 до 20 мм. В результате этого удалось полностью избежать искажения измеряемых угловых распределений осколков, обусловленного взаимным влиянием сигналов (так называемый “cross-talk” эффект) с анодов двух соседних МППС, и дополнительные поправки, как это было ранее, вводить не потребовалось.

На рисунке 4 представлена анизотропия $W(0^\circ)/W(90^\circ)$ осколков деления ^{238}U , получен-

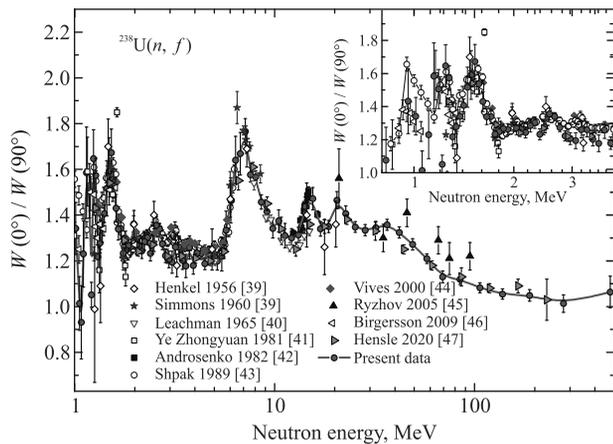


Рис. 4. (Цветной онлайн) Анизотропия осколков деления ^{238}U в сравнении с экспериментальными данными других авторов [38–47]. Указанные ошибки являются статистическими. Сплошная кривая приведена только для визуализации экспериментальных данных

ная для интервала энергий нейтронов 0.8–500 МэВ с использованием как данных настоящей работы, так и результатов измерений, выполненных нами ранее [33]. Отметим, что в работе [33] выделение событий деления производилось только с использованием амплитудных спектров с катодов МППС, а эффективность регистрации осколков деления в зависимости от угла регистрации при этом предполагалась постоянной величиной. Это могло привести к искажению полученных ранее зависимостей. Поэтому данные [33], полученные ранее, были переработаны аналогично тому, как это было сделано в наших более поздних работах [34–37]. Оказалось, что отличие между данными [33], полученными нами ранее, и результатами совместной обработки данных, выполненной в настоящей работе, находится в пределах ошибок измерений, поэтому на рис. 4 представлены только данные, полученные в результате совместной обработки данных. Экспери-

ментальные данные других авторов [38–47], взятые из библиотеки EXFOR [7], также представлены на рис. 4. На вставке к рис. 4 представлена угловая анизотропия осколков в области энергий нейтронов ниже 4.0 МэВ. Для регистрации осколков деления в указанных работах использовались пропорциональные газовые счетчики [39], “улавливающие” фольги [40], “трековые” детекторы [41–43], а также ионизационная камера деления с сеткой [38, 44–46] и время-проекционная камера [47].

Наблюдаемое в области энергий нейтронов ниже 20 МэВ общее согласие между данными по угловой анизотропии осколков, полученными в настоящей работе, и данными других авторов может служить доказательством точности и надежности использованной нами методики измерений и обработки данных, поскольку методики, использованные разными авторами, отличаются как типом детекторов, так и свойствами нейтронных источников. Для энергий нейтронов выше 20 МэВ в пределах экспериментальных ошибок наблюдается согласие наших данных с результатами измерений [47], выполненных в LANSCE, тогда как данные [45] демонстрируют более высокую анизотропию угловых распределений осколков деления.

Полученные нами результаты для отношения $R(E) = \sigma_f^{U8}/\sigma_f^{U5}$ сечений деления ядер ^{238}U и ^{235}U приведены на рис. 5 вместе с результатами работ

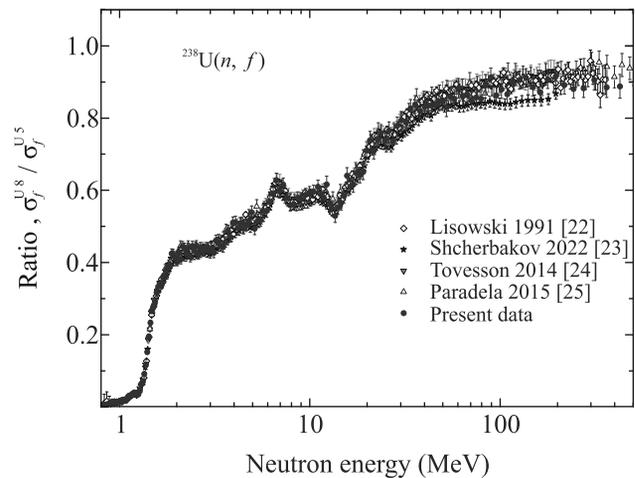


Рис. 5. (Цветной онлайн) Отношение сечений деления ^{238}U и ^{235}U (сравнение результатов измерений настоящей работы с экспериментальными данными других авторов, взятыми из библиотеки EXFOR)

[22–25], выполненных ранее. Цифровые данные взяты из библиотеки EXFOR.

При определении отношения R в настоящей работе была учтена поправка на анизотропию угловых

Таблица 1. Относительные погрешности измерений R , отношения сечений деления ^{238}U и ^{235}U

Статистическая точность	60 – 2.4 % (0.3 – 1.4 МэВ) 2.4 % (выше 1.4 МэВ)
Ослабление потока нейтронов	менее 0.3 %
Анизотропия	10 % (ниже 0.8 МэВ) 3 % (0.8 – 1.2 МэВ) 1.2 % (выше 1.2 МэВ)
Чистота мишеней	2 % (ниже 0.8 МэВ) 0.2 % (0.8 – 2.0 МэВ) $\sim 10^{-4}$ % (выше 2 МэВ)
Эффективность МППС (геометрическая неопределенность)	0.3 %
Нормировочный множитель N_{U6}/N_{U5}	1.5 %
Полная погрешность	3.1 %
Неопределенность ^{235}U стандарта	
$\sigma_f(^{235}\text{U})$	1.3 – 1.5 % (ниже 20 МэВ)
	1.5 – 4.8 % (20 – 200 МэВ)
	5 – 7 % (выше 200 МэВ)

распределений осколков деления и ограниченный телесный угол регистрации осколков деления. Эта поправка в среднем составила около 2 % и определялась с использованием угловой анизотропии осколков деления ^{238}U и ^{235}U , полученных в результате совместного анализа выполненных нами ранее измерений [33] и данных настоящей работы. Также была учтена поправка, учитывающая изотопный состав вещества мишеней, которая составляет менее 0.1 % в интервале энергий нейтронов выше 1 МэВ, а с уменьшением энергии нейтрона начинает увеличиваться и достигает своего максимального значения 8 % при энергии нейтрона 0.3 МэВ. Относительные ошибки измеренного в настоящей работе отношения сечений деления приведены в табл. 1. Достигнутая в данной работе статистическая точность в диапазоне энергий выше 1.4 МэВ в среднем составляет 2.4 %. Полная средняя систематическая ошибка измерений составляет 1.9 % и в большей степени определяется неопределенностью поправки на анизотропию разлета осколков – 1.2 % и неопределенностью нормировочного множителя – 1.5 %.

Сечение деления $^{238}\text{U}(n, f)$ получено нами как произведение измеренного отношения R и стандарта $\sigma_f(^{235}\text{U})$ – сечения деления ядра $^{235}\text{U}(n, f)$ [5, 6]. На рисунке 6 выполнено сравнение сечения деления $^{238}\text{U}(n, f)$, полученного в данной работе, с результатами некоторых упомянутых выше работ и с оценкой из библиотеки ENDF/B-VIII.0 [48]. Отметим, что эта оценка в интервале энергий нейтронов 2 – 30 МэВ практически совпадает с рекомендованным сечением деления ядра $^{238}\text{U}(n, f)$ [5, 6]. Для всех представленных на рис. 6 данных сечение $^{238}\text{U}(n, f)$ определялось как произведение измеренного отношения R

и стандарта $\sigma_f(^{235}\text{U})$, за исключением работы [27], в которой из-за большой неопределенности потока нейтронов (~ 10 %), связанной с геометрией эксперимента, измеренное отношение сечений деления ^{238}U и ^{235}U нормировалось на величину, рассчитанную как отношение сечений деления ^{238}U и ^{235}U для энергии нейтрона 14.5 МэВ, взятую из библиотеки оцененных данных ENDF/B-VIII.0. Поэтому, для удобства сравнения, эти данные были перенормированы на соответствующее значение из библиотеки ENDF/B-VIII.0, а в качестве ошибки нормировки была использована ошибка отношения рекомендованных сечений деления ^{238}U и ^{235}U , которая для энергии нейтрона 14.5 МэВ составляет 1.8 %.

Отдельно укажем, что в качестве результатов работы [25] на рис. 6 приведены только те данные, которые были получены, как и в настоящей работе, с использованием позиционно-чувствительных детекторов, которые размещались перпендикулярно потоку нейтронов, вызывающих деление. Аналогичным образом, в качестве результатов работы [26] на этом рисунке приведены лишь данные, полученные с использованием многосекционной ионизационной камеры, поскольку именно в этом случае авторам удалось опуститься по энергии нейтронов максимально низко, до ~ 0.3 МэВ.

Как видно из сравнения результатов, представленных на рис. 6, в целом, в пределах полной погрешности (ошибка стандарта, сечения деления ^{235}U не включена) наблюдается согласие между данными настоящей работы и данными других авторов, а также оценкой из библиотеки ENDF/B-VIII.0. Тем не менее имеются некоторые различия, которые можно видеть на рис. 7, где приведено отношение дан-

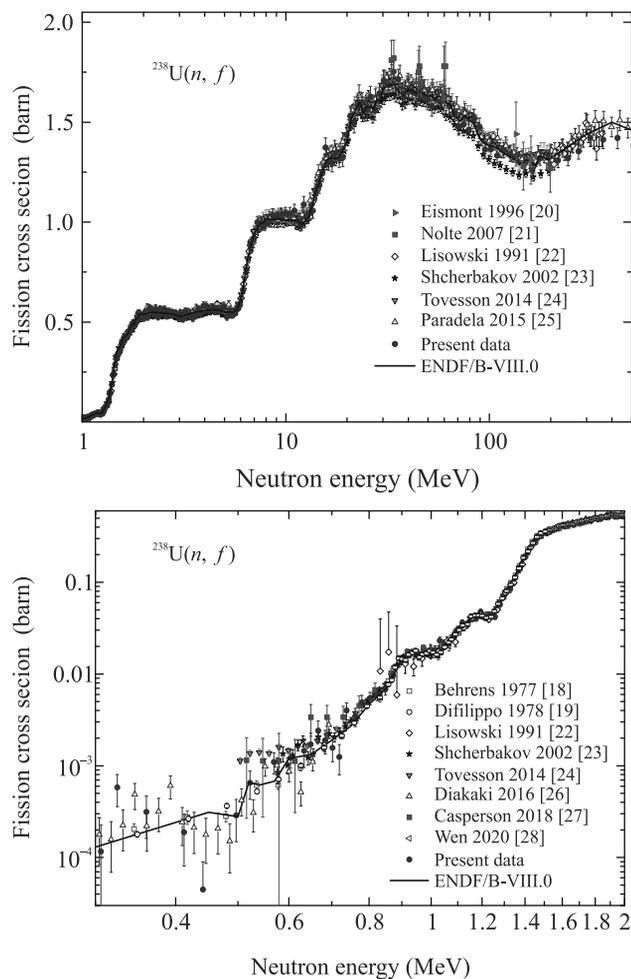


Рис. 6. (Цветной онлайн) Сечение деления ^{238}U нейтронами, полученное нами и в ранее выполненных работах [18–28]. Непрерывная линия: ниже 30 МэВ – результат оценки ENDF/B-VIII.0, выше 30 МэВ – рекомендованное сечение деления ^{238}U [5, 6]. Приведенные на рисунке ошибки – полные

ных, представленных на рис. 6, и оценки из ENDF/B-VIII.0. Общим для представленных на рис. 7 работ является то, что измерения проводились на пучках нейтронов с непрерывным спектром с использованием метода времени пролета относительно сечения деления ^{235}U . Сравнение приведенных данных показывает, что в области энергий нейтронов 2–30 МэВ отношение экспериментальных данных и оценки из ENDF/B-VIII.0 является постоянным в пределах статистической точности измерений. При этом имеющееся среднее отклонение не превышает экспериментальную точность определения нормировочного множителя, связанного с неопределенностью толщины мишеней, эффективности регистрации детектора осколков деления и потока нейтронов (*scaling factor*).

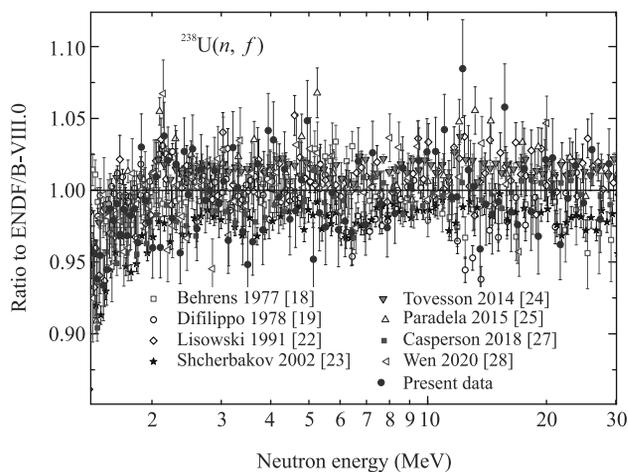


Рис. 7. (Цветной онлайн) Отношение сечения деления ^{238}U , полученного нами и в ранее выполненных работах с использованием метода времени пролета, и оценки ENDF/B-VIII.0 для этого сечения. Приведенные на рисунке ошибки – статистические

Это можно видеть на рис. 8, где показано среднее отклонение данных от оценки из ENDF/B-VIII.0 и ошибка полученного среднего отклонения, которая определялась из разброса экспериментальных точек относительно этого среднего, а также отмечен коридор ошибок экспериментальных данных, связанных с точностью нормировки. Такое поведение зависимостей, представленных на рис. 7 и 8, может сви-

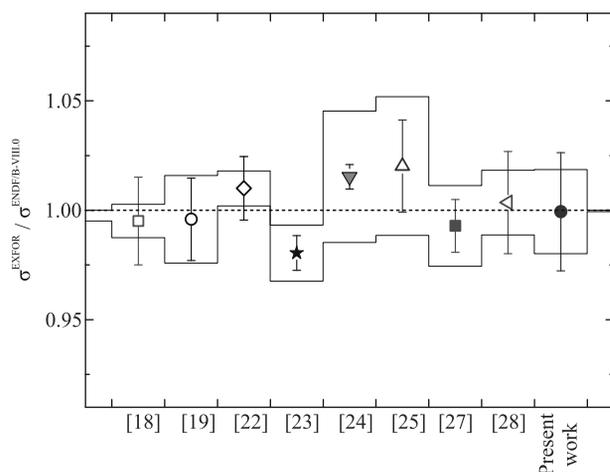


Рис. 8. (Цветной онлайн) Среднее отклонение сечения деления ^{238}U , полученного в обсуждаемых работах, от результатов оценки ENDF/B-VIII.0. Сплошной линией отмечен коридор ошибок, связанных с точностью нормировки на число ядер, эффективность регистрации осколков деления и потока нейтронов

детельствовать о том, что форма кривой сечения деления ^{238}U из библиотеки ENDF/B-VIII.0 доста-

точно корректно описывает имеющиеся экспериментальные данные, полученные на пучках нейтронов с непрерывным спектром с использованием метода времени пролета. В выполненной недавно работе [29] (цифровые данные, полученные в этой работе, отсутствуют в библиотеке EXFOR) также отмечается, что форма кривой измеренного сечения деления $^{238}\text{U}(n, f)$ согласуется с оценкой из ENDF/B-VIII.0, а среднее смещение относительно оценки ENDF/B-VIII.0 в интервале энергий нейтронов 0.5–200 МэВ составляет 0.02–0.13% (при неопределенности нормировочного коэффициента $\sim 1.6\%$).

При более детальном сравнении экспериментальных данных, представленных на рис. 7, можно заметить некоторые особенности. Так, если форма сечения деления из оценки ENDF/B-VIII.0 почти идеально описывает данные из работ [23, 24], то для данных [18, 19] и [27] полученное отклонение зависит от энергии нейтрона: в первом случае отклонение уменьшается на $\sim 2\%$ с ростом энергии нейтрона, а во втором – растет на $\sim 2\%$. Это говорит об отсутствии существенных систематических ошибок в представленных выше экспериментальных данных, меняющих ход энергетической зависимости сечения деления.

Отдельно заметим, что если выполнить нормировку экспериментальных данных по сечению деления ^{238}U из работ [22–25] на рекомендованное сечение деления ^{238}U , например, в области энергий нейтронов 2–5 МэВ, то ранее отмеченное расхождение указанных данных в области энергий нейтронов выше 100 МэВ будет устранено, так как в пределах экспериментальных ошибок эти данные будут совпадать, а рекомендованное сечение деления ^{238}U в пределах его ошибок будет совпадать со всеми экспериментальными данными.

На рисунке 9 представлено сравнение оценки из библиотеки ENDF/B-VIII.0 для сечения деления ^{238}U нейтронами и экспериментальных данных, полученных на ускорителях в отдельных энергетических точках с использованием различных экспериментальных методик. Видно, что в этом случае также можно говорить о корректности оценки из библиотеки ENDF/B-VIII.0 в области энергий нейтронов 2–20 МэВ. На данном рисунке дополнительно приведены отклонения, существующие между различными национальными библиотеками оцененных данных: ROSFOND-2010 [49], JEFF-3.3 [50], JENDL-5 [51], CENDL-3.2 [52] и ENDF/B-VIII.0. В указанном интервале энергий все оценки в пределах $\sim 2\%$ точности согласуются между собой, за исключением оценки CENDL-3.2, отклонение которой при энерги-

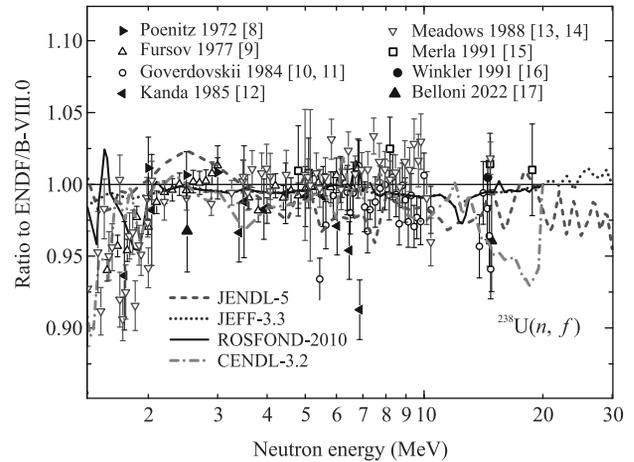


Рис. 9. (Цветной онлайн) Отношение сечения деления ^{238}U , полученного в обсуждаемых работах, и результатов оценки ENDF/B-VIII.0. Приведенные на рисунке ошибки – полные

ях нейтрона больше 10 МэВ начинает расти и достигает 7% для энергий нейтронов около 20 МэВ.

В заключение отметим, что в данной работе проведены новые измерения сечения деления ^{238}U в области энергий нейтронов до 500 МэВ. В интервале энергий до 30 МэВ полученные данные согласуются как с результатами многочисленных экспериментальных работ, выполненных с использованием различных источников нейтронов, так и с оценкой из международной библиотеки ENDF/B-VIII.0. Для энергий нейтронов выше 30 МэВ полученные нами данные также согласуются с рекомендованным сечением деления ^{238}U [5, 6]. Это свидетельствует о надежности представленной нами методики и возможности ее использования для получения данных по сечению деления ядер и угловым распределениям осколков деления, необходимых для развития новых ядерных технологий.

Авторы выражают искреннюю благодарность Е. М. Иванову и всему персоналу Ускорительного отдела НИЦ “Курчатовский институт” – ПИЯФ за постоянную дружескую поддержку и стабильную работу синхротрона во время проведения эксперимента, а также Л. С. Фалеву за помощь при создании экспериментальной установки и выполнении эксперимента.

1. The Generation IV International Forum (GIF), Technology Roadmap Update for Generation IV Nuclear Energy Systems, OECD-NEA, Paris (2014).
2. А. П. Глебов, ВАНТ, Серия Ядерно-реакторные константы 1, 77 (2020).

3. Report IAEA-TECDOC series, # 1766, Vienna, IAEA (2015).
4. Report IAEA-TECDOC series, # 1975, Vienna, IAEA (2021).
5. A. D. Carlson, V. G. Pronyaev, R. Capote et al. (Collaboration), Nuclear Data Sheets **148**, 143 (2018).
6. B. Marcinkevicius, S. Simakov, and V. Pronyaev, IAEA Report # INDC(NDS)-0681 (2015); <https://nds.iaea.org/standards/>.
7. Nuclear Reaction Data Library (EXFOR): International Collaboration Between Nuclear Reaction Data Centres (NRDC), Nuclear Data Sheets 120, 272 (2014); <https://www-nds.iaea.org/exfor/>.
8. W. P. Poenitz and R. J. Armani, Journal of Nuclear Energy **26**, 483 (1972).
9. B. I. Fursov, V. M. Kupriyanov, B. K. Maslennikov, and G. N. Smirenkin, Soviet Atomic Energy **43**, 808 (1977); EXFOR 40506002.
10. A. A. Goverdovskii, B. D. Kuz'minov, V. F. Mitrofanov et al. (Collaboration), Soviet Atomic Energy **56**, 173 (1984); EXFOR 40831003.
11. A. A. Goverdovskii, A. K. Gordyushin, B. D. Kuz'minov, A. I. Sergachev, S. M. Solov'ev, and P. S. Soloshenkov, Soviet Atomic Energy **56**, 176 (1984); EXFOR 40831004.
12. K. Kanda, O. Sato, K. Yoshida, H. Imaruoka, and N. Hirakawa, in: *Proc. of the 1984 Seminar on Nuclear Data*, JAERI, Japan, 1985, ed. by T. Asami and S. Igarasi (INDC(JPN)-98/G, JAERI, Japan, 1985), p. 220; EXFOR 21963006. <https://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-jpn-0098/>.
13. J. W. Meadows, Argonne National Laboratory Report # ANL/NDM-83 (1983); <https://www.ne.anl.gov/capabilities/nd/reports/ANLNDM-083.pdf>. EXFOR 10237003, 10506002.
14. J. W. Meadows, Ann. Nucl. Energy **15**, 421 (1988); EXFOR 13134007.
15. K. Merla, P. Hausch, C. M. Herbach, G. Musiol, G. Pausch, U. Todt, L. V. Drapchinsky, V. A. Kalinin, and V. I. Shpakov, in: *Proc. Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technology*, Julich, Germany, May 13–17, 1991, Springer-Verlag, Germany (1992), p. 510; EXFOR 22304003.
16. G. Winkler, V. E. Lewis, T. B. Ryves, and M. Wagner, in: *Proc. Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technology*, Julich, Germany, May 13–17, 1991, Springer-Verlag, Germany (1992), p. 514; EXFOR 22565002.
17. F. Belloni, R. Eykens, J. Heyse, C. Matei, A. Moens, R. Nolte, A. J. M. Plompen, S. Richter, G. Sibbens, D. Vanleeuw, and R. Wynants, Eur. Phys. J. A **58**, 227 (2022).
18. J. W. Behrens and G. W. Carlson, Nucl. Sci. Eng. **63**, 250 (1977); EXFOR 32798002.
19. F. C. Difilippo, R. B. Perez, G. de Saussure, D. K. Olsen, and R. W. Ingle, Nucl. Sci. Eng. **68**, 43 (1978); EXFOR 10635002.
20. V. P. Eismont, A. V. Prokofiev, A. N. Smirnov, K. Elmgren, J. Blomgren, H. Condé, J. Nilsson, N. Olsson, T. Rönqvist, and E. Tranéus, Phys. Rev. C **53**, 2911 (1996).
21. R. Nolte, M. S. Allie, F. D. Brooks, A. Buffler, V. Dangendorf, J. P. Meulders, H. Schuhmacher, F. D. Smit, and M. Weierganz, Nucl. Sci. Eng. **156**, 197 (2007); EXFOR 23078003.
22. P. W. Lisowski, A. Gavron, W. E. Parker, J. L. Ullmann, S. J. Balestrini, A. D. Carlson, O. A. Wasson, and N. W. Hill, in: *Proc. of the NENADC Specialists Meeting on Neutron Cross Section Standards for the Energy Region above 20 MeV*, 21–23 May, 1991, Uppsala, Sweden, NEADC report, # 305, p. 177 (1991); EXFOR 14016003.
23. O. Shcherbakov, A. Donets, A. Evdokimov, A. Fomichev, T. Fukahori, A. Hasegawa, A. Laptev, V. Maslov, G. Petrov, Yu. Tuboltsev, and A. Vorobiev, J. Nucl. Sci. Technol. **39**, 230 (2002); EXFOR 41455003.
24. F. Tovesson, A. Laptev, and T. S. Hill, Nucl. Sci. Eng. **178**, 57 (2014); EXFOR 14402009.
25. C. Paradela, M. Calviani, D. Tarrío et al. (n_TOF Collaboration), Phys. Rev. C **91**, 024602 (2015); EXFOR 23269003.
26. M. Diakaki, L. Audouin, E. Berthoumieux et al. (n_TOF Collaboration), EPJ Web of Conferences **111**, 02002 (2016); EXFOR 23269006.
27. R. J. Casperson, D. M. Asner, J. Baker et al. (NIFTFTE Collaboration), Phys. Rev. C **97**, 034618 (2018); EXFOR 14498002.
28. J. Wen, Y. Yang, Zh. Wen et al. (Collaboration), Ann. Nucl. Energy **140**, 107301 (2020); EXFOR 32798002.
29. Zh. Ren, Y. Yang, R. Liu et al. (Collaboration), Eur. Phys. J. A **59**, 5 (2023).
30. N. K. Abrosimov, G. Z. Borukhovich, A. B. Laptev, V. V. Marchenkov, G. A. Petrov, O. A. Shcherbakov, Yu. V. Tuboltsev, and V. I. Yurchenko, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **242**, 121 (1985).
31. O. A. Shcherbakov, A. S. Vorobyev, and E. M. Ivanov, Phys. Part. Nuclei **49**, 81 (2018).
32. A. M. Gagarski, A. S. Vorobyev, O. A. Shcherbakov, and L. A. Vaishnena, in: *Proc. of XXIV International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei "Fundamental Interactions and Neutrons, Nuclear Structure, Ultracold Neutrons, Related Topics"* (ISINN-24, Dubna, May 24–27, 2016), Dubna, JINR, E3-2017-8 (2017), p. 343.
33. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, JETP Lett. **102**(4), 203 (2015); EXFOR 41608004.
34. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, JETP Lett. **104**(6), 365 (2016).

35. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, *JETP Lett.* **107**(9), 521 (2018).
36. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, *JETP Lett.* **110**(4), 242 (2019).
37. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, *JETP Lett.* **112**(6), 323 (2020).
38. R. L. Henkel and J. E. Brolley Jr., *Phys. Rev.* **103**, 1292 (1956); EXFOR 13709003.
39. J. E. Simmons and R. L. Henkel, *Phys. Rev.* **120**, 198 (1960).
40. R. B. Leachman and L. Blumberg, *Phys. Rev.* **137**, B814 (1965); EXFOR 13708006.
41. Y. Zhongyuan, L. Jingwen, Zh. Shuhua, and H. Xiuhong, *Science in China, Series A* **25**(5), 502 (1982); EXFOR 30693003.
42. Kh. D. Androsenko, G. G. Korolev, and D. L. Shpak, *VANT, Ser.: Yadernye Konstanty* **46**(2), 9 (1982) (IAEA Report # INDC(CCP)-193, 9 (1982). <https://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-ccp-0193.pdf>); EXFOR 40825005.
43. D. L. Shpak, *Soviet Journal of Nuclear Physics* **50**, 574 (1989) [*Yadernaya Fizika* **50**(4), 922 (1989)]; EXFOR 41041002.
44. F. Vives, F.-J. Hamsch, H. Bax, and S. Oberstedt, *Nucl. Phys. A* **662**, 63 (2000); EXFOR 22402003.
45. I. V. Ryzhov, M. S. Onegin, G. A. Tutin, J. Blomgren, N. Olsson, A. V. Prokofiev, and P.-U. Renberg, *Nucl. Phys. A* **760**, 19 (2005); EXFOR 22898003.
46. E. Birgersson, A. Oberstedt, S. Oberstedt, and F.-J. Hamsch, *Nucl. Phys. A* **817**, 1 (2009); EXFOR 23054003.
47. D. Hensle, J. T. Barker, J. S. Barrett et al. (NIFTFE Collaboration), *Phys. Rev. C* **102**, 014605 (2020); EXFOR 14660003.
48. D. A. Brown, M. B. Chadwick, R. Capote et al. (Collaboration), *Nuclear Data Sheets* **148**, 1 (2018).
49. S. V. Zabrodskaya, A. V. Ignatyuk, V. N. Koscheev, V. N. Manohin, M. N. Nikolaev, and V. G. Pronyaev, *VANT. Ser.: Yadernye konstanty. 1–2, 3* (2007) (in Russian); <https://www-nds.iaea.org/exfor/ndf.htm>.
50. OECD and NEA, *The Joint Evaluated Fission and Fusion File (JEFF) – Version 3.3* (OECD-NEA, Paris, 2018); <https://www.oecd-nea.org/dbdata/jeff/jeff33/>.
51. O. Iwamoto, N. Iwamoto, K. Shibata, A. Ichihara, S. Kunieda, F. Minato, and S. Nakayama, *EPJ Web of Conferences* **239**, 09002 (2020); <https://www-nds.iaea.org/exfor/ndf.htm>.
52. Zh. Ge, R. Xu, H. Wu et al. (Collaboration), *EPJ Web of Conference* **239**, 09001 (2020); <https://www-nds.iaea.org/exfor/ndf.htm>.

Генерация перестраиваемого мощного малопериодного терагерцового излучения в органических кристаллах при накачке мультигигаваттными чирпированными лазерными импульсами ближнего ИК диапазона на длине волны 1.24 мкм

Б. В. Румянцев, А. В. Пушкин, Д. З. Сулейманова, Н. А. Жидовцев, Ф. В. Потемкин¹⁾

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

Поступила в редакцию 17 февраля 2023 г.

После переработки 4 марта 2023 г.

Принята к публикации 11 марта 2023 г.

В работе показана возможность управления спектром мощного малопериодного терагерцового излучения, генерируемого в органическом кристалле DAST, путем чирпирования излучения накачки, в качестве которого использовалось фемтосекундное лазерное излучение системы на кристалле хром-форстерита с длиной волны 1.24 мкм. Установлено, что увеличение линейного чирпа генерирующего излучения приводит к обужению спектра терагерцового излучения и его смещению в низкочастотную область. Проведенное моделирование процесса генерации терагерцового излучения в рамках модели трехволнового смещения показывает, что в основе данного эффекта лежит изменение ширины фазового синхронизма вырожденного процесса генерации разностной частоты терагерцового диапазона. Также проведен сравнительный анализ спектров терагерцового излучения, генерируемого в органических кристаллах DAST, DSTMS, OH1 и BNA, свидетельствующий о возможности более грубого управления спектрально-временными свойствами терагерцового излучения путем выбора требуемого кристалла. Продемонстрированный подход к управлению спектром терагерцового излучения путем чирпирования импульса накачки закладывает основу для проведения спектроскопических исследований с использованием мощного терагерцового излучения с управляемыми спектрально-временными свойствами.

DOI: 10.31857/S1234567823080025, EDN: voryue

Введение. Терагерцовое (ТГц) излучение (0.1–30 ТГц) находится между микроволновым и инфракрасным диапазонами частот электромагнитных волн, с энергиями фотонов, близкими к уровню Ферми, и пиковыми значениями напряженности электрического и магнитного поля около или выше МВ/см и Тесла соответственно [1, 2]. Кроме того, его пикосекундное/субпикосекундное временное разрешение определяет применение такого излучения в рамках время-разрешенной спектроскопии и имаджинге. В результате ТГц излучение может рассматриваться как уникальный источник “холодного света”, открывая новую область исследований взаимодействия света с веществом.

ТГц частоты соответствуют собственным фоновым и магнонным колебаниям большого числа сильно коррелированных электронных и магнитных систем. Таким образом, интенсивные ТГц поля на определенной частоте могут когерентно и резонансно передавать энергию колебаниям кристаллической

решетки материала, возбуждая тем самым новые электронные конфигурации и открывая возможности для получения новых состояний вещества. Это породило новую область исследований, известную как “*lighthwave quantum electronics*”, которая ориентирована на приложения в области квантовой обработки информации. Кроме того, ТГц импульсы могут ориентировать молекулы и, следовательно, регулировать большое количество каталитических процессов в химических технологиях [3]. Импульсы ТГц диапазона с сильным полем могут переворачивать спин электрона и обеспечивать нелинейное управление спином, закладывая основу для будущих сверхбыстрых устройств спинтроники [4]. В сочетании со сканирующей зондовой микроскопией импульсы сильного поля ТГц излучения могут генерировать туннельный ток на кончике сканирующего туннельного микроскопа, позволяя преодолевать дифракционный предел световой волны для ТГц диапазона и предоставляя новый мощный инструмент для управления состоянием новых наноразмерных материалов [5, 6]. ТГц-импульсы сильного поля обладают способ-

¹⁾e-mail: potemkin@physics.msu.ru

ностью ускорять, сжимать и управлять параметрами электронных сгустков в нескольких измерениях, что, по прогнозам, приведет к разработке настольных миниатюрных ТГц-ускорителей для использования в миниатюрных аттосекундных источниках рентгеновского излучения [7, 8]. Кроме того, интенсивное ТГц излучение используется для установления протоколов биологической безопасности в ТГц диапазоне, что особенно актуально в биологических приложениях [9].

Взаимодействие лазерного излучения с веществом на протяжении многих лет является определяющей темой в лазерной физике и нелинейной оптике. На более низких частотах большинство нелинейных явлений в терагерцовом режиме представляют собой оптические отклики, такие как нелинейное пропускание, отражение и поглощение в материалах, возбуждаемых импульсами сильного поля в терагерцовом диапазоне частот. В этом смысле нелинейные ТГц исследования мало отличаются от исследований, проводимых в оптическом диапазоне частот. Однако, в отличие от оптического диапазона, где нелинейные явления преимущественно связаны с распределением заряда (поляризацией), для ТГц диапазона по причине большей длительности одного периода колебания поляризация среды уже не является определяющим фактором. Из-за того, что определенные частоты ТГц излучения способны управлять низкочастотными движениями, такими как вращение молекул и колебания кристаллической решетки, посредством взаимодействия с ионными, электронными или спиновыми степенями свободы, ТГц излучение может резонансно возбуждать эти специфические моды в условиях возбуждения сильным ТГц полем. Кроме того, когда пиковая амплитуда ТГц поля на частоте 1 ТГц превышает 0.3 МВ/см, пондеромоторная энергия электрона может достигать 1 эВ, что превышает энергию ионизации примесных электронов в полупроводнике и может привести к ударной ионизации [2, 10] и туннельному эффекту [11].

Однако отсутствие экономичных и высокоэффективных источников интенсивного ТГц излучения с управляемой поляризацией сдерживает развитие нелинейной терагерцовой фотоники. По сравнению с ультракороткими и сверхмощными фемтосекундными лазерными источниками, работающими в видимом и ближнем ИК диапазонах, энергия одиночного импульса, пиковая напряженность поля и пиковая мощность ТГц излучения остаются значительно ниже. Эффективность генерации мощных ТГц импульсов можно значительно повысить при использовании

излучения ближнего и среднего ИК диапазона при генерации в специально ориентированных нелинейных органических кристаллах [1, 12], в одночастотных полях по ионизационному механизму возмущения низкочастотных фототоков [13], а также в условиях нарушения симметрии процесса в двухцветной схеме генерации разностной частоты в воздухе [14]. В первом случае, генерация ТГц излучения является наиболее эффективной при использовании излучения с накачкой 1.2–1.5 мкм. Во втором случае, использование излучения с длинами волн от 2 до 3 мкм увеличивает на несколько порядков (до 5–7%) эффективность двухцветной генерации ТГц излучения [15, 16].

Таким образом, в связи с актуальностью развития методов эффективной генерации мощного ТГц излучения с управляемыми спектрально-временными свойствами в данной работе осуществлена генерация мощного ТГц излучения при накачке органических кристаллов фемтосекундным лазерным излучением системы на кристалле хром-форстерита (длина волны 1.24 мкм), проведен анализ получаемых спектрально-временных распределений поля излучения, а также продемонстрирована возможность управления спектральным составом ТГц излучения путем chirпирования импульса накачки и приведено объяснение данного эффекта на основе численного моделирования процесса генерации.

Моделирование процесса генерации ТГц излучения. Для описания полученных экспериментальных результатов по генерации терагерцевого излучения при накачке органического кристалла DAST chirпированным лазерным излучением было проведено численное моделирование, основанное на решении системы укороченных уравнений, описывающих трехволновое взаимодействие. Процессы генерации суммарной и разностной частот рассматривались в приближениях медленно меняющихся амплитуд (ММА) [17–19] и плоских волн с учетом материальной дисперсии и поглощения в органическом кристалле DAST. Используемая модель учитывает нелинейные процессы второго порядка, отвечающие за генерацию разностной частоты (оптическое выпрямление), в том числе каскадный эффект, а также расстройку и дисперсию групповых скоростей взаимодействующих импульсов. Также учитывается линейное и трехфотонное поглощение оптического излучения накачки и линейное поглощение ТГц излучения в кристалле [20].

В приближении ММА оптическое и ТГц поля представимы в следующем виде:

$$\begin{cases} E_{\text{оп}}(\omega, z) = A_{\text{оп}}(\omega, z) \cdot e^{-ik(\omega)z}, \\ E_{\text{ТГц}}(\Omega, z) = A_{\text{ТГц}}(\Omega, z) \cdot e^{-ik(\Omega)z}. \end{cases} \quad (1)$$

В таком случае процесс генерации ТГц излучения в органическом кристалле DAST на основе оптического выпрямления описывается системой укороченных уравнений:

$$\begin{cases} \frac{dA_{\text{оп}}(\omega, z)}{dz} = -\frac{\alpha_{\text{оп}}(\omega)A_{\text{оп}}(\omega, z)}{2} - P_1(\omega, z) - P_2(\omega, z), \\ \frac{dA_{\text{ТГц}}(\Omega, z)}{dz} = -\frac{\alpha_{\text{ТГц}}(\Omega)A_{\text{ТГц}}(\Omega, z)}{2} - P_3(\Omega, z), \end{cases} \quad (2)$$

где слагаемые, описывающие нелинейное взаимодействие волн оптического и ТГц диапазона, имеют вид:

$$\begin{cases} P_1(\omega, z) = \frac{i\omega d_{\text{эф}}(\omega_0)}{n_{\text{оп}}c} \times \\ \quad \times \int_0^\infty A_{\text{оп}}(\omega + \Omega, z) A_{\text{ТГц}}^*(\Omega, z) \times \\ \quad \times e^{-i(k(\omega+\Omega) - k(\omega) - k(\Omega))z} d\Omega \\ P_2(\omega, z) = \frac{i\omega d_{\text{эф}}(\omega_0)}{n_{\text{оп}}c} \times \\ \quad \times \int_0^\infty A_{\text{оп}}(\omega - \Omega, z) A_{\text{ТГц}}(\Omega, z) \times \\ \quad \times e^{-i(k(\omega-\Omega) - k(\omega) + k(\Omega))z} d\Omega, \\ P_3(\Omega, Z) = \frac{i\Omega d_{\text{эф}}(\omega_0)}{n_{\text{ТГц}}c} \times \\ \quad \times \int_0^\infty A_{\text{оп}}(\omega + \Omega, z) A_{\text{оп}}^*(\omega, z) \times \\ \quad \times e^{-i(k(\omega+\Omega) - k(\omega) - k(\Omega))z} d\omega, \end{cases} \quad (3)$$

где $A_{\text{оп}}$, $A_{\text{ТГц}}$ – амплитуды волны накачки оптического диапазона и разностной частоты ТГц диапазона, $\alpha_{\text{ТГц}}$ и $\alpha_{\text{оп}}$ – коэффициенты поглощения ТГц излучения и излучения накачки оптического диапазона соответственно, $n_{\text{оп}}$ и $n_{\text{ТГц}}$ – показатели преломления волн ТГц и оптического диапазона соответственно, $d_{\text{эф}}$ – коэффициент эффективной нелинейности, ω и Ω – частоты волны накачки оптического диапазона и разностной частоты ТГц диапазона соответственно, $k(\omega)$ и $k(\Omega)$ – соответствующие им волновые числа, c – скорость света в вакууме, z – продольная координата вдоль оси распространения излучения.

В рамках моделирования считалось, что на вход кристалла подается гауссов импульс и соблюдаются следующие начальные и граничные условия:

$$\begin{cases} E_{\text{оп}}(z = 0, t) = \frac{1}{2} E_{0\text{оп}} e^{-2\ln(2)\left(\frac{t}{\Delta t_{\text{оп}}}\right)^2} + \text{к.с.}, \\ E_{\text{оп}}(t = -T/2) = 0, \\ E_{\text{оп}}(t = T/2) = 0, \end{cases} \quad (4)$$

где $E_{\text{оп}}$ – поле волны накачки оптического диапазона, $\Delta t_{\text{оп}}$ – длительность импульса, T – размер временного окна. Численное решение уравнений проводилось с помощью метода Рунге–Кутты 4-го порядка с пространственным разрешением 1 мкм [18].

Основные характеристики кристалла DAST, используемые в моделировании, рассчитывались следующим образом. Показатель преломления для волны накачки (1.24 мкм) [21] рассчитывался на основе формулы Селмейера, а показатель преломления для волны разностной частоты ТГц диапазона – с использованием модели осцилляторов Лоренца [22]. Используемый в моделировании коэффициент эффективной нелинейности $d_{\text{эф}}$ выражался через показатель преломления и электрооптический коэффициент. В случае использования излучения накачки хром-форстеритового лазера на длине волны 1.24 мкм значение $d_{\text{эф}}$ составляет 314 пм/В. Значение электрооптического коэффициента, отвечающего за оптическое выпрямление, было взято из работы [23]. Считалось, что кристалл ориентирован на максимум генерации, поэтому значение электрооптического коэффициента $r_{\text{эф}}$ принималось равным $r_{\text{эф}} = r_{111}$.

Для исследования влияния chirpa генерирующего импульса на параметры ТГц излучения в рамках данной модели была возможность chirпировать исходный импульс накачки за счет внесения дисперсии групповой задержки (ДГЗ) в спектральную фазу импульса, что соответствует случаю линейного chirпирования [24]. В этом случае гауссов импульс на входе в кристалл во временном представлении имел вид:

$$E(t) = \frac{E_0}{2\gamma^{1/4}} e^{-\frac{t^2}{4\beta\gamma}} e^{i(\omega_0 t + at^2 - \varepsilon)}, \quad (5)$$

где Δt – начальная длительность спектрально-ограниченного импульса, ϕ'' – дисперсия групповой задержки (ДГЗ), a – линейный chirп и

$$\begin{cases} \beta = \frac{\Delta t^2}{8\ln(2)}, \\ \gamma = 1 + \frac{\phi''^2}{4\beta^2}, \\ a = \frac{\phi''}{8\beta^2\gamma}, \\ \varepsilon = \frac{1}{2} \text{atan}\left(\frac{\phi''}{2\beta}\right). \end{cases} \quad (6)$$

Таким образом, для моделирования процесса генерации ТГц излучения в органическом кристалле входными параметрами являлись параметры импульса накачки – энергия, длительность, диаметр пучка, chirп импульса и его центральная частота, а также параметры исследуемого кристалла DAST – коэффициент эффективной нелинейности $d_{\text{эф}}$, показатели преломления, рассчитываемые на основе формулы Селмейера и модели осцилляторов Лоренца, а также толщина кристалла. Выходным параметром являлся спектр генерируемого ТГц излучения, получаемый посредством преобразования Фурье рассчитанного поля ТГц импульса.

Результаты и обсуждение. Для генерации ТГц излучения использовался мультигигаваттный хром-форстеритовый лазерный комплекс (длина волны 1.24 мкм, энергия 3.5 мДж, длительность 100 фс по уровню FWHM по интенсивности). Эксперименты выполнялись с использованием кристаллов DAST (размер 0.5×10 мм – толщина и диаметр соответственно), DSTMS (0.12×6 мм), ОН1 (0.87×6 мм) и BNA (0.8×6 мм). Для регистрации ТГц излучения использовался пироэлектрический детектор Gentec QE8SP-B-BC-D0 с размером приемной апертуры $\sim 8 \times 8$ мм, что гарантировало регистрацию полной энергии ТГц излучения при фокусировке на приемную часть в пятно диаметром $\sim 300\text{--}1000$ мкм по уровню $1/e^2$. ТГц излучение отсекалось от оптического с помощью фильтра Tydex LPF23.4. Регистрация спектра ТГц излучения осуществлялась с помощью схемы интерферометра Майкельсона, где в качестве светоделителя использовалась пластина из высокоомного кремния (Tydex HRFZ-Si).

Сравнение спектров ТГц излучения при генерации в органических кристаллах. На рисунках 1 и 2 изображены корреляционная функ-

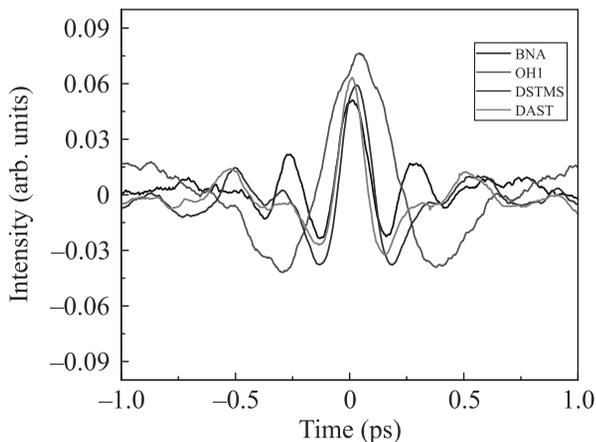


Рис. 1. (Цветной онлайн) Корреляционные функции ТГц излучения, полученного в органических кристаллах при их накачке мультигигаваттной хром-форстеритовой лазерной системой

ция первого порядка (корреляционная функция поля, полученная в схеме интерферометра Майкельсона) и спектр ТГц излучения, полученный путем преобразования Фурье корреляционной функции. Как свидетельствует рис. 2, кристаллы DAST, DSTMS и BNA позволяют получить существенно более широкий спектр ТГц излучения (вплоть до 5–6 ТГц) по сравнению со спектром излучения из кристалла ОН1, который локализован преимущественно в окрестности 1 ТГц. Следует отметить, что в спектрах

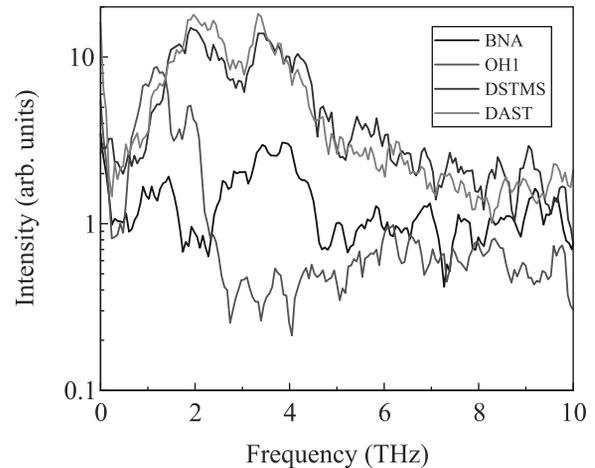


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры ТГц излучения, полученного в органических кристаллах при их накачке мультигигаваттной хром-форстеритовой лазерной системой

ТГц излучения, полученного из кристаллов DAST и DSTMS, характерный провал в области 1 ТГц, обусловленный фоновым поглощением, практически не виден, что может быть следствием ограниченного спектрального разрешения. Более явно данный провал выражен в спектрах для кристалла DAST, приведенных в следующем разделе статьи. Также можно отметить, что ширины спектров, полученных в кристаллах DAST, DSTMS и ОН1, больше ширин, полученных в работе [12] для данных кристаллов при накачке хром-форстеритовым лазерным излучением – примерно 2.5 против 2 ТГц, 2.8 против 0.6 ТГц, 1.2 против 0.8 ТГц соответственно. Данный эффект может объясняться, как следует из результатов ниже, большей величиной остаточного чирпа излучения накачки в указанной работе.

Аппроксимация автокорреляционной функции поля ТГц излучения гауссовой огибающей позволила установить ее ширину по уровню FWHM, которая для кристаллов DAST и DSTMS составила $\Delta t_{ACF} \sim 750$ фс и ~ 670 фс соответственно, что при условии отсутствия чирпа в ТГц импульсе соответствует длительности ТГц импульса $\Delta t_{THz} = \Delta t_{ACF}/1.41 \sim 530$ фс и ~ 470 фс соответственно (табл. 1). Оценка длительности одного цикла поля для ТГц излучения с центральной частотой ~ 3 ТГц, генерируемого в данных кристаллах, дает значение ~ 330 фс, что говорит о генерации в органических кристаллах DAST и DSTMS ТГц излучения предельно короткой длительности, близкой к одной осцилляции поля. Оценка длительности ТГц импульса, полученного в кристалле ОН1, составляет 1.1 пс, при этом центральная частота в спектре

Таблица 1. Сводная таблица с эффективностью преобразования и временными характеристиками генерируемого ТГц излучения для кристаллов DAST, DSTMS, OH1, BNA

Кристалл	DAST 0.5 × 10 мм	DSTMS 0.12 × 6 мм	OH1 0.87 × 6 мм	BNA 0.8 × 6 мм
Эффективность преобразования, %	2.00	0.8	1.00	0.7
Ширина спектра FWHM, ТГц	2.5	2.8	1.2	2
Длительность импульса FWHM, фс	530	470	1100	660
Центральная частота, ТГц	3	3	1.5	3.5
Длительность периода поля, фс	330	330	670	290
Количество периодов поля в импульсе FWHM, шт.	1.61	1.42	1.64	2.28

ТГц излучения для данного кристалла составляет 1.5 ТГц, что соответствует периоду осцилляций поля на уровне 670 фс. Как и для кристаллов DAST и DSTMS, это свидетельствует о генерации в кристалле OH1 излучения с длительностью, близкой к одной осцилляции поля, однако с большим периодом осцилляций. Оценка длительности ТГц импульса, полученного в кристалле BNA, составляет 660 фс, что с учетом центральной частоты спектра на 3.5 ТГц и соответствующего периода поля 290 фс свидетельствует о генерации малопериодного импульса длительностью в примерно 2 цикла поля.

Отметим, что лазерное излучение на длине волны 1.24 мкм мультигигаваттного уровня мощности использовалось для накачки кристалла BNA впервые, достигнутая эффективность преобразования составила 0.7 %. Измеренный спектр излучения кристалла BNA (рис. 2) находится в хорошем согласии с результатами работы [25], где в качестве накачки использовалась сигнальная волна параметрического усилителя.

Таким образом, грубое спектрально-временное управление полем ТГц излучения может быть реализовано путем использования для генерации набора органических кристаллов DAST, DSTMS, OH1 и BNA.

Управление спектром ТГц излучения путем чирпирования импульса накачки. В качестве более прецизионного способа управления спектрально-временной формой поля ТГц излучения, генерируемого в кристаллах, может выступать изменение чирпа излучения накачки. Для подтверждения указанного подхода в рамках данной работы проведены эксперименты по

генерации ТГц излучения в кристалле DAST чирпированным фемтосекундным излучением лазерной системы на кристалле хром-форстерита. Выбор кристалла DAST для проведения эксперимента с чирпированием импульса накачки обусловлен одновременно большой шириной спектра и наибольшей эффективностью преобразования среди использованных кристаллов, что позволяло максимизировать соотношение сигнал-шум при измерениях.

Использование кристалла с широкой апертурой (10 мм) позволило добиться коэффициента преобразования на уровне 2 % в режиме насыщения эффективности, что с учетом поглощения части энергии в фильтре Tydex LPF23.4 (~ 50 %) соответствовало энергии ТГц импульса на уровне 70 мкДж (рис. 3) сразу после кристалла.

Расширение пучка ТГц излучения с помощью внесевых парабол и последующая его фокусировка позволили получить пучок в перетяжке диаметром 330 мкм по уровню $1/e^2$ по интенсивности (см. рис. 4), что свидетельствует о возможности достижения электрического поля на уровне 15 МВ/см в перетяжке пучка при использовании полной (70 мкДж) энергии ТГц импульса. С учетом поглощения энергии ТГц импульса в фильтре Tydex LPF23.4 (пропускание ~ 50 % для генерируемого спектра частот) и поглощения на осушенной (влажность 30 %) воздушной трассе длиной ~ 0.5 м (пропускание ~ 45 %) энергия импульса в перетяжке составила ~ 15 мкДж, что соответствует достигаемой величине поля ~ 7 МВ/см.

Достижение указанного сильного поля ТГц излучения также было подтверждено экспериментально – путем регистрации эффекта просветления об-

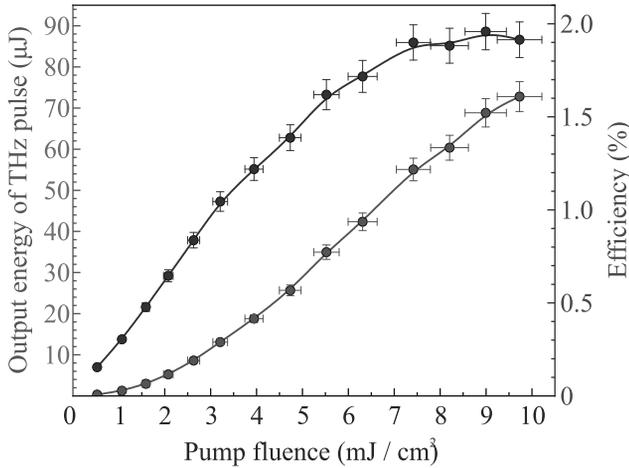


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость выходной энергии и эффективности преобразования от плотности энергии накачки на длине волны 1.24 мкм для кристалла DAST

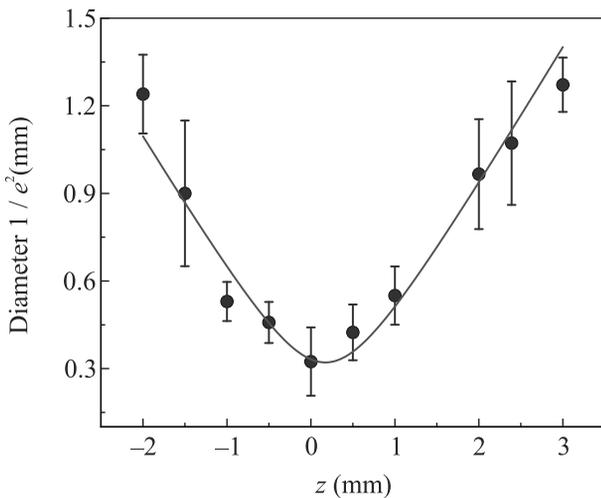


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость диаметра пучка ТГц излучения от продольной координаты z при фокусировке. Измерение производилось методом “ножа” [26]

разца кремния толщиной ~ 300 мкм с электронным типом проводимости с концентрацией носителей заряда $\sim 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ (рис. 5). Эффект регистрировался с помощью техники z -scan [10], в рамках которой образец перемещался в продольном направлении в окрестности перетяжки с помощью микрометрической подвижки, при каждом положении образца регистрировалась прошедшая через него энергия ТГц излучения. Как свидетельствует график на рис. 5, при расположении образца в перетяжке пропускание увеличивалось в ~ 2 раза: с 4.5 до 10%. Таким образом, зарегистрированный эффект просветления

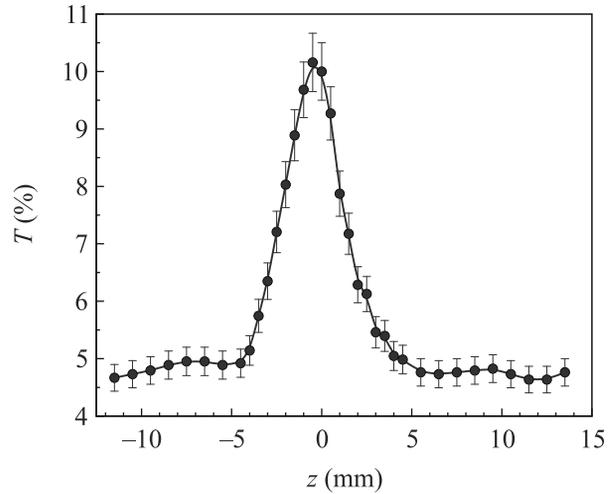


Рис. 5. (Цветной онлайн) График зависимости пропускания образца кремния с электронным типом проводимости от продольной координаты z расположения образца в окрестности перетяжки

подтверждает получение в кристалле DAST сильного поля ТГц излучения, достаточного для наблюдения нелинейно-оптических эффектов в ТГц диапазоне длин волн.

Изменение формы спектра ТГц излучения при изменении чирпа импульса накачки на длине волны 1.24 мкм представлено на рис. 6. Как свидетельствуют экспериментальные спектры на рис. 6, чирширо-

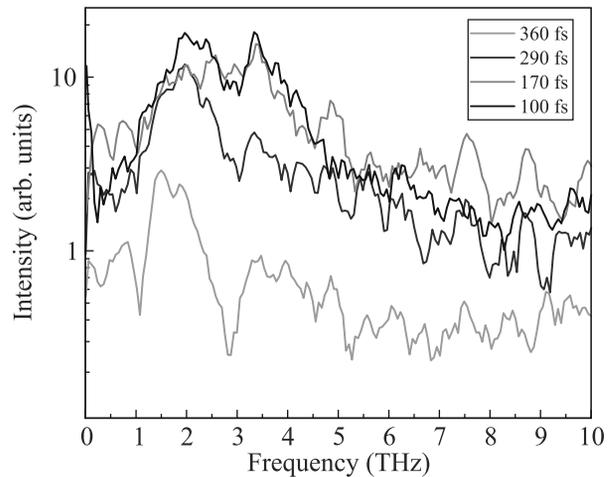


Рис. 6. (Цветной онлайн) Экспериментальные спектры ТГц излучения, генерируемого в процессе оптического выпрямления чиршированного хром-форстеритового лазерного импульса на длине волны 1.24 мкм в кристалле DAST

вание импульса накачки влияет на два параметра в спектре ТГц излучения – на ширину спектра и его центральную длину волны. При внесении положи-

тельного чирпа и соответствующем изменении длительности лазерного импульса от спектрально ограниченного (~ 100 фс) до чирпированного (~ 360 фс) центральная длина волны ТГц излучения смещается от 3 до 1.5 ТГц при синхронном изменении ширины спектра от ~ 2.5 ТГц до ~ 1 ТГц. Для объяснения данного эффекта было проведено численное моделирование, основанное на решении системы укороченных уравнений, описывающих процессы трехволнового смешения (рис. 7, подробности см. выше).

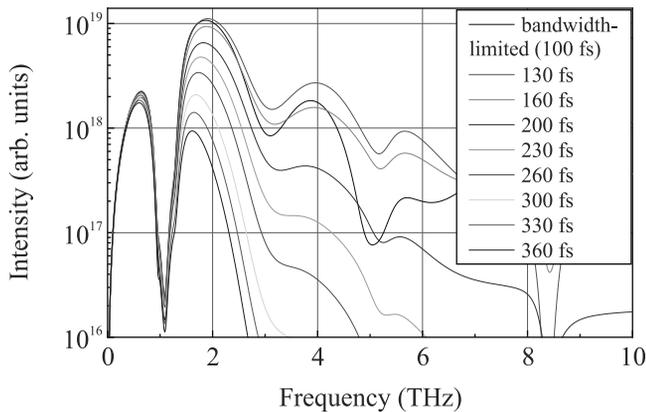


Рис. 7. (Цветной онлайн) Расчетные спектры ТГц излучения, генерируемого в процессе оптического выпрямления чирпированного хром-форстеритового лазерного импульса на длине волны 1.24 мкм в кристалле DAST (расчет на основе системы укороченных уравнений для трехволнового смешения)

Моделирование процесса генерации ТГц излучения показывает, что при накачке кристалла DAST толщиной 500 мкм спектрально-ограниченным импульсом накачки хром-форстеритового лазера (~ 100 фс) возможна генерация ТГц излучения в диапазоне до 8 ТГц с двумя спектральными максимумами 0.4 и 2 ТГц. Излучение на длинах волн более 6–8 ТГц испытывает значительное поглощение на атмосферных трассах, поэтому результаты моделирования предсказывают большую по сравнению с экспериментом интенсивность генерируемого излучения в данной частотной области. Максимум в области 2 ТГц может быть связан с лучшим согласованием скоростей импульсов накачки и ТГц излучения (2 ТГц), так как в этом случае длина когерентности оказывается равной длине используемого кристалла и составляет ~ 500 мкм, а провал в области 1 ТГц может быть объяснен наличием линии поглощения кристалла DAST в данном частотном диапазоне. При чирпировании импульса накачки ширина спектра генерируемого ТГц излучения уменьшается при одновременном снижении спектральной амплитуды компоненты на

частоте 2 ТГц, что наблюдается как в модельных, так и в экспериментальных спектрах. В случае отрицательного чирпирования (внесения отрицательной дисперсии групповой задержки) до 300 фс наблюдалась аналогичная эволюция спектра генерируемого ТГц излучения. Демонстрируемое согласие теории и эксперимента говорит о том, что в основе наблюдаемых эффектов лежит изменение ширины фазового синхронизма вырожденного процесса генерации разностной частоты, так как при чирпировании импульсов накачки ширина спектра ТГц излучения определяется мгновенными временным перекрытием спектральных компонент импульсов накачки в нелинейном кристалле.

Стоит отметить, что, как свидетельствуют спектры на рис. 6, чирпирование приводит к уменьшению спектральной интенсивности на всех частотах спектра излучения. При этом большее уменьшение спектральной интенсивности происходит для высоких частот, что ведет к изменению формы спектра: его обужению и смещению центральной частоты. Иначе говоря, при чирпировании излучения накачки разная степень подавления конверсии на разных частотах ТГц диапазона приводит к изменению формы спектра ТГц излучения, что и позволяет добиться спектральной перестройки.

Несмотря на уменьшение энергии ТГц импульса при подобной перестройке, чирпирование импульса накачки для управления формой спектра ТГц излучения имеет практический смысл даже на фоне возможности управления спектральным составом излучения путем использования ТГц-фильтров. Во-первых, существенным преимуществом спектральной перестройки на основе чирпирования импульса накачки является возможность плавного изменения формы спектра, что трудноосуществимо с использованием ТГц-фильтров. Во-вторых, уменьшение эффективности преобразования при чирпировании импульса накачки может быть меньше, чем при использовании для спектрального управления ТГц-фильтров. Так, чирпирование импульса накачки до 360 фс привело к обужению спектра в ~ 2.5 раза (рис. 6), при этом энергия импульса уменьшилась в ~ 6 раз. Схожее обужение спектра так же в 2.5 раза с использованием коммерчески доступного фильтра низких частот Tydex LPF3.2 с минимальной из доступных частот отсечки 3.2 ТГц (94 мкм) привело бы к уменьшению энергии в ~ 2 –2.5 раза в силу симметричности спектра относительно 3 ТГц, а также дополнительному уменьшению в ~ 6 раз за счет неидеальной спектральной кривой пропускания, что суммарно дает уменьшение энергии ТГц

излучения при подобном обужении спектра в 12–15 раз. По сравнению с этим значением, выигрыш по энергии при использовании chirпированного импульса накачки составляет ~ 2 –2.5 раза. Таким образом, практический смысл chirпирования импульса накачки для перестройки спектра ТГц излучения обусловлен меньшим падением выходной энергии ТГц излучения, чем при использовании коммерчески доступных фильтров низких частот, а также возможностью плавного изменения формы спектра.

Заключение. В рамках данной работы проведен сравнительный анализ спектров ТГц излучения, генерируемого в органических кристаллах DAST, DSTMS, OH1 и BNA фемтосекундным лазерным излучением системы на кристалле хром-форстерита с длиной волны 1.24 мкм. При этом генерация ТГц излучения в органическом кристалле BNA в условиях накачки мультигигаватным излучением на длине волны 1.24 мкм реализована впервые, достигнутая эффективность преобразования составила 0.7%. Показано, что использование указанного набора кристаллов позволяет осуществлять грубое управление спектрально-временными свойствами генерируемого ТГц излучения и изменять ширину и положение спектра генерируемого излучения, а также длительность и количество осцилляций поля ТГц импульса.

Также показано, что более тонкое управление спектрально-временными свойствами мощного ТГц излучения может быть осуществлено путем chirпирования импульса накачки, что приводит к смещению и обужению спектра генерируемого ТГц излучения за счет изменения ширины фазового синхронизма вырожденного процесса генерации разностной частоты ТГц диапазона.

Таким образом, впервые предложены подходы по генерации мощного перестраиваемого малопериодного ТГц излучения в органических кристаллах, что в сочетании с нелинейно-оптическими методами расширения спектра лазерного излучения [27–29] формирует основу для создания сверхширокополосного источника когерентного излучения от УФ до ТГц диапазона, открывающего путь к время-разрешенной мультиспектральной спектроскопии переходных процессов в веществе в диапазоне от фемтосекундных до аттосекундных масштабов времени. Использование полученного перестраиваемого сильного ТГц поля также открывает возможности для исследования процесса генерации гармоник высокого и низкого порядков фемтосекундным лазерным излучением ближнего и среднего ИК диапазонов [30, 31] в присутствии сильного квазистационарного ТГц поля.

Исследования в части моделирования генерации мощного ТГц излучения в органических кристаллах поддержаны грантом Российского научного фонда # 20-19-00148, исследования в части экспериментальной генерации высокоинтенсивного ТГц излучения для использования в процессе генерации гармоник поддержаны грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 19-29-12030, исследования в части генерации перестраиваемого ТГц излучения для время-разрешенной диагностики переходных процессов в веществе поддержано грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 21-32-70021. Румянцев Б.В. и Сулейманова Д.З. являются стипендиатами фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

1. C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **39**(23), 6632 (2014).
2. X. Ch. Zhang, A. Shkurinov, and Y. Zhang, *Nat. Photonics* **11**(1), 16 (2017).
3. Sh. Fleischer, Y. Zhou, R. W. Field, and K. A. Nelson, *Phys. Rev. Lett.* **107**(16), 163603 (2011).
4. D. Afanasiev, J. R. Hortensius, B. A. Ivanov, A. Sasani, E. Bousquet, Y. M. Blanter, R. V. Mikhaylovskiy, A. V. Kimel, and A. D. Caviglia, *Nat. Mater.* **20**(5), 607 (2021).
5. T. L. Cocker, V. Jelic, R. Hillenbrand, and F. A. Hegmann, *Nat. Photonics* **15**(8), 558 (2021).
6. M. Plankl, P. E. Faria Junior, F. Mooshammer, T. Siday, M. Zizlsperger, F. Sandner, F. Schiegl, S. Maier, M. A. Huber, M. Gmitra, J. Fabian, J. L. Boland, T. L. Cocker, and R. Huber, *Nat. Photonics* **15**(8), 594 (2021).
7. E. A. Nanni, W. R. Huang, K.-H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R. J. Dwayne Miller, and F. X. Kärtner, *Nat. Commun.* **6**(1), 8486 (2015).
8. H. Tang, L. Zhao, P. Zhu, X. Zou, J. Qi, Y. Cheng, J. Qiu, X. Hu, W. Song, D. Xiang, and J. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **127**(7), 074801 (2021).
9. I. V. Il'ina, D. S. Sitnikov, and M. B. Agranat, *High Temperature* **56**, 789 (2018).
10. O. V. Chefonov, A. V. Ovchinnikov, S. A. Romashevskiy, X. Chai, T. Ozaki, A. B. Savel'ev, M. B. Agranat, and V. E. Fortov, *Opt. Lett.* **42**(23), 4889 (2017).
11. V. Jelic, K. Iwaszczuk, P. H. Nguyen, Ch. Rathje, G. J. Hornig, H. M. Sharum, J. R. Hoffman, M. R. Freeman, and F. A. Hegmann, *Nat. Phys.* **13**(6), 591 (2017).
12. C. Vicario, M. Jazbinsek, A. V. Ovchinnikov, O. V. Chefonov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, and C. P. Hauri, *Opt. Express* **23**(4), 4573 (2015).

13. M. Clerici, M. Peccianti, B.E. Schmidt, L. Caspani, M. Shalaby, M. Giguere, A. Lotti, A. Couairon, F. Légaré, T. Ozaki, D. Faccio, and R. Morandotti, *Phys. Rev. Lett.* **110**(25), 253901 (2013).
14. V.Y. Fedorov and S. Tzortzakis, *Phys. Rev. A* **97**(6), 063842 (2018).
15. K. Shibuya, K. Nawata, Y. Nakajima, Y. Fu, E.J. Takahashi, K. Midorikawa, T. Yasui, and H. Minamide, *Appl. Phys. Express* **14**(9), 092004 (2021).
16. C. Gollner, M. Shalaby, C. Brodeur, I. Astrauskas, R. Jutas, E. Constable, L. Bergen, A. Baltuška, and A. Pugžlys, *APL Photonics* **6**(4), 046105 (2021).
17. J. Li, R. Rana, L. Zhu, C. Liu, H. Schneider, and A. Pashkin, *Opt. Express* **29**(14), 22494 (2021).
18. T. Hattori and K. Takeuchi, *Opt. Express* **15**(13), 8076 (2007).
19. K. Ravi, W.R. Huang, S. Carbajo, X. Wu, and F. Kärtner, *Opt. Express* **22**(17), 20239 (2014).
20. A. Schneider, M. Neis, M. Stillhart, B. Ruiz, R.U.A. Khan, and P. Günter, *JOSA B* **23**(9), 1822 (2006).
21. Ch. Bosshard, R. Spreiter, L. Degiorgi, and P. Günter, *Phys. Rev. B* **66**(20), 205107 (2002).
22. P.D. Cunningham and L.M. Hayden, *Opt. Express* **18**(23), 23620 (2010).
23. M. Stillhart, A. Schneider, and P. Günter, *JOSA B* **25**(11), 1914 (2008).
24. E.A. Migal, D.Z. Suleimanova, and F.V. Potemkin, *Quantum Electron.* **51**(7), 601 (2021).
25. H. Zhao, Y. Tan, T. Wu, G. Steinfeld, Y. Zhang, C. Zhang, L. Zhang, and M. Shalaby, *Appl. Phys. Lett.* **114**(24), 241101 (2019).
26. J.M. Khosrofian and B.A. Garetz, *Appl. Opt.* **22**(21), 3406 (1983).
27. E.A. Migal, F.V. Potemkin, and V.M. Gordienko, *Laser Phys. Lett.* **16**(4), 045401 (2019).
28. E.A. Migal, S.Yu. Stremoukhov, and F.V. Potemkin, *Phys. Rev. A* **101**(2), 021401 (2020).
29. E. Migal, A. Pushkin, N. Minaev, B. Bravy, and F. Potemkin, *Opt. Lett.* **47**(4), 985 (2022).
30. B.V. Rumiantsev, K.E. Mikheev, A.V. Pushkin, E.A. Migal, S.Yu. Stremoukhov, and F.V. Potemkin, *JETP Lett.* **115**(7), 390 (2022).
31. B.V. Rumiantsev, A.V. Pushkin, K.E. Mikheev, and F.V. Potemkin, *JETP Lett.* **116**(10), 683 (2022).

Излучение уединенного импульса поляризации, движущегося со скоростью света

Р. М. Архипов^{+*1)}, М. В. Архипов⁺¹⁾, А. В. Пахомов⁺¹⁾, О. О. Дьячкова⁺¹⁾, Н. Н. Розанов^{+*1)}

⁺ Санкт-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия

^{*} Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 10 февраля 2023 г.

После переработки 15 марта 2023 г.

Принята к публикации 16 марта 2023 г.

Фотоны обладают нулевой массой покоя и всегда движутся со скоростью света в вакууме, но не имеют дипольного момента. Атомы и молекулы, которые могут иметь постоянный или переменный дипольный момент, обладают массой и потому не могут двигаться со скоростью, равной скорости света или превосходящей ее. Поэтому вопрос об излучении подобных систем при их движении со скоростью света не ставился. Однако можно создать множество искусственных объектов (световых зайчиков, эффективных зарядов, импульсов тока и т.п.), которые могут двигаться со скоростью света и даже превышать ее. В таком случае они становятся источником электромагнитного излучения. В данной работе будет рассмотрено излучение уединенного импульса поляризации, который движется со скоростью света и значение амплитуды которого может оставаться постоянным или изменяться. Показано, что если амплитуда импульса поляризации не меняется, то такой объект не излучает вовне, т.е. излучаемое им поле остается полностью локализованным внутри движущегося уединенного импульса поляризации. Если же амплитуда такого объекта меняется со временем, то он начинает излучать назад. В этой ситуации могут быть получены униполярные импульсы необычной формы, например, прямоугольной.

DOI: 10.31857/S1234567823080037, EDN: vrjsgv

Введение. Материальные объекты (в частности, заряженные частицы, диполи – атомы, молекулы и т.п.) не могут двигаться со скоростью, равной или превышающей скорость света в вакууме c [1]. Однако в оптике уже давно известно множество различных объектов – световых зайчиков, эффективных зарядов, импульсов поляризации и тока и т.п., которые могут перемещаться с произвольной скоростью, даже большей скорости света [2–7]. К ним относятся, например, световое пятно от быстро вращающегося прожектора на удаленном экране [2]. Другим примером является световой зайчик, который является областью пересечения короткого светового импульса с плоским экраном [2–4]. Такие объекты могут являться источниками когерентного электромагнитного излучения, например, излучения Вавилова–Черенкова [2–7], а также ультракоротких электромагнитных импульсов [8, 9].

В последние годы был достигнут значительный прогресс в генерации предельно коротких импульсов электромагнитного излучения [10–15]. Пределом

сокращения длительности импульсов при фиксации спектрального диапазона (несущая частота колебаний поля не подвергается изменению) является получение полуцикловых импульсов, содержащих лишь одну полуволну электрического поля. Такие импульсы позволяют эффективно управлять параметрами вещества на сверхбыстрых временных масштабах, недоступных при использовании многоцикловых оптических импульсов [16].

За последнее время были предложены несколько различных методов, позволяющие получать полуцикловые импульсы как в терагерцовом (ТГц), так и в оптическом диапазоне. В частности, полуцикловые импульсы были получены в виде предвестников при многофотонной ионизации в электрооптических кристаллах [17–19], в результате каскадных процессов в плазме [20], при возбуждении металлической мишени мощными фемтосекундными импульсами [21–25] и при распространении ультракороткого импульса в неравновесной плазме [26–28]. Помимо этого, в ряде работ были теоретически найдены солитонные решения в виде полуцикловых униполярных импульсов в различных нелинейных резонансных средах [29–34].

В данной работе показано, как с помощью пары предельно коротких полуцикловых импульсов воз-

¹⁾e-mail: arkhypovroslav@gmail.com; m.arkhipov@spbu.ru; antpakhom@gmail.com; o.o.dyachkova@gmail.com; nnrosanov@mail.ru

можно создать в резонансной среде такой необычный объект, как уединенный импульс поляризации, который движется со скоростью света, а также рассмотрено излучение подобного объекта. Рассматриваются как случай импульса поляризации постоянной амплитуды, так и случай, когда амплитуда может изменяться.

Подобный объект, насколько нам известно, ранее не рассматривался, поскольку обладание дипольным моментом подразумевает наличие зарядов и связанных с ними масс, что не позволяет им двигаться со скоростью света. Однако объект, подобный указанному гипотетическому, можно создать в резонансной среде. Это так называемый импульс остановленной поляризации (ИОП) [35, 36] (см. также [37, 38]), который возникает при возбуждении резонансной среды парой коротких импульсов с длительностью короче периода резонансного перехода среды T_{12} . Если интервал между импульсами равен половине периода резонансного перехода среды $T_{12}/2$, то первый импульс вызывает резонансные колебания поляризации среды, а второй импульс останавливает их. В результате зависимость поляризации от времени имеет вид полуволны. Данный ИОП представляет собой по сути искусственный диполь конечных размеров. Отметим также, что движение подобного диполя не сопровождается перемещением масс в направлении его распространения.

Мы аналитически и численно исследуем необычные свойства излучения, которое создает такой локализованный уединенный импульс поляризации с постоянной или меняющейся амплитудой. Численное решение проведено для случая, когда уединенный импульс остановленной поляризации наводится парой полуволновых импульсов в слое двухуровневой или многоуровневой резонансной среды. Показано, что такой ИОП в случае пространственно-неоднородного слоя среды может излучать пару униполярных импульсов прямоугольной формы.

Пример аналитического решения одномерного волнового уравнения для уединенного импульса поляризации. Эволюция электрического поля описывается волновым уравнением, содержащим в правой части поляризацию среды. В одномерном случае оно имеет вид:

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

где P – поляризация среды, E – напряженность электрического поля, c – скорость света в вакууме.

Предположим, что имеется заданный импульс поляризации, который локализован в некоторой обла-

сти, равен нулю вне этой области и напряженность поля которого P обладает гладкой первой производной при переходе из области, где поляризация равна нулю, в область, где она отлична от нуля. Пусть импульс поляризации распространяется с постоянной произвольной скоростью V и его форма, удовлетворяющая указанным условиям, имеет вид:

$$P(z, t) = \Pi_0 \left(1 - \cos \omega_0 \left(t - \frac{z}{V} \right) \right), \\ \frac{z}{V} \leq t \leq \frac{z}{V} + T_0, \quad T_0 = \frac{2\pi}{\omega_0}. \quad (2)$$

В таком случае нам необходимо найти решение волнового уравнения (1), где в правой части стоит выражение (2). Соответствующее решение нетрудно найти в виде:

$$E(z, t) = E_0 \cos \omega_0 \left(t - \frac{z}{V} \right), \quad \frac{z}{V} \leq t \leq \frac{z}{V} + T_0, \quad (3)$$

где для амплитуды получается следующее выражение:

$$E_0 = \Pi_0 \frac{4\pi V^2}{V^2 - c^2}. \quad (4)$$

С учетом решения однородного волнового уравнения (1) без правой части, общее решение неоднородного уравнения при наличии импульса поляризации (2) с учетом решения (3)–(4) может быть представлено в виде:

$$E(z, t) = \Pi_0 \frac{4\pi V^2}{V^2 - c^2} \times \\ \times \left[\cos \omega_0 \left(t - \frac{z}{V} \right) - \cos \omega_0 \left(t - \frac{z}{c} \right) \right] + f_1 \left(t - \frac{z}{c} \right) + \\ + f_2 \left(t + \frac{z}{c} \right), \quad \frac{z}{V} \leq t \leq \frac{z}{V} + T_0, \quad (5)$$

с произвольными функциями f_1 и f_2 . Рассмотрим теперь случай, когда уединенный импульс поляризации распространяется со скоростью света, т.е. $V = c$. В таком случае первый член в выражении (5) содержит неопределенность, так что (5) сводится к виду:

$$E(z, t) = \frac{2\pi}{c} \Pi_0 \omega_0 z \cdot \sin \omega_0 \left(t - \frac{z}{c} \right), \quad \frac{z}{c} \leq t \leq \frac{z}{c} + T_0. \quad (6)$$

Уравнение (6) описывает линейное нарастание электрического поля внутри уединенного импульса поляризации по мере его распространения в слое среды. При этом вне области существования поляризации электрическое поле отсутствует.

Отметим, что в приведенном аналитическом описании поляризация считается заданной. При этом мы пренебрегаем самовоздействием данного импульса поляризации. Это значит, что генерируемое этой поляризацией поле считается слабым и неспособным вызвать значительные изменения породившей

его поляризации. В последующем разделе в численном расчете данные эффекты будут учтены.

Пример практической реализации уединенного импульса поляризации и особенности его излучения в однородной и неоднородной резонансной среде. Схематически ситуация, в которой можно практически реализовать импульс уединенной поляризации с постоянной или нарастающей амплитудой и показать особенности его излучения в однородной и неоднородной среде, представлена на рис. 1.

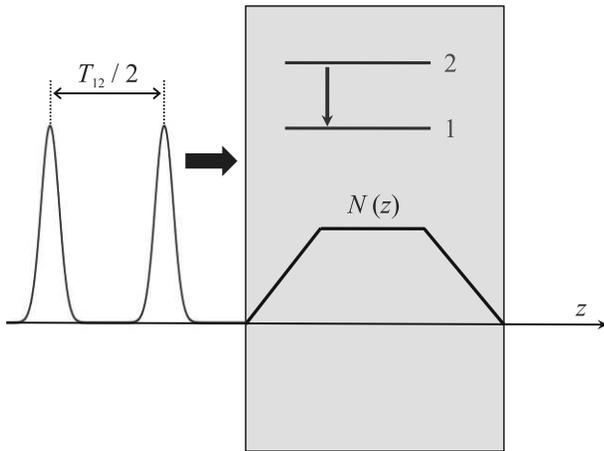


Рис. 1. (Цветной онлайн) Два возбуждающих униполярных импульса, следующих с временной задержкой $T_{12}/2$ между ними, равной половине периода резонансного перехода среды, падают нормально на протяженный слой двухуровневой среды (цветной прямоугольник). Распределение концентрации частиц внутри слоя $N(z)$ имеет прямоугольную или трапециевидальную форму, последняя схематически показана на рисунке

На протяженную двухуровневую среду из вакуума (слева направо на рис. 1) движется нормально пара полуволновых униполярных импульсов, распространяющихся вдоль оси z . Объемная концентрация частиц в среде $N(z)$ изменяется вдоль слоя и имеет прямоугольный или трапециевидный профиль (последний схематически показан на рис. 1). Временная задержка между возбуждающими импульсами равна половине периода резонансного перехода среды $T_{12}/2 = \pi/\omega_{12}$, где ω_{12} – частота перехода среды. Для электрического поля падающих импульсов возьмем следующее выражение:

$$E(t) = E_0 e^{-(t-z/c)^2/\tau_p^2} + E_0 e^{-(t-z/c-T_{12}/2)^2/\tau_p^2} \quad (7)$$

с амплитудой импульсов E_0 и длительностью τ_p . Два возбуждающих униполярных импульса (7) будут создавать ИОП, который в случае достаточно малой

концентрации вещества движется вместе с ними в среде со скоростью, практически равной скорости света.

Уравнения модели. Для описания отклика двухуровневой среды на поле внешних импульсов использовались стандартные уравнения для матрицы плотности резонансной двухуровневой среды [39]:

$$\frac{\partial \rho_{12}(z, t)}{\partial t} = -\frac{\rho_{12}(z, t)}{T_2} + i\omega_{12}\rho_{12}(z, t) - \frac{i}{\hbar}d_{12}E(z, t)n(z, t), \quad (8)$$

$$\frac{\partial n(z, t)}{\partial t} = -\frac{n(z, t) - n_0(z)}{T_1} + \frac{4}{\hbar}d_{12}E(z, t)\text{Im} \rho_{12}(z, t), \quad (9)$$

$$P(z, t) = 2N_0 d_{12} \text{Re} \rho_{12}, \quad (10)$$

где ρ_{12} – недиагональный элемент матрицы плотности двухуровневой среды, $n = \rho_{11} - \rho_{22}$ – разность населенностей уровней (инверсия) двухуровневой среды, d_{12} – дипольный момент рабочего перехода в среде, n_0 – равновесная разность населенностей двух рабочих уровней в отсутствие электрического поля ($n_0 = 1$ для поглощающей среды), T_1 – время релаксации верхнего рабочего уровня среды, T_2 – время релаксации поляризации среды, \hbar – приведенная постоянная Планка.

Уравнения для отклика среды должны быть дополнены одномерным волновым уравнением для эволюции электрического поля (1). Было проведено совместное численное решение системы уравнений (1) и (8)–(10). Параметры даны в табл. 1 ниже и соответствуют переходу из основного в нижнее возбужденное состояние в атоме водорода [40]. Отметим, что рассмотренная одномерная модель может быть реализована в коаксиальных волноводах, в которых отсутствуют частоты отсечки и распространение униполярных импульсов возможно без потери униполярности [41].

Результат численного расчета поля ИОП для случая однородной среды ($N(z) = \text{const}$) представлен на рис. 2. Отметим, что при построении рис. 2 из общего электрического поля было вычтено поле возбуждающих импульсов (7), так что полученное поле соответствует лишь излучению слоя среды. Как видно из рис. 2, излучаемое средой поле остается локализованным внутри ИОП и линейно нарастает по мере распространения ИОП через слой среды.

В отличие от ситуации, рассмотренной аналитически, импульс поляризации имеет характерный вид полуволны, как показано на рис. 3. В аналитическом

Таблица 1. Параметры рассматриваемой резонансной двухуровневой среды и возбуждающих импульсов

Частота перехода 12 (длина волны перехода)	$\omega_{12} = 1.55 \cdot 10^{16}$ рад/с ($\lambda_{12} = 121.6$ нм)
Дипольный момент перехода 12	$d_{12} = 3.27$ Д
Время релаксации разности населенностей	$T_1 = 1$ нс
Время релаксации поляризации	$T_2 = 1$ нс
Максимальная концентрация двухуровневых атомов	$N_0 = 10^{19}$ см ⁻³
Амплитуда поля	$E_0 = 100000$ ед. СГСЭ
Длительность импульсов возбуждения	$\tau_p = 30$ ас
Длина среды	$L = 3$ мкм

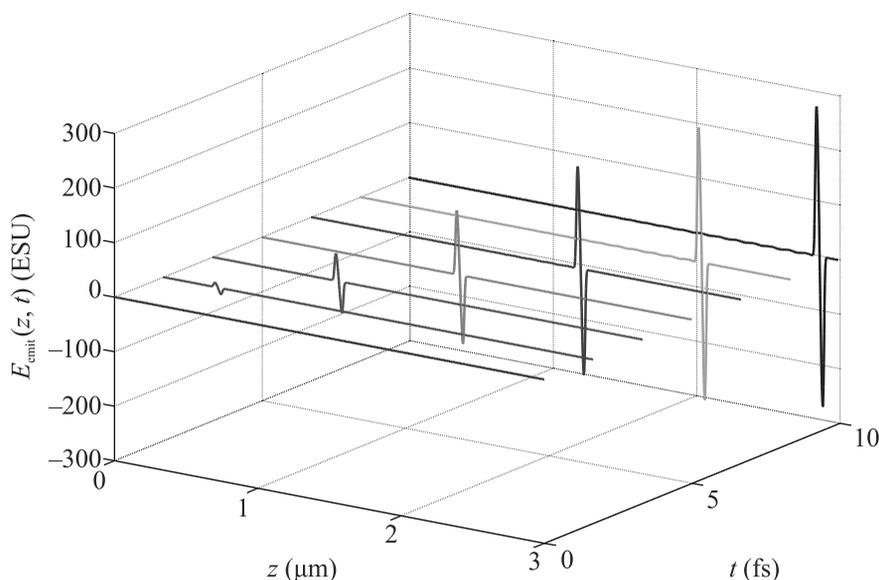


Рис. 2. (Цветной онлайн) Эволюция пространственного распределения излучаемого средой электрического поля с течением времени для случая однородного слоя среды; хорошо видно, что формируется одноцикловый импульс поля, локализованный внутри ИОП, амплитуда которого линейно нарастает по мере распространения в среде

примере длительность импульса поляризации имела произвольную величину. Если для сравнения результатов считать, что частота в выражении (2) соответствует частоте перехода среды, то длительность ИОП в два раза меньше, чем в аналитической задаче.

Как и в аналитическом расчете, возникает импульс излучения, который движется вместе с ИОП. Здесь источником излучения является искусственный диполь – импульс остановленной поляризации, который движется в среде со скоростью света и расположен между возбуждающими униполярными импульсами (7). Такой искусственный диполь, как следует из решения, излучает лишь в момент его образования и исчезновения, что происходит на границах среды [35]. Когда же он движется в среде, то не излучает вовне. Если бы он излучал, к примеру, вперед, то тогда скорость, с которой бы распространялось это излучение, была бы больше скорости света. Внутри ИОП, как только что отмечалось выше, есть

поле в виде одноциклового импульса, причем амплитуда этого одноциклового импульса растет по величине прямо пропорционально расстоянию, пройденному в среде. Отметим также, что подобный кратковременный импульс поляризации (тока), движущийся со световой скоростью, может быть создан при движении фемтосекундного лазерного импульса по трубке с газом, помещенной в постоянное внешнее электрическое поле [42]. В этом случае его излучение представляет собой короткий субцикловый импульс ТГц излучения.

Таким образом для однородной среды мы получили совпадение свойств излучения, создаваемого уединенными импульсами поляризации, вытекающих из аналитического и численного анализа. Сюда относятся локализация поля в пределах импульса поляризации, пропорциональность формы импульса производной по времени от формы поляризации и факт линейного нарастания излу-

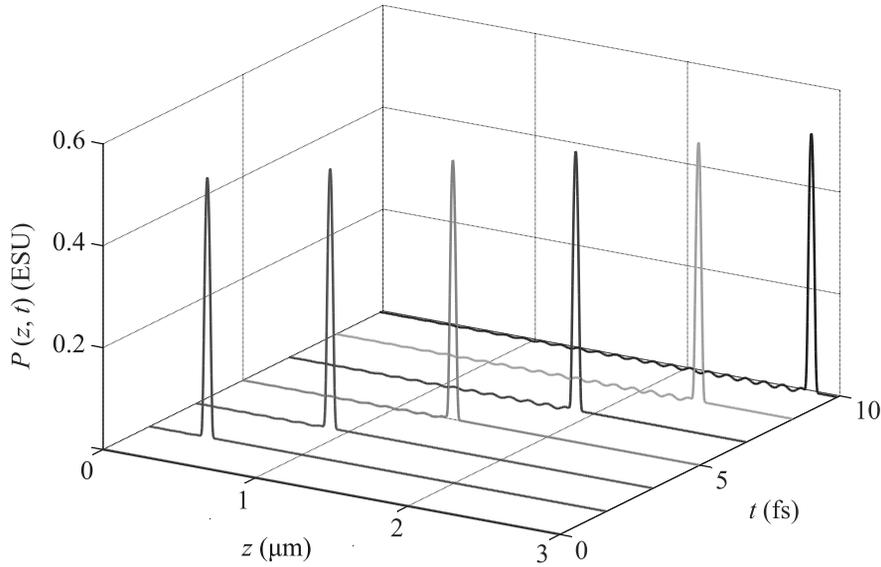


Рис. 3. (Цветной онлайн) Эволюция пространственного распределения поляризации среды с течением времени для случая однородного слоя среды; хорошо видно формирование полуволны ИОП с постоянной амплитудой

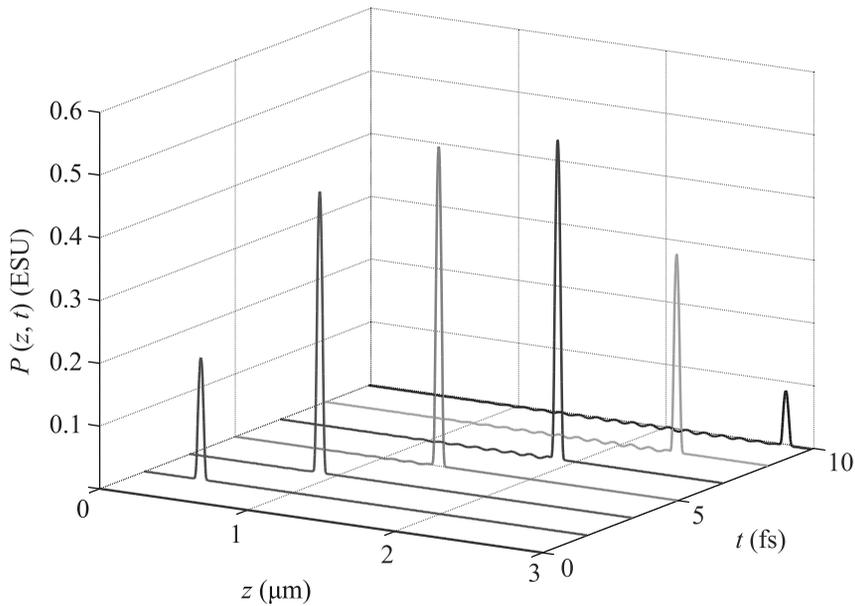


Рис. 4. (Цветной онлайн) Эволюция пространственного распределения поляризации среды с течением времени для случая неоднородного слоя среды с трапециевидным профилем; хорошо видно формирование полуволны ИОП с переменной амплитудой

чения при движении такого образования в пространстве.

Рассмотрим теперь образование уединенного импульса поляризации в пространственно-неоднородном слое резонансной среды (см. также [38]). Возьмем трапециевидную зависимость концентрации от координаты, как показано на рис. 1, а именно, в виде:

$$N(z) = N_0 \frac{3z}{L}, \quad 0 \leq z \leq 1 \text{ мкм},$$

$$N(z) = N_0, \quad 1 \leq z \leq 2 \text{ мкм},$$

$$N(z) = N_0 \frac{3(L-z)}{L}, \quad 2 \leq z \leq 3 \text{ мкм}.$$

Результаты численного моделирования ситуации, когда ИОП создается и движется в неоднородной сре-

де с такой трапециевидальной зависимостью концентрации от координаты, представлены на рис. 4. На этом рисунке хорошо видно образование ИОП в виде полуволны, амплитуда которой сначала линейно растет, затем остается постоянной и наконец линейно убывает до нуля, следуя профилю концентрации резонансных атомов, показанному на рис. 1.

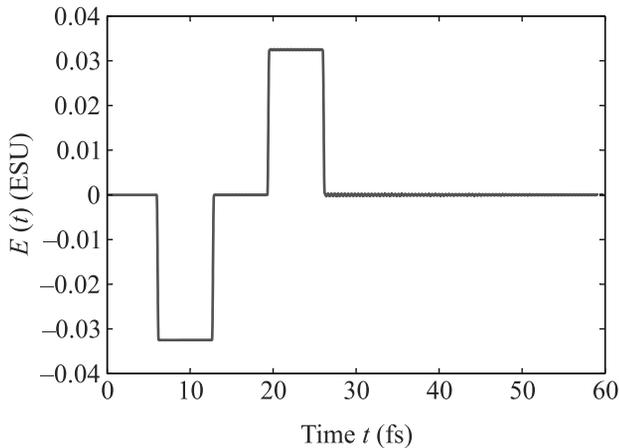


Рис. 5. (Цветной онлайн) Временная зависимость излучаемого поля от слоя двухуровневой среды в виде пары прямоугольных униполярных импульсов противоположной полярности

Результаты расчета временной зависимости напряженности излучаемого средой поля в направлении, обратном направлению распространения возбуждающих импульсов (7), показаны на рис. 5. Как видно, в данном случае в излучении назад ИОП создает пару прямоугольных униполярных импульсов противоположной полярности. Первый прямоугольный импульс имеет отрицательную полярность, тогда как второй – положительную. Расстояние между импульсами определяется протяженностью участка среды, где концентрация частиц постоянна. Длительность прямоугольных импульсов в свою очередь определяется длиной участков среды, где концентрация меняется по линейному закону.

Многоуровневая среда. Отклик слоя среды на рис. 5 получен в рамках приближения двухуровневой среды. Однако в силу субцикловой длительности возбуждающих импульсов вышележащие уровни энергии могут существенно влиять на взаимодействие таких предельно коротких импульсов с резонансной средой, таким образом делая двухуровневое приближение неприменимым. Чтобы прояснить роль других энергетических уровней, рассмотрим возбуждение импульсами (7) слоя многоуровневой среды вместо двухуровневой. В частности, мы возьмем 5

нижних уровней атома водорода, соответствующих значению главного квантового числа от 1 до 5. Взаимодействие пятиуровневой среды с полем возбуждающих импульсов описывается с помощью уравнений для амплитуд связанных состояний, которые имеют вид [39]:

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{r}, t) &= \sum_{n=1}^5 a_n(t) \psi_n(\mathbf{r}) e^{-\frac{iE_n t}{\hbar}}, \\ \dot{a}_n(t) &= \frac{i}{\hbar} \sum_{m=1}^5 d_{nm} a_m(t) E(t) e^{i\omega_{nm} t}, \\ \omega_{nl} &= \frac{E_n - E_l}{\hbar}, \end{aligned} \quad (11)$$

где $a_n(t)$ – амплитуды разложения волновой функции атома по собственным волновым функциям $\psi_n(\mathbf{r})$, ω_{nm} – частоты переходов между уровнями n и m соответственно, а d_{nm} – соответствующие им дипольные моменты. Поляризация среды определяется с использованием решения уравнений (11) следующим выражением:

$$P(z, t) = N_0 \sum_{n=1}^5 d_{nm} a_n(t) a_m^*(t) e^{i\omega_{nm} t} + \text{с.с.}, \quad (12)$$

где N_0 – объемная концентрация атомов. Параметры многоуровневой резонансной среды, использовавшиеся в расчетах, приведены в табл. 2. Параметры возбуждающих импульсов, а также толщина слоя среды и объемная концентрация атомов были теми же, что и в табл. 1.

Эволюция ИОП в слое многоуровневой среды с трапециевидальной зависимостью концентрации от координаты показана на рис. 6. Как видно, динамика пространственного распределения поляризации среды в целом идентична случаю двухуровневой среды на рис. 4, но из-за вклада вышележащих уровней энергии возникают более интенсивные остаточные осцилляции поляризации среды вслед за ИОП.

На рисунке 7 представлены результаты расчета временной зависимости напряженности электрического поля, излученного слоем рассматриваемой многоуровневой среды. Вновь, как и на рис. 5, мы получаем пару прямоугольных униполярных импульсов разной полярности. Из сравнения рис. 5 и 7 видно, что форма и длительность получаемых импульсов практически не претерпевают изменений при учете большего числа энергетических уровней в резонансной среде. Основные отличия сводятся к появлению дополнительных осцилляций из-за вклада вышележащих уровней в поляризацию среды (12),

Таблица 1. Параметры многоуровневой резонансной среды

Частота перехода 12 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{12} = 1.55 \cdot 10^{16}$ рад/с ($\lambda_{12} = 121.6$ нм)
Дипольный момент перехода 12	$d_{12} = 3.27$ Д
Частота перехода 13 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{13} = 1.84 \cdot 10^{16}$ рад/с ($\lambda_{13} = 102.6$ нм)
Дипольный момент перехода 13	$d_{13} = 1.31$ Д
Частота перехода 14 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{14} = 1.94 \cdot 10^{16}$ рад/с ($\lambda_{14} = 97.3$ нм)
Дипольный момент перехода 14	$d_{14} = 0.77$ Д
Частота перехода 15 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{15} = 1.98 \cdot 10^{16}$ рад/с ($\lambda_{15} = 95.0$ нм)
Дипольный момент перехода 15	$d_{15} = 0.53$ Д
Частота перехода 23 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{23} = 2.87 \cdot 10^{15}$ рад/с ($\lambda_{23} = 656.6$ нм)
Дипольный момент перехода 23	$d_{23} = 12.63$ Д
Частота перехода 24 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{24} = 3.88 \cdot 10^{15}$ рад/с ($\lambda_{24} = 486.1$ нм)
Дипольный момент перехода 24	$d_{24} = 4.85$ Д
Частота перехода 25 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{25} = 4.34 \cdot 10^{15}$ рад/с ($\lambda_{25} = 434.1$ нм)
Дипольный момент перехода 25	$d_{25} = 2.83$ Д
Частота перехода 34 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{34} = 1.01 \cdot 10^{15}$ рад/с ($\lambda_{34} = 1875.1$ нм)
Дипольный момент перехода 34	$d_{34} = 29.33$ Д
Частота перехода 35 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{35} = 1.47 \cdot 10^{15}$ рад/с ($\lambda_{35} = 1281.8$ нм)
Дипольный момент перехода 35	$d_{35} = 10.76$ Д
Частота перехода 45 в атоме водорода (длина волны перехода)	$\omega_{45} = 4.63 \cdot 10^{14}$ рад/с ($\lambda_{45} = 4067.2$ нм)
Дипольный момент перехода 45	$d_{45} = 29.93$ Д

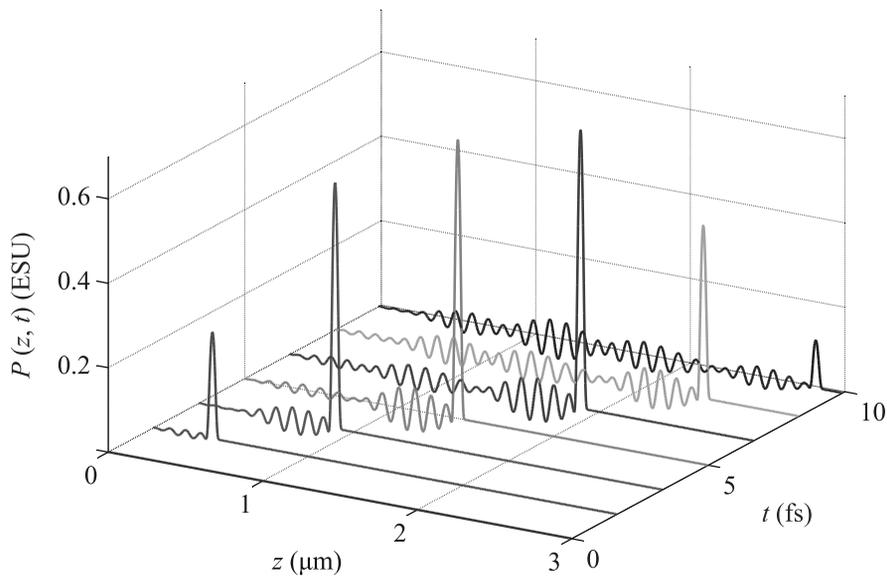


Рис. 6. (Цветной онлайн) Эволюция пространственного распределения поляризации среды с течением времени для случая неоднородного слоя многоуровневой среды с трапецевидным профилем концентрации резонансных атомов

которые искажают форму генерируемых импульсов (см. также [38]).

Аналитическое описание излучения ИОП в неоднородной среде. Рассмотренная выше ситуация может быть описана аналитически для случая уединенного импульса поляризации, нарастающего по мере продвижения в пространстве. Известно аналитическое решение одномерного волнового уравнения (1), которое имеет вид [43]:

$$E_{\text{rad}}(z, t) = -\frac{2\pi}{c} \int_{z_1}^{z_2} \frac{\partial P}{\partial t} \left(z', t - \frac{|z - z'|}{c} \right) dz', \quad (13)$$

где пространственное интегрирование осуществляется по всей толщине слоя. Согласно этому выражению поле, излучаемое частицами среды в рассматриваемой одномерной геометрии, пропорционально первой производной по времени от поляризации среды. Производная же от полуволны поляризации может

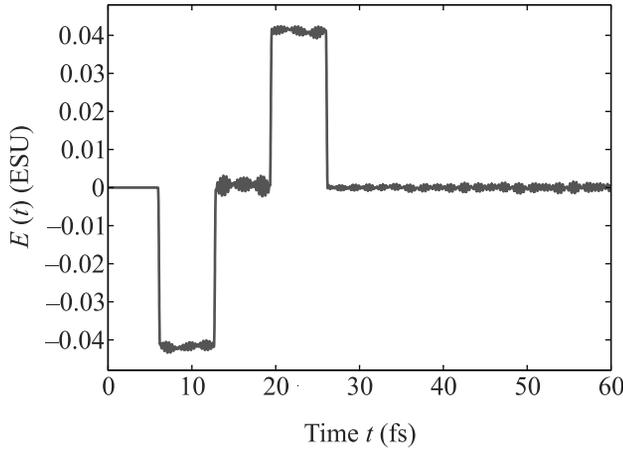


Рис. 7. (Цветной онлайн) Временная зависимость поля, излучаемого слоем 5-уровневой среды, в виде пары прямоугольных униполярных импульсов противоположной поляризации

быть достаточно точно описана как один период гармонической функции. Таким образом, мы будем для простоты полагать, что каждый бесконечно тонкий слой атомов толщины δz внутри протяженного слоя на рис. 1 излучает одноцикловый гармонический импульс вида:

$$e(z, t) = A_0 \sin \omega_{12} \left(t - \frac{z}{c} \right) \delta z, \quad \frac{z}{c} \leq t \leq \frac{z}{c} + T_{12},$$

где коэффициент A_0 мы будем считать постоянным для всего слоя, что допустимо при достаточно малой концентрации резонансных центров. Если излучение (13) регистрируется детектором или наблюдателем, расположенным слева от слоя (т.е. поле фиксируется в отражении) на удалении от левой границы слоя, равном D , то в точке наблюдения излучение имеет вид:

$$\begin{aligned} \tilde{e}(z, z' = -D, t) &= A_0 \sin \omega_{12} \left(t - \frac{z + |z - z'|}{c} \right) dz = \\ &= A_0 \sin \omega_{12} \left(t - \frac{2z + D}{c} \right) dz, \\ \frac{2z + D}{c} &\leq t \leq \frac{2z + D}{c} + T_{12}. \end{aligned}$$

Излучение от всего слоя с пространственным профилем концентрации частиц $N(z)$ дается следующим выражением:

$$E(z' = -D, t) = \int_0^L N(z) \tilde{e}(z, z' = -D, t). \quad (14)$$

Рассмотрим случай, когда концентрация частиц линейно растет, т.е. $N(z) = \kappa z$, что соответствует профилю на рис. 1. Тогда интеграл (14) принимает вид:

$$E(z' = -D, t) = \int_0^L \kappa z \tilde{e}(z, z' = -D, t). \quad (15)$$

В интервале времени

$$T_{12} + \frac{D}{c} \leq t \leq \frac{2L + D}{c},$$

т.е. когда оба возбуждающих импульса находятся внутри слоя среды, интеграл (15) приводится к виду:

$$\begin{aligned} E(z' = -D, t) &= \\ &= \int_{(ct - cT_{12} - D)/2}^{(ct - D)/2} A_0 \kappa z \sin \omega_{12} \left(t - \frac{2z + D}{c} \right) dz = \\ &= \frac{\pi A_0 \kappa c^2}{2\omega_{12}^2}, \end{aligned} \quad (16)$$

т.е. электрическое поле не зависит от времени, что соответствует прямоугольному униполярному импульсу, аналогично показанному на рис. 5. В случае трапецидального профиля концентрации, помимо участка с линейным нарастанием концентрации в левой части слоя, имеется аналогичный участок в правой части слоя с линейным убыванием концентрации. В этом случае интеграл (14) принимает вид, полностью аналогичный интегралу (16), с отличием лишь в знаке получаемого поля. На участке, где концентрация не меняется, излучения, идущего назад, нет. Таким образом, при возбуждении слоя среды с трапецидальным профилем концентрации резонансных атомов аналитически показано, что излучаемое поле представляет собой пару униполярных прямоугольных импульсов равной амплитуды, но противоположной поляризации, следующих с временной задержкой между ними, прямо пропорциональной толщине центральной части слоя с постоянной концентрацией, что соответствует результатам численного моделирования для ИОП.

Заключение. В работе аналитически и численно исследовано излучение гипотетического объекта – уединенного импульса поляризации, перемещающегося в пространстве со скоростью света, а также получение подобного объекта в виде импульса остановленной поляризации в двухуровневой и многоуровневой резонансной среде.

Показано, что в таких ситуациях создаваемое импульсом поляризации излучение накапливается в

пределах его локализации. Если амплитуда импульса поляризации меняется в процессе движения, то в направлении назад возникает излучение. При линейном нарастании (уменьшении) амплитуды импульса поляризации напряженность поля в излучении назад имеет вид прямоугольного униполярного импульса, длительность которого равна времени, в течение которого происходит нарастание (уменьшение) амплитуды импульса поляризации. Стоит отметить, что полученные нами импульсы соответствуют оптическому диапазону, тогда как ранее униполярные импульсы прямоугольной формы были получены лишь в радио- и терагерцовом частотных диапазонах.

Отметим, что рассмотрение таких объектов, как уединенный импульс поляризации, стало актуальным в связи с прогрессом фотоники сверхкоротких и униполярных импульсов [10–16], которая, в принципе, позволяет создавать подобные объекты. Ранее подобные возможности сверхбыстрого управления поляризацией и дипольными моментами в квантовых системах казались практически не доступными и, насколько нам известно, другими авторами не рассматривались.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда в рамках научного проекта 21-72-10028.

1. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Том 1. Механика*, Наука, М. (1988) [L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Mechanics. Vol. 1*, 3rd ed., Butterworth-Heinemann, Oxford (1976)].
2. Б. М. Болотовский, В. Л. Гинзбург, УФН **106**, 577 (1972) [B. M. Bolotovskii and V. L. Ginzburg, *Sov. Phys.-Uspekhi* **15**, 184 (1972)].
3. Г. А. Аскар'ян, ЖЭТФ **42**, 1360 (1962) [G. A. Askar'yan, *Sov. Phys. JETP* **15**, 943 (1962)].
4. В. Л. Гинзбург, *Теоретическая физика и астрофизика. Дополнительные главы*, 3-е изд., Наука, М. (1987) [V. L. Ginzburg, *Theoretical physics and astrophysics*, Pergamon Press Ltd (1979), ch. VIII, p. 171].
5. Б. М. Болотовский, В. П. Быков, УФН **160**, 141 (1990) [B. M. Bolotovskii and V. P. Bykov, *Sov. Phys.-Uspekhi* **33**, 477 (1990)].
6. М. И. Бакун, А. В. Маслов, и С. В. Бодров, *Phys. Rev. B* **72**, 195336 (2005).
7. Б. М. Болотовский, А. В. Серов, УФН **175**, 943 (2005) [B. M. Bolotovskii and A. V. Serov, *Phys.-Uspekhi* **48**, 903 (2005)].
8. R. M. Arkhipov, A. V. Pakhomov, I. V. Babushkin, M. V. Arkhipov, Yu. A. Tolmachev, and N. N. Rosanov, *J. Opt. Soc. Am. B* **33**, 2518 (2016).
9. A. V. Pakhomov, R. M. Arkhipov, I. V. Babushkin, M. V. Arkhipov, Yu. A. Tolmachev, and N. N. Rosanov, *Phys. Rev. A* **95**, 013804 (2017).
10. F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).
11. G. Mourou, *Rev. Mod. Phys.* **91**, 030501 (2019).
12. K. Midorikawa, *Nat. Photonics* **16**, 267 (2022).
13. M. T. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, O. Raskazovskaya, P. Zhokhov, M. Garg, N. Karpowicz, A. M. Zheltikov, V. Pervak, F. Krausz, and E. Goulielmakis, *Nature* **530**, 66 (2016).
14. J. Biegert, F. Calegari, N. Dudovich, F. Quere, and M. Vrakking, *J. Phys. B* **54**, 070201 (2021).
15. B. Xue, K. Midorikawa, and E. J. Takahashi, *Optica* **9**, 360 (2022).
16. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, П. А. Образцов, Н. Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 10 (2023) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, A. V. Pakhomov, P. A. Obraztsov, and N. N. Rosanov, *JETP Lett.* **117**, 8 (2023)].
17. E. S. Efimenko, S. A. Sychugin, M. V. Tsarev, and M. I. Bakunov, *Phys. Rev. A* **98**, 013842 (2018).
18. M. V. Tsarev and M. I. Bakunov, *Opt. Express* **27**, 5154 (2019).
19. I. E. Пыakov, B. V. Shishkin, E. S. Efimenko, S. B. Bodrov, and M. I. Bakunov, *Opt. Express* **30**, 14978 (2022).
20. Y. Shou, R. Hu, Z. Gong, J. Yu, J.-e. Chen, G. Mourou, X. Yan, and W. Ma, *New J. Phys.* **23**, 053003 (2021).
21. H.-C. Wu and J. Meyer-ter Vehn, *Nature Photon.* **6**, 304 (2012).
22. J. Xu, B. Shen, X. Zhang, Y. Shi, L. Ji, L. Zhang, T. Xu, W. Wang, X. Zhao, and Z. Xu, *Sci. Rep.* **8**, 2669 (2018).
23. R. Pang, Y. Wang, X. Yan, and B. Eliasson, *Phys. Rev. Appl.* **18**, 024024 (2022).
24. S. Wei, Y. Wang, X. Yan, and B. Eliasson, *Phys. Rev. E* **106**, 025203 (2022).
25. Q. Xin, Y. Wang, X. Yan, and B. Eliasson, *Phys. Rev. E* **107**, 035201 (2023).
26. A. Bogatskaya, E. Volkova, and A. Popov, *Plasma Sources Sci. Technol.* **30**, 085001 (2021).
27. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, *Phys. Rev. E* **104**, 025202 (2021).
28. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, *Phys. Rev. E* **105**, 055203 (2022).
29. V. P. Kalosha and J. Herrmann, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 544 (1999).
30. А. Ю. Пархоменко, С. В. Сазонов, ЖЭТФ **114**, 1595 (1998) [A. Parkhomenko and S. Sazonov, *JETP* **87**, 864 (1998)].
31. X. Song, W. Yang, Z. Zeng, R. Li, and Z. Xu, *Phys. Rev. A* **82**, 053821 (2010).
32. V. V. Kozlov, N. N. Rosanov, C. De Angelis, and S. Wabnitz, *Phys. Rev. A* **84**, 023818 (2011).

33. С. В. Сазонов, Письма в ЖЭТФ **114**, 160 (2021) [S. Sazonov, JETP Lett. **114**, 132 (2021)].
34. S. Sazonov, Laser Phys. Lett. **18**, 105401 (2021).
35. А. В. Пахомов, М. В. Архипов, Н. Н. Розанов, Р. М. Архипов, Письма в ЖЭТФ **116**, 151 (2022) [A. V. Pakhomov, M. V. Arkhipov, N. N. Rosanov, and R. M. Arkhipov, JETP Lett. **116**, 149 (2022)].
36. A. Pakhomov, M. Arkhipov, N. Rosanov, and R. Arkhipov, Phys. Rev. A **106**, 053506 (2022).
37. Р. М. Архипов, А. В. Пахомов, М. В. Архипов, Н. Н. Розанов, Оптика и спектроскопия **131**(1), 77 (2023).
38. A. Pakhomov, N. Rosanov, M. Arkhipov, and R. Arkhipov, submitted. arXiv preprint arXiv:2303.11116.
39. А. Ярив, *Квантовая электроника*, Советское радио, М. (1980) [A. Yariv, *Quantum Electronics*, Wiley, N.Y. (1975)].
40. С. Э. Фриш, *Оптические спектры атомов*, Гос. издат. физ.-мат. лит., М.-Л. (1963).
41. Н. Н. Розанов, Оптика и спектроскопия **127**, 960 (2019) [N. N. Rosanov, Optics and Spectroscopy **127**, 1050 (2019)].
42. М. В. Архипов, Р. М. Архипов, Н. Н. Розанов, Оптика и спектроскопия **130**, 1216 (2022) [M. V. Arkhipov, R. M. Arkhipov, and N. N. Rosanov, Optics and Spectroscopy **130**, 980 (2022)].
43. M. V. Arkhipov, R. M. Arkhipov, A. V. Pakhomov, I. V. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N. N. Rosanov, Opt. Lett. **42**, 2189 (2017).

Неоднородно заполненные вихревые кольца в нелинейной оптике

В. П. Рубан¹⁾

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

Поступила в редакцию 20 марта 2023 г.

После переработки 21 марта 2023 г.

Принята к публикации 21 марта 2023 г.

В рамках модели связанных нелинейных уравнений Шредингера численно выявлен новый тип долгоживущих уединенных структур для парааксиальной оптики с двумя круговыми поляризациями света в однородной дефокусирующей Керровской среде с аномальной дисперсией групповой скорости. Найденный гибридный трехмерный солитон представляет собой вихревое кольцо на фоне плоской волны в одной из компонент, причем сердцевина вихря неоднородно по азимутальному углу заполнена другой компонентой. Существование в определенной параметрической области таких квазистационарных структур с пониженной симметрией связано с насыщением так называемой сосисочной неустойчивости, обусловленной эффективным поверхностным натяжением доменной стенки между двумя поляризациями.

DOI: 10.31857/S1234567823080049, EDN: wbpsqb

Введение. Как известно, характер распространения слабонелинейной квазимонохроматической световой волны в трехмерной оптической среде с Керровской нелинейностью определяется типом дисперсии групповой скорости (нормальная либо аномальная) и типом нелинейности (фокусирующая либо дефокусирующая). Для каждой из четырех возможных комбинаций характерны свои когерентные структуры и свои динамические режимы, приближенно описываемые нелинейным уравнением Шредингера (НУШ) с соответствующими коэффициентами (см., например, [1–4] и ссылки там). В частности, волна в дефокусирующей среде с аномальной дисперсией подобна устойчивой квантовой жидкости (разреженному бозе-конденсату холодных атомов при их взаимном отталкивании; НУШ при этом обычно называют уравнением Гросса–Питаевского). В такой системе, помимо темных солитонов, возможны топологические возбуждения в виде квантованных вихрей [5]. Аналогия идет еще дальше, если оптическая волна несет в себе две круговые поляризации, поскольку в этом случае свет описывается двумя связанными НУШ [6], равно как и бинарный бозе-конденсат [7–13]. Однако некоторая разница в постановке задач все же имеется, так как реальные бозе-конденсаты ограничены в пространстве удерживающим потенциалом ловушки, тогда как для света в однородной среде более реалистичной оказывается модель без внешнего потенциала.

Интересно отметить, что наличие второй компоненты позволяет существенно расширить набор доступных когерентных структур. Например, в типичном для нелинейной оптики режиме разделения фаз, помимо темных солитонов и квантованных вихрей в каждой из двух компонент, возможны еще доменные стенки, разделяющие области с правой и левой круговыми поляризациями [14–21]. Доменная стенка характеризуется эффективным поверхностным натяжением [10, 22], которое влияет на равновесную форму и динамику областей. Для бозе-конденсатов различные аспекты разделения фаз рассматривались в работах [23–41]. Важно, что существуют комбинированные вихрь-солитонные комплексы [9, 19–21, 42–48]. Например, это может быть вихревое кольцо в одной из компонент, сердцевина которого образует потенциальную яму для другой компоненты и заполнена ею [49]. В данной работе получены новые результаты именно для таких структур применительно к нелинейной оптике.

Предварительные замечания. Для захваченных бинарных бозе-конденсатов недавно было теоретически найдено [49], что во внешнем квадратичном осесимметричном потенциале ловушки заполненное кольцо может быть как линейно устойчиво относительно азимутальных возмущений, так и неустойчиво, в зависимости от параметров. Неустойчивость, возникающая при увеличении количества захваченной второй компоненты, подобна так называемой сосисочной неустойчивости полого вихря в классической гидродинамике. Ее природу легко понять на примере прямого вихря с осесимметричными воз-

¹⁾e-mail: ruban@itp.ac.ru

мушениями. В том случае, когда ширина доменной стенки мала по сравнению с локальным радиусом сердцевины заполненного квантового вихря, классическая двухжидкостная модель позволяет записать функционал эффективной потенциальной энергии, минимум которого определяет устойчивое распределение второй компоненты вдоль оси вихря (см. [47] и ссылки там). Оказывается, что однородная конфигурация перестает быть устойчивой при превышении заполняющей компонентой некоторого критического количества на единицу длины. Минимум функционала в этом случае достигается на структурах типа сосисок (не вполне круглых пузырей). В случае заполненного кольца аккуратное аналитическое описание весьма затруднительно, но в качественном отношении неустойчивость аналогична. Спецификой системы в ловушке оказалась ненасыщаемость этой неустойчивости. В конечном итоге неустойчивое заполненное вихревое кольцо в конденсате разрушается после сложного взаимодействия (сопровождающегося перекачкой энергии) между неоднородными течениями второй компоненты вдоль сердцевинки и движениями самого кольца на неоднородном фоне плотности [49].

В данной работе будет показано, что в однородном пространстве дело обстоит иначе. Оказывается, что заполненное оптическое вихревое кольцо на фоне однородной волны сохраняет свою целостность и распространяется на большие расстояния даже и в тех случаях, когда оно подвержено сосисочной неустойчивости. Разница по сравнению с захваченным ловушкой бозе-конденсатом состоит в отсутствии заметного потока энергии от степеней свободы, определяющих положение кольца в пространстве, к степеням свободы, описывающим азимутальное распределение второй компоненты. В зависимости от интенсивности волны и количества второй компоненты поведение системы будет разным (для кольца с заданным радиусом). При малом количестве второй компоненты либо при относительно слабой мощности фоновой волны начальная азимутальная неоднородность заполнения приводит к последующим попеременным утолщениям кольца то с одной его стороны, то с противоположной. Такое поведение характерно для одномерного нелинейного осциллятора с одноямычным четным потенциалом (координатой этого осциллятора можно в грубом приближении считать амплитуду первой азимутальной гармоники распределения второй компоненты вдоль кольца). При большом заполнении либо при сильной нелинейности утолщение остается на месте и существенного перетекания второй компоненты вдоль кольца не происходит. Такая

конфигурация соответствует нарушению симметрии в системе с двукратным одномерным потенциалом и свидетельствует о насыщении сосисочной неустойчивости.

Стоит еще отметить, что в двумерном пространстве аналогом вихревого кольца является вихревая пара. Два вихря могут быть неодинаково заполнены второй компонентой (см. [43] и ссылки там), и тогда это отдаленно напоминает рассматриваемую здесь ситуацию. Еще более отдаленный аналог – несимметричная пара так называемых темно-светлых солитонов в одном измерении (см. [50] и ссылки там). Одно из главных отличий трехмерного кольца – возможность продольных течений вдоль вихря, тогда как в 1D и 2D случаях перетекание “светлой” компоненты из одной потенциальной ямы (создаваемой вихревой или “темной” компонентой) в другую возможно только за счет туннелирования.

Модель. Мы рассматриваем трехмерную, оптически прозрачную, однородную диэлектрическую среду с изотропным законом дисперсии линейных волн $k(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)}\omega/c$ и с дефокусирующей Керровской нелинейностью. Будем полагать дисперсию групповой скорости аномальной (т.е. $k''(\omega) < 0$ в некотором диапазоне). Как правило, область аномальной дисперсии находится вблизи низкочастотного края окна прозрачности (в реальных веществах это обычно инфракрасная область спектра; см., например, [51, 52]).

Нелинейная по электрическому полю часть индукции на частоте ω предполагается в виде

$$\mathbf{D}^{(3)} = \alpha(\omega)|\mathbf{E}|^2\mathbf{E} + \beta(\omega)(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E})\mathbf{E}^* \quad (1)$$

с отрицательными $\alpha(\omega)$ и $\beta(\omega)$. Определив амплитуды $A_{1,2}$ левой и правой круговых поляризаций с помощью формулы

$$\mathbf{E} = [(\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)A_1 + (\mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y)A_2]/\sqrt{2} \quad (2)$$

и подставив (1) в уравнения Максвелла, можно стандартным образом получить систему связанных НУШ для $A_{1,2}$ (см. [6, 14–21]).

Зафиксируем несущую частоту ω , соответствующее ей волновое число $k_0 = 2\pi/\lambda_0$, первую производную k'_0 и вторую производную k''_0 . Как принято в оптике, эволюционной переменной вместо времени t у нас служит дистанция ζ вдоль оси пучка, а роль третьей “пространственной” координаты играет “запаздывающее” время $\tau = t - \zeta/v_{gr}$, где $1/v_{gr} = k'_0$. Выберем в качестве масштаба для поперечных координат большой радиус вихревого кольца $R_0 \sim 10^2\lambda_0$. Продольную координату ζ будем измерять в единицах $k_0R_0^2 \sim 10^5\lambda_0$, переменную τ —

в единицах $R_0\sqrt{k_0|k_0''|}$, а электрическое поле — в единицах $\sqrt{2\epsilon/|\alpha|}/(k_0R_0)$. В обезразмеренных таким образом переменных мы имеем следующую систему связанных НУШ для медленных комплексных огибающих $A_{1,2}(x, y, \tau, \zeta)$:

$$i\frac{\partial A_{1,2}}{\partial \zeta} = \left[-\frac{1}{2}\Delta + |A_{1,2}|^2 + g_{12}|A_{2,1}|^2 \right] A_{1,2}, \quad (3)$$

где $\Delta = \partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_\tau^2$ — трехмерный оператор Лапласа в “координатном” пространстве (x, y, τ) . Параметр перекрестной фазовой модуляции $g_{12} = 1 + 2\beta/\alpha$ в типичном случае примерно равен 2. Условие $g_{12} > 1$ соответствует режиму разделения фаз.

Численный метод. Для численного моделирования использовался стандартный метод (Split-Step Fourier Method) второго порядка точности по эволюционной переменной ζ . Важное отличие от предыдущих работ [21, 40, 41] состоит в способе приготовления начального состояния. Поскольку идеальное вихревое кольцо — объект не статический [в пространстве (x, y, τ)], а стационарно движущийся с некоторой “скоростью” u (для определенности — вдоль оси τ), удобно сделать замену

$$A_1(x, y, \tau, \zeta) = \sqrt{I_0}A(x, y, \tau - u\zeta)e^{-iI_0\zeta}, \quad (4)$$

$$A_2(x, y, \tau, \zeta) = \sqrt{I_0}B(x, y, \tau - u\zeta)e^{(iu\tau - i\mu_2\zeta)}, \quad (5)$$

где I_0 — интенсивность невозмущенной плоской волны, μ_2 — “химический потенциал” второй компоненты. В строго стационарном случае новые неизвестные функции $A(x, y, z, \zeta)$ и $B(x, y, z, \zeta)$ не зависели бы от ζ , причем вдали от кольца $A \rightarrow 1$ (новую “пространственную” переменную $z = \tau - u\zeta$ не следует путать с эволюционной переменной ζ).

Казалось бы, при моделировании консервативной системы для A и B , которая следует из уравнений (3), новые переменные никакого преимущества не дают. Но цель проведенной замены состоит в другом — получить возможность использовать метод распространения в мнимом времени (*imaginary-time propagation*) для численного приготовления начального состояния, как можно более близкого к стационару. Необходимо при этом подчеркнуть, что интересующее нас стационарное решение не является строгим минимумом соответствующего функционала $\mathcal{H}_u[A, B] = \int (I_0|A|^2 + \mu_2|B|^2) dx dy dz$, а лишь его седловой точкой. Например, по радиусу вихревого кольца этот функционал имеет максимум, так что в диссипативной процедуре, пока жесткие моды релаксируют, размер кольца медленно уходит от начального значения. Поэтому мы вынуждены ограничиться конечным псевдовременным интервалом в методе

мнимого времени, что не позволяет нам полностью избавиться от возмущений в начальном состоянии. С другой стороны, моделирование с нестационарными возмущениями делает численные эксперименты более реалистичными и дает возможность оценить в целом устойчивость исследуемых структур.

Заметим еще, что все вычисления проводились в кубе $(2\pi)^3$ с периодическими граничными условиями по переменным x, y и z . Поэтому, строго говоря, представленные здесь структуры не являются вполне уединенными. Однако при радиусе кольца 1 влияние периодически расположенных “соседних” одинаковых вихрей не очень существенно.

Типичные значения параметров. Подбирая параметры u, I_0 и $\mu_2 \sim I_0$, а также затравочные функции A и B для процедуры распространения в мнимом времени, равно как и сам псевдовременной интервал, можно добиться достаточно “хорошего” начального состояния с желаемым значением количества второй компоненты $N_2 = \int |B|^2 dx dy dz$.

Поскольку безразмерную ширину сердцевинки незаполненного вихря можно оценить как $\xi \sim 1/\sqrt{I_0}$, основной интерес представляют значения $I_0 = 16-80$, при которых (размерная) ширина сердцевинки существенно меньше радиуса кольца, но все еще много больше длины волны для применимости квазимонохроматического приближения. Не следует также забывать об ограничении $\xi R_0\sqrt{k_0|k_0''|}\omega \gtrsim 2\pi$ на ширину кора по переменной τ , которое в случае $(\omega^2|k_0''|/k_0) < 1$ является более жестким, чем $\xi k_0 R_0 \gtrsim 2\pi$.

Параметр u необходимо подбирать самосогласованно из того требования, чтобы последующее движение кольца в пространстве (x, y, z) происходило с как можно меньшей скоростью (на практике достаточно добиться остаточной скорости $\lesssim 0.2$). Сами значения u при этом находятся в диапазоне от ≈ 1.5 при $I_0 = 16$ до ≈ 2.0 при $I_0 = 81$.

Эволюционный интервал по переменной ζ составлял не менее 60 единиц. Во всех случаях вихрь-солитонный комплекс не проявлял тенденции к заметному нарастанию амплитуд возмущений, что свидетельствует о долговременном характере рассматриваемых структур и их практической устойчивости.

Примеры. Первый пример квазистационарного заполненного вихревого кольца с нарушенной азимутальной симметрией приведен на рис. 1. Значения параметров в этом численном эксперименте были $I_0 = 25, u \approx 1.65, N_2 \approx 1.8$. Соответствующие профили интенсивностей $|A|^2, |B|^2$, а также вихревой фазы показаны на рис. 2. Для сравнения следует упомянуть, что с меньшим количеством второй компонен-

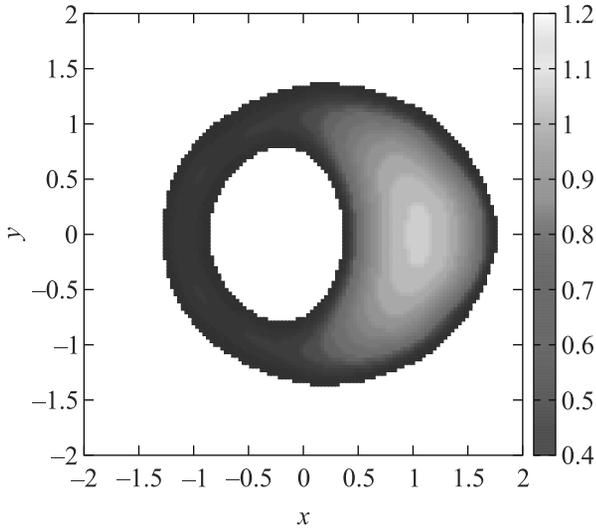


Рис. 1. (Цветной онлайн) Численный пример неоднородно заполненного квазистационарного вихревого кольца. Показана поверхность $|A(x, y, z)|^2 = 0.5$ на дистанции распространения $\zeta = 100$, причем цветом отмечено значение координаты z (см. подробности в тексте)

ты $N_2 \approx 0.6$ сосисочная неустойчивость отсутствовала, поскольку имел место режим колебаний для амплитуды первой азимутальной моды с переходом ее через нуль (причем без замедления вблизи нуля). Критическое значение заполнения оказалось в районе $N_{2,c} \approx 1.0$. При уменьшении интенсивности до $I_0 = 16$ даже сильно заполненный (“толстый”) вихрь с $N_2 \approx 1.9$ не проявлял сосисочной неустойчивости. Напротив, увеличение интенсивности до $I_0 = 36$ уменьшало критическое заполнение до $N_{2,c} \approx 0.5$.

Так как безразмерный коэффициент эффективного поверхностного натяжения зависит от I_0 как $\sigma \propto \sqrt{I_0}$, следует ожидать особенно ярко выраженной сосисочной неустойчивости при больших значениях I_0 . Пример сильно неоднородного вихревого кольца для случая $I_0 = 81$, $u \approx 2.0$, $N_2 \approx 1.0$ представлен на рис. 3. Видно, что на значительной части кольца вторая компонента практически полностью отсутствует — она вся выдавлена в четко оформленный пузырь, так что конфигурация напоминает сумку с ремнем или гимнастическую гирию.

Закключение. Таким образом, в данной работе численно показано, что в дефокусирующей Керровской оптической среде с аномальной дисперсией групповой скорости заполненное вихревое кольцо при достаточно сильной интенсивности фоновой волны подвержено сосисочной неустойчивости. Однако, в отличие от подобных объектов в захваченных бинарных бозе-конденсатах холодных атомов, здесь неустойчивость насыщается и приводит к ранее неиз-

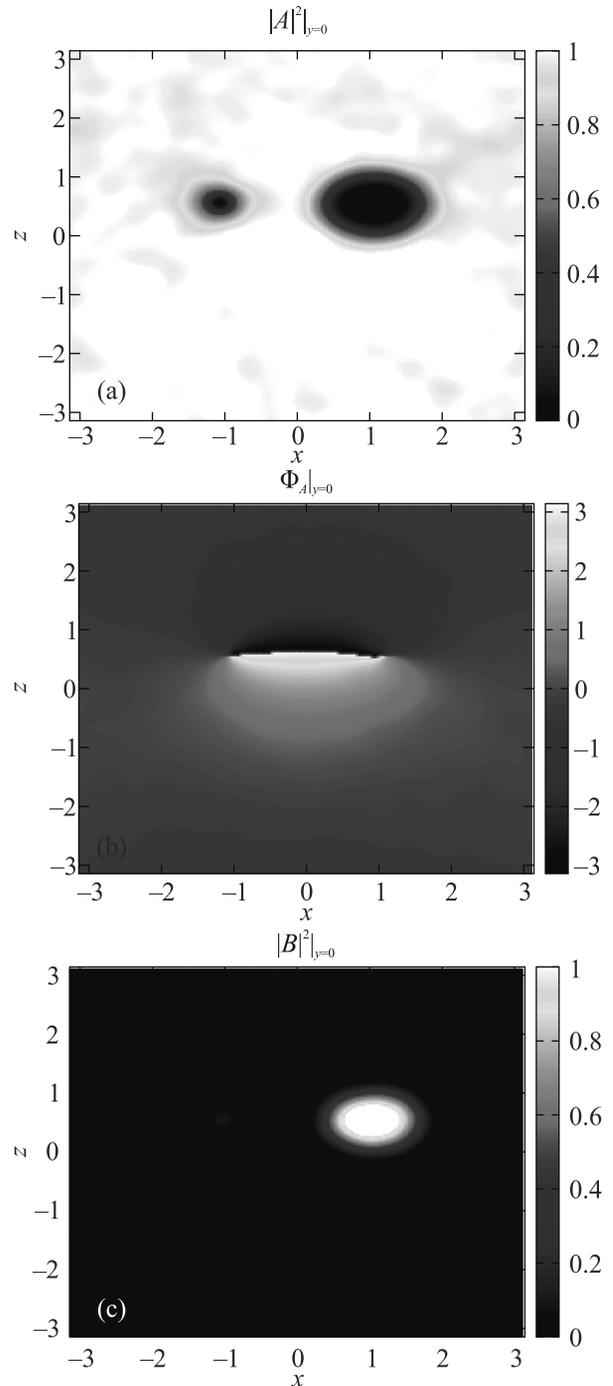


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сечение вихревого кольца из рис. 1 плоскостью $y = 0$: (a) – относительная интенсивность первой компоненты; (b) – фаза первой компоненты; (c) – относительная интенсивность второй компоненты

вестным долгоживущим, существенно трехмерным структурам, которые не обладают осевой симметрией. Характерный размер таких комплексов оценивается в сотню микрон, а длина их распространения составляет метры.

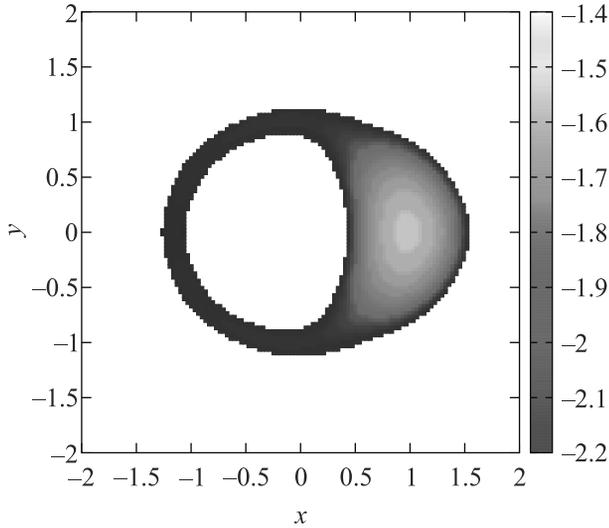


Рис. 3. Численный пример насыщения сильной сосисочной неустойчивости при $I_0 = 81$, $u \approx 2.0$, $N_2 \approx 1.0$

Интересно также отметить, что при учете относительно слабого линейного поглощения света параметр I_0 начинает экспоненциально уменьшаться по мере распространения волны. Если на начальном этапе имелось квазистационарное кольцо с нарушенной симметрией, то через какой-то интервал ζ структура должна перейти в режим без сосисочной неустойчивости и в среднем восстановить осевую симметрию. Соответствующие численные эксперименты (их результаты здесь не приведены) подтвердили такой сценарий.

Работа выполнена в рамках госзадания # 0029-2021-0003.

1. Y. Kivshar and G. P. Agrawal, *Optical Solitons: From Fibers to Photonic Crystals*, 1st ed., Academic Press, California, USA (2003).
2. V. E. Zakharov and S. Wabnitz, *Optical Solitons: Theoretical Challenges and Industrial Perspectives*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1999).
3. B. A. Malomed, *Multidimensional Solitons*, AIP Publishing (online), Melville, N. Y. (2022); <https://doi.org/10.1063/9780735425118>.
4. F. Baronio, S. Wabnitz, and Yu. Kodama, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 173901 (2016).
5. P. G. Kevrekidis, D. J. Frantzeskakis, and R. Carretero-González, *The Defocusing Nonlinear Schrödinger Equation: From Dark Solitons to Vortices and Vortex Rings*, SIAM, Philadelphia (2015).
6. А. Л. Берхоер, В. Е. Захаров, *ЖЭТФ* **58**, 903 (1970).
7. T.-L. Ho and V. B. Shenoy, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3276 (1996).

8. H. Pu and N. P. Bigelow, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1130 (1998).
9. B. P. Anderson, P. C. Haljan, C. E. Wieman, and E. A. Cornell, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2857 (2000).
10. S. Coen and M. Haelterman, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 140401 (2001).
11. G. Modugno, M. Modugno, F. Riboli, G. Roati, and M. Inguscio, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 190404 (2002).
12. E. Timmermans, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5718 (1998).
13. P. Ao and S. T. Chui, *Phys. Rev. A* **58**, 4836 (1998).
14. M. Haelterman and A. P. Sheppard, *Phys. Rev. E* **49**, 3389 (1994).
15. M. Haelterman and A. P. Sheppard, *Phys. Rev. E* **49**, 4512 (1994).
16. A. P. Sheppard and M. Haelterman, *Opt. Lett.* **19**, 859 (1994).
17. Yu. S. Kivshar and B. Luther-Davies, *Phys. Rep.* **298**, 81 (1998).
18. N. Dror, B. A. Malomed, and J. Zeng, *Phys. Rev. E* **84**, 046602 (2011).
19. A. H. Carlsson, J. N. Malmberg, D. Anderson, M. Lisak, E. A. Ostrovskaya, T. J. Alexander, and Yu. S. Kivshar, *Opt. Lett.* **25**, 660 (2000).
20. A. S. Desyatnikov, L. Torner, and Yu. S. Kivshar, *Progress in Optics* **47**, 291 (2005).
21. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 292 (2023).
22. B. van Schaeybroeck, *Phys. Rev. A* **78**, 023624 (2008).
23. K. Sasaki, N. Suzuki, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **83**, 033602 (2011).
24. H. Takeuchi, N. Suzuki, K. Kasamatsu, H. Saito, and M. Tsubota, *Phys. Rev. B* **81**, 094517 (2010).
25. N. Suzuki, H. Takeuchi, K. Kasamatsu, M. Tsubota, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **82**, 063604 (2010).
26. H. Kokubo, K. Kasamatsu, and H. Takeuchi, *Phys. Rev. A* **104**, 023312 (2021).
27. K. Sasaki, N. Suzuki, D. Akamatsu, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **80**, 063611 (2009).
28. S. Gautam and D. Angom, *Phys. Rev. A* **81**, 053616 (2010).
29. T. Kadokura, T. Aioi, K. Sasaki, T. Kishimoto, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **85**, 013602 (2012).
30. K. Sasaki, N. Suzuki, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **83**, 053606 (2011).
31. D. Kobayakov, V. Bychkov, E. Lundh, A. Bezett, and M. Marklund, *Phys. Rev. A* **86**, 023614 (2012).
32. D. K. Maity, K. Mukherjee, S. I. Mistakidis, S. Das, P. G. Kevrekidis, S. Majumder, and P. Schmelcher, *Phys. Rev. A* **102**, 033320 (2020).
33. K. Kasamatsu, M. Tsubota, and M. Ueda, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 150406 (2003).
34. K. Kasamatsu and M. Tsubota, *Phys. Rev. A* **79**, 023606 (2009).
35. P. Mason and A. Aftalion, *Phys. Rev. A* **84**, 033611 (2011).

36. K. Kasamatsu, M. Tsubota, and M. Ueda, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 250406 (2004).
37. H. Takeuchi, K. Kasamatsu, M. Tsubota, and M. Nitta, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 245301 (2012).
38. M. Nitta, K. Kasamatsu, M. Tsubota, and H. Takeuchi, *Phys. Rev. A* **85**, 053639 (2012).
39. K. Kasamatsu, H. Takeuchi, M. Tsubota, and M. Nitta, *Phys. Rev. A* **88**, 013620 (2013).
40. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 848 (2021).
41. В. П. Рубан, *ЖЭТФ* **160**, 912 (2021).
42. K. J. H. Law, P. G. Kevrekidis, and L. S. Tuckerman, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 160405 (2010); Erratum, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 199903 (2011).
43. M. Pola, J. Stockhofe, P. Schmelcher, and P. G. Kevrekidis, *Phys. Rev. A* **86**, 053601 (2012).
44. S. Hayashi, M. Tsubota, and H. Takeuchi, *Phys. Rev. A* **87**, 063628 (2013).
45. A. Richaud, V. Penna, R. Mayol, and M. Guilleumas, *Phys. Rev. A* **101**, 013630 (2020).
46. A. Richaud, V. Penna, and A. L. Fetter, *Phys. Rev. A* **103**, 023311 (2021).
47. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 539 (2021).
48. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 450 (2022).
49. V. P. Ruban, W. Wang, C. Ticknor, and P. G. Kevrekidis, *Phys. Rev. A* **105**, 013319 (2022).
50. G. C. Katsimiga, P. G. Kevrekidis, B. Prinari, G. Biondini, and P. Schmelcher, *Phys. Rev. A* **97**, 043623 (2018).
51. X. Liu, B. Zhou, H. Guo, and M. Bache, *Opt. Lett.* **40**, 3798 (2015).
52. X. Liu and M. Bache, *Opt. Lett.* **40**, 4257 (2015).

Coulomb correlations and electronic structure of CuCo_2S_4 : a DFT + DMFT study

*S. L. Skornyakov^{+*1)}, I. O. Trifonov^{+*}, V. I. Anisimov^{+*}*

⁺*M. N. Miheev Institute of Metal Physics, Russian Academy of Sciences, 620108 Yekaterinburg, Russia*

^{*}*Institute of Physics and Technology, Ural Federal University, 620002 Yekaterinburg, Russia*

Submitted 9 March 2023
Resubmitted 9 March 2023
Accepted 20 March 2023

DOI: 10.31857/S1234567823080050, EDN: wtselb

Superconductivity (SC) of Co-based compounds occurs extremely rare compared to other transition metal counterparts. For a long time the only known example of a Co-based SC was the oxide hydrate $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ ($T_c \sim 5$ K) [1, 2]. Later, SC was found in LaCo_2B_2 ($T_c \sim 4$ K) [3], $\text{Lu}_3\text{Co}_4\text{Ge}_{13}$ ($T_c \leq 1.4$ K) [4], and very recently in CuCoSi ($T_c \sim 4$ K) [5]. Also, it is worth noting that there is another exotic Co-containing system PuCoGa_5 exhibiting a rather high $T_c \sim 18$ K [6, 7] however its SC stems from Pu electrons.

The thiospinel compound CuCo_2S_4 shows many similarities with $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ including Co coordination, Co formal valence, and geometric frustration. First report on SC of $\text{Cu}_{1+x}\text{Co}_{2-x}\text{S}_4$ multiphase powder samples with an estimate $T_c \sim 2$ K is dated back to 1993 [8]. Later, the SC-like behavior was confirmed by nuclear magnetic resonance (NMR) measurements of a multiphase $\text{Cu}_{1.5}\text{Co}_{1.5}\text{S}_4$ revealing the growth of antiferromagnetic spin correlations at low temperatures [9]. Recent magnetic and transport measurements of the new generation of nearly stoichiometric CuCo_2S_4 samples detected Pauli paramagnetism and a SC transition at $T_c = 4.2$ K [10].

Investigations of the symmetry of the SC gap of CuCo_2S_4 arrived at different conclusions. Early NMR measurements suggested a gapless SC state developing in line with an enhancement of antiferromagnetic fluctuations [9]. By contrast, later NMR experiments indicated a full isotropic SC gap yet confirmed the presence of weak antiferromagnetic spin correlations [11, 12]. In this context, it is interesting that the order parameter of the related Co-based system $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ is presumably anisotropic [13–15]. Thus, it is not clear whether CuCo_2S_4 should be classified an unconventional SC [16].

Until now, there are only few research papers reporting microscopic analysis of the electronic properties

of CuCo_2S_4 using standard density functional theory (DFT) methods neglecting the effect of electron-electron correlations in the partially filled Co 3d shell [17, 18]. At the same time importance of electron correlations in CuCo_2S_4 is traced from resistivity measurements as indicated by the authors of [19].

In this Letter, we explore the effect of Coulomb correlations on the electronic structure and magnetic properties of CuCo_2S_4 employing a combination of many-body dynamical mean-field theory (DMFT) with DFT (DFT + DMFT method) [20, 21]. We analyze the impact of electron-electron interaction on the spectral functions, Fermi surface (FS) shape, quasiparticle effective mass renormalization m^*/m , and formation of the local moments. Our results demonstrate that CuCo_2S_4 is a weakly correlated compound with a high degree of electronic itinerancy. Nevertheless, it is found that correlation effects are strong enough to cause a significant modification of one the FS sheets.

We find that the spectral functions of CuCo_2S_4 computed by DFT + DMFT show little difference with those obtained by DFT. We observe that correlation effects only slightly shift and renormalize the spectral functions in the vicinity of the Fermi energy (E_F) leaving their shape almost unchanged. The calculated enhancement of the quasiparticle mass is $m^*/m = 1.18$ for the t_{2g} orbitals and $m^*/m = 1.22$ for the e_g states. The computed m^*/m are approximately twice smaller the characteristic values obtained in DFT + DMFT calculations for different Fe-based unconventional superconductors [22, 23].

Our DFT + DMFT calculations show significant correlation induced transformations of one of the FS sheets as compared to DFT (Fig. 1). In particular, we observe an increase of the radius of the inner sheet and a stretch of the middle sheet along the Γ -L direction. These parts of the FS exhibit a weak sensitivity to correlation effects. On the contrary, within DFT + DMFT the outer sheet

¹⁾e-mail: sergey.l.skornyakov@yandex.ru

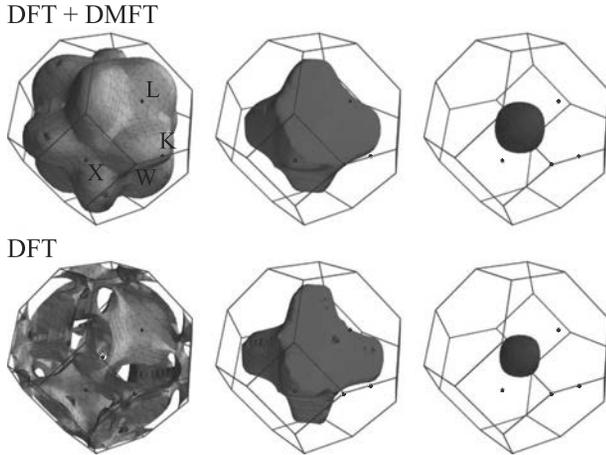


Fig. 1. (Color online) Fermi surface of CuCo_2S_4 as computed by DFT + DMFT (top row) at $T = 290$ K and DFT (bottom row). For clarity, different sheets are shown separately

represents a closed shape that fully fits the Brillouin zone (BZ). We demonstrate that these modifications of the FS occur due to the presence of shallow FS pockets in the electronic structure of CuCo_2S_4 along the W-L-K path in the BZ.

We obtain that DFT + DMFT gives the fluctuating magnetic moment $\sqrt{\langle m_z^2 \rangle} \sim 1 \mu_B$. This value is significantly (by a factor ~ 2.5) smaller than that reported for parent compounds of pnictide and chalcogenide Fe-based superconductors [24, 25] which show well-defined local moments and therefore implies a weaker localization of $3d$ electrons in CuCo_2S_4 . To illustrate the higher degree of electronic itinerancy we compute the local spin correlator $\chi(\tau) = \langle \hat{s}^z(\tau) \hat{s}^z(0) \rangle$ (where $\hat{s}^z(\tau)$ is the instantaneous Co spin at imaginary time τ) and estimate the local moment $M_{\text{loc}} = (k_B T \int_0^{1/k_B T} d\tau \chi(\tau))^{1/2}$. Our calculations give $M_{\text{loc}} \sim 0.18 \mu_B$ which is at least two times smaller than that obtained by DFT + DMFT for the Fe-based pnictides and chalcogenides [24, 25]. The small magnitude of both $\sqrt{\langle m_z^2 \rangle}$ and M_{loc} is indicative of weak spin fluctuations and questions the spin-fluctuation-mediated origin of superconductivity of CuCo_2S_4 .

This work was supported by the Russian Science Foundation (Project # 19-12-00012).

This is an excerpt of the article ‘‘Coulomb correlations and electronic structure of CuCo_2S_4 : a DFT + DMFT study’’. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023600647

1. K. Takada, H. Sakurai, E. Takayama-Muromachi, F. Izumi, R. A. Dilanian, and T. Sasaki, *Nature* **422**, 53 (2003).

2. H. Sakurai, Y. Ihara, and K. Takada, *Physica C* **514**, 378 (2015).
3. H. Mizoguchi, T. Kuroda, T. Kamiya, and H. Hosono, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 237001 (2011).
4. B. K. Rai, I. W. H. Oswald, J. K. Wang, G. T. McCandless, J. Y. Chan, and E. Morosan, *Chem. Mater.* **27**, 2488 (2015).
5. Z. He, R. Huang, K. Zhou, Y. Liu, S. Guo, Y. Song, Z. Guo, S. Hu, L. He, Q. Huang, L. Li, J. Zhang, S. Wang, J. Guo, X. Xing, and J. Chen, *Inorg. Chem.* **60**, 6157 (2021).
6. J. L. Sarrao, L. A. Morales, J. D. Thompson, B. L. Scott, G. R. Stewart, F. Wastin, J. Rebizant, P. Boulet, E. Colineau, and G. H. Lander, *Nature* **420**, 297 (2002).
7. N. J. Curro, T. Caldwell, E. D. Bauer, L. A. Morales, M. J. Graf, Y. Bang, A. V. Balatsky, J. D. Thompson, and J. L. Sarrao, *Nature* **434**, 622 (2005).
8. K. Miyatani, T. Tanaka, S. Sakita, M. Ishikawa, and N. Shirakawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, Suppl. 32-3, 448 (1993).
9. Y. Furukawa, S. Wada, K. Miyatani, T. Tanaka, M. Fukuguchi, and M. Ishikawa, *Phys. Rev. B* **51**, 6159 (1995).
10. Y.-Y. Jin, S.-H. Sun, Y.-W. Cui, Q.-Q. Zhu, L.-W. Ji, Z. Ren, and G.-H. Cao, *Phys. Rev. Mater.* **5**, 074804 (2021).
11. H. Sugita, S. Wada, K. Miyatani, T. Tanaka, and M. Ishikawa, *Physica B* **284**, 473 (2000).
12. S. Wada, H. Sugita, K. Miyatani, T. Tanaka, and T. Nishikawa, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, 219 (2002).
13. G. Baskaran, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 097003 (2003).
14. T. Fujimoto, G.-Q. Zheng, Y. Kitaoka, R. L. Meng, J. Cmaidalka, and C. W. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 047004 (2004).
15. Q.-H. Wang, D.-H. Lee, and P. A. Lee, *Phys. Rev. B* **69**, 092504 (2004).
16. J. Hirsch, M. Maple, and F. Marsiglio, *Physica C* **514**, 1 (2015).
17. Z. Yue, Z. Hou, F. Yun, P. Liu, G. Yang, A. Bake, W. Zhao, D. Cortie, C. Shu, S. Hu, J. Cheng, and X. Wang, *J. Mater. Chem. C* **9**, 8874 (2021).
18. L. Wu, L. Sun, X. Li, Q. Zhang, Y. Zhang, J. Gu, K. Wang, and Y. Zhang, *Small* **16**, 2001468 (2020).
19. K. Miyatani, T. Tanaka, and M. Ishikawa, *J. Appl. Phys.* **83**, 6792 (1998).
20. A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. J. Rozenberg, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13 (1996).
21. V. I. Anisimov, A. I. Poteryaev, M. A. Korotin, A. O. Anokhin, and G. Kotliar, *J. Phys. Condens. Matter* **9**, 7359 (1997).
22. Z. P. Yin, K. Haule, and G. Kotliar, *Nat. Mater.* **10**, 932 (2011).
23. I. A. Nekrasov, N. S. Pavlov, and M. V. Sadovskii, *JETP Letters* **102**, 30 (2015).
24. S. L. Skornyakov and I. Leonov, *Phys. Rev. B* **100**, 235123 (2019).
25. S. L. Skornyakov, V. I. Anisimov, and I. Leonov, *Phys. Rev. B* **103**, 155115 (2021).

Переключение поляризации монокристалла сегнетовой соли в магнитном поле

Е. Д. Якушкин¹⁾

Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова,
Федеральный научно-исследовательский центр “Кристаллография и фотоника” РАН, 119333 Москва, Россия

Поступила в редакцию 27 февраля 2023 г.

После переработки 10 марта 2023 г.

Принята к публикации 10 марта 2023 г.

Обнаружено изменение параметров электрического переключения монокристалла сегнетовой соли во внешнем магнитном поле. Модифицированная петля гистерезиса переключаемой поляризации свидетельствует о замедлении движения сегнетоэластических доменов. Эффект, по-видимому, связан с магнитостимулированным усилением пиннинга доменных стенок.

DOI: 10.31857/S1234567823080062, EDN: weiktf

Кристалл сегнетовой соли, $\text{NaKC}_4\text{H}_4\text{O} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (RS), – это первый кристалл, в котором было обнаружено сегнетоэлектричество, и произошло это уже более ста лет тому назад [1]. Кристалл обладает уникальными пьезоэлектрическими свойствами, благодаря чему он всегда имел многочисленные применения. Этот кристалл вызывает интерес и в настоящее время, например, при конструировании пьезоэлектрических композитов [2]. Кристалл RS имеет два фазовых перехода второго рода при температурах 255 и 297 К, между которыми образуется сегнетоэлектрическая фаза. Симметрия при фазовых переходах изменяется как $222 \leftrightarrow 2 \leftrightarrow 222$. В сегнетоэлектрической фазе возникает спонтанная поляризация \mathbf{P}_s вдоль кристаллофизической оси x , а также линейно связанная с \mathbf{P}_s спонтанная сдвиговая деформация u_{yz} . Таким образом, кристалл RS одновременно оказывается и одноосным сегнетоэлектриком, и сегнетоэластиком.

Доменная структура кристаллов RS представляет отдельный интерес. Здесь сегнетоэластические домены – это одновременно и 180-градусные сегнетоэлектрические домены, переключаемые электрическим полем, ориентированным вдоль оси x . Прикладывая поле E_x , можно обеспечить и движение сегнетоэластических доменов и получить характерные петли диэлектрического гистерезиса при переключении кристалла. Причем, при не слишком большом поле это переключение осуществляется простым боковым движением доменных стенок, без зарождения новых доменов. Хорошо установлено, что характерная конфигурация сегнетоэластических доменов

в RS в значительной степени определяется винтовыми дислокациями [3–5]. Дело в том, что винтовые дислокации создают поле механических напряжений с отличной от нуля компонентой, определяющей и доменную конфигурацию кристалла. В частности, дислокации задают те мелкие домены, которые при электрическом переключении кристалла влияют на коэрцитивную силу, определяют восстановление доменной структуры после снятия электрического поля, и т.д. Таким образом, подобно эффекту магнитопластичности [6–10], можно было рассчитывать на изменение и электрических характеристик кристалла при его переключении в магнитном поле. Ясно, что вследствие спонтанной сдвиговой деформации u_{yz} доменная структура кристалла RS чувствительна и к внешнему сдвиговому напряжению σ_{yz} , $u_{yz} \sim \sigma_{yz}$. Можно было бы реализовать и прямой механический эксперимент, но электрическое переключение в данном случае оказывается проще.

В предыдущих работах автора уже рассматривались похожие магнитостимулированные эффекты в других кристаллах. Так, было обнаружено снижение подвижности доменных стенок в магнитном поле в сегнетоэлектрике TGS, хотя и относительно малое [11]. В этом кристалле доменная структура практически не связана с деформацией, доменные стенки очень подвижны и легко отрываются от центров пиннинга в электрическом поле. Позднее было обнаружено сильное магнитное воздействие на электрически переключаемую доменную структуру сегнетоэлектрика-сегнетоэластика молибдата гадолиния [12]. При этом была обнаружена качественная трансформация петли гистерезиса, хотя в этом кристалле электрическая поляризация нели-

¹⁾e-mail: yakushkin@crys.ras.ru

нейно связана со спонтанной деформацией и сегнетоэластические домены плохо переключаются электрическим полем. Еще позднее было обнаружено замедление движения фазовой границы при фазовом переходе первого рода в centrosymmetric кристалле CsHSO_4 , также, по-видимому, связанное с усилением пиннинга этой границы [13]. Легко переключаемый электрическим полем монокристалл RS с сегнетоэластическими доменами представлялся оптимальным для экспериментального изучения магнитного влияния на пиннинг доменных границ.

В настоящем эксперименте было установлено, что параметры переключения монокристалла RS значительно изменяются в магнитном поле с индукцией всего 0.1 Тл. При этом электрическое переключение затрудняется и поляризация снижается. По-видимому, причиной этого является магнитостимулированное усиление пиннинга доменных стенок. В результате, происходит замедление их движения из-за повышения барьеров, связанных с соответствующими центрами пиннинга. В свою очередь, такое повышение, по-видимому, обусловлено изменением в магнитном поле спинового состояния стопоров, приводящим к трансформации их структуры в новую метастабильную (относительно долгоживущую) конфигурацию. Это касается и стопоров, лимитирующих пиннинг дислокаций. Тем самым, обнаруженный эффект подобен эффекту отрицательной магнитопластичности [14, 15].

Исследованные монокристаллы RS были выращены в Институте кристаллографии РАН. Образцы представляли собой пластины, вырезанные перпендикулярно полярной оси x ($\mathbf{P}_s \parallel x$) площадью $\sim 0.5 \text{ см}^2$ и толщиной $\sim 1 \text{ мм}$. Они не имели видимых включений и прочих дефектов, различимых на оптическом уровне. Электроды на полярных гранях образцов наносились серебряной пастой. Петли диэлектрического гистерезиса ($P-E$) получены в модернизированной схеме Соьера-Тауэра при циклическом переключении образцов в синусоидальном поле. Доменная структура образцов монокристалла RS контролировалась в поляризационно-оптическом микроскопе. Практически для всех образцов это были полосчатые домены в плоскости $y-z$ с шириной $L \sim 10-50 \text{ мкм}$ и линейной плотностью $n \sim 10^4 \text{ см}^{-1}$. Переключаемый образец монокристалла помещался в зазор постоянного подковообразного магнита с индукцией B в зазоре $\sim 0.1 \text{ Тл}$. Воздействие магнитным полем осуществлялось в реальном времени. Приведенный ниже результат соответствует геометрии ($\mathbf{B} \perp \mathbf{P}_s$). Все эксперименты выполнялись при комнатной температуре (293 К) и при постоянной влаж-

ности около 60%. Поддержание постоянства этих параметров важно из-за близости к температуре фазового перехода и вследствие гигроскопичности кристаллов RS.

Использованная методика позволяет проводить измерения петель гистерезиса ($P-E$) в широком диапазоне частот ω ($\omega = 2\pi f$) и напряжений (электрически полей). В данном эксперименте важно было выбрать их оптимальные значения. Напряженность электрического поля выбиралась так, чтобы переключалась только часть всего монокристалла, и переключение происходило только в результате бокового смещения доменных стенок, когда одни домены поглощают другие, без образования новых доменов. Частота переключающего поля выбиралась так, чтобы доменные стенки, имея при данном значении напряженности поля скорость v , перемещались за половину периода $t_0 = 1/f$ на достаточное расстояние Δl , во всяком случае, большее ширины L самого домена, т.е. должно выполняться условие $\Delta l \sim v \cdot t_0 \sim \mu \cdot E \cdot t_0 \gg L$, где μ – подвижность доменной стенки при данной температуре. Для использованных в данных экспериментах частоты $f = 1 \text{ Гц}$, и прикладываемого поля $\sim 200 \text{ В/см}$ это условие выполняется с запасом. Вместе с тем, желательно, чтобы эта рабочая частота была разумно не малой для удобства аппаратной компенсации тока утечки и линейной поляризации образца. Оба эти эффекта искажают петли гистерезиса и, таким образом, наблюдаемую картину переключения. На приведенных петлях гистерезиса они скомпенсированы аппаратным образом. При выборе условий эксперимента учитывались и полученные ранее результаты магнитного воздействия на сегнетоэластик молибдат гадолиния [12]. Указанные экспериментальные условия фактически следуют и из давних результатов визуализации доменной структуры монокристаллов RS, в том числе и в электрическом поле [4, 5]. А картины доменов исследованных в настоящей работе образцов абсолютно идентичны приведенным в этих работах микрофотографиям.

На рисунке приведены две петли диэлектрического гистерезиса – исходная, без магнитного поля, и в магнитном поле. Это графическое представление сигнала цифрового осциллографа, работающего в режиме $X-Y$ ($E - P$). Петли имеют наклонные ветви, характерные для любого полидоменного сегнетоэлектрика. Можно видеть, что изначально выполняется соотношение $P \ll P_s$ ($P_s \approx 0.2 \text{ мкКл/см}^2$ при 293 К). Таким образом, это частичное переключение, отвечающее выбранным значениям E и f . Видно, что магнитное поле еще более сокращает переключе-

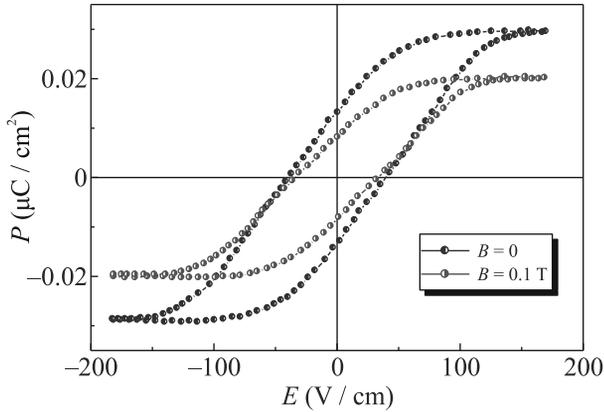


Рис. 1. (Цветной онлайн) Петли диэлектрического гистерезиса полидоменного образца монокристалла RS – исходная, и в магнитном поле. Частота синусоидального электрического поля – 1 Гц

чаемый объем, число не переключающихся областей увеличивается, и поляризация всего образца становится меньше приблизительно на 30%. Уменьшается и насыщенная (для данного числа доменов), и остаточная поляризация. Приблизительно на 40% изменяется и площадь петли, отвечающая потерям при переключении кристалла, т.е. потери на переключение снижаются. Очевидно, что это происходит вследствие магнитоимпульсированного закрепления (пиннинга) подвижных доменных стенок на дефектах-стопорах (центрах пиннинга). Видно также, что и остающиеся переключаемые домены “требуют” больших значений поля – наклон ветвей петли становится больше. Вместе с тем, петля гистерезиса остается симметричной, и какое-либо смещение по осям отсутствует, т.е. никаких смещающих полей дефектной природы не возникает. Приведенная типичная картина трансформации петли гистерезиса устанавливается в течение 5–7 мин. Ясно, что в магнитном поле должно быть и изменение диэлектрической восприимчивости $\chi \sim dP/dE$, но измеряемой в соответственно сильном поле.

Наблюдаемые изменения диэлектрического гистерезиса вполне соответствуют известной модели Колмогорова–Аврами. Эта модель относится к фазовым переходам первого рода и описывает временную эволюцию доли превращаемого объема системы. Однако ее полевая модификация обычно используется и для описания переключения сегнетоэлектриков (см., например, [16]). Действительно, доменный механизм переключения с характерной петлей гистерезиса аналогичен фазовому переходу первого рода. Эта модель предсказывает такое изменение петли гистерезиса, и именно такое изменение наклона ветвей

петли (изменение значения dP/dE) при сокращающемся объеме переключения.

Изменение поляризации кристалла со временем в магнитном поле удобнее наблюдать на экране осциллографа по сигналам напряжений, действующим в используемой схеме Сойера–Тауэра (рис. 2). Это те же сигналы, которые формируют горизонтальную и вертикальную развертку в режиме X–Y осциллографа (рис. 1). На рисунке 2 показаны характерные осциллограммы напряжений – входного – $U_0(t) \sim E \sim \exp(i\omega t)$, подаваемого на кристалл после его усиления (верхние осциллограммы), и выходного – $U(t) \sim P$, пропорционального поляризации кристалла (нижние осциллограммы). Нижняя осциллограмма на рис. 2b соответствует результату воздействия на образец магнитного поля в течение тех же 5–7 мин. На этой осциллограмме можно заметить и некоторый спад на вершине сигнала, соответствующий увеличению вклада линейной поляризации на фоне падения переключаемой поляризации – линейная поляризация следует за изменением поля U_0 , при этом выполненная изначально аппаратная компенсация оказывается уже недостаточной. Этим же возросшим вкладом линейной поляризации обусловлено и видимое снижение значения коэрцитивного поля на рис. 1.

Изменение поляризации во времени при воздействии магнитного поля оценивалось по показаниям действующего значения напряжения $U(t)$, дополнительно отображаемого на экране цифрового осциллографа. На рисунке 3 показано относительное изменение напряжения $U(t) \sim P(t)$ со временем сразу после помещения образца в магнитное поле. Эти показания фиксируются на приборе с немалой ошибкой, что и отображено на рис. 3. Эволюция эффекта выглядит как некоторая релаксация, первые 5 мин которой показаны с экспоненциальной аппроксимацией – $U(t) \sim P(t) \sim \exp(-t/\tau)$, $\tau \approx 2$ мин – время релаксации. Но эффект должен иметь и насыщение, поскольку, очевидно, он зависит от числа n доменных стенок и величины смещения Δl доменной стенки, в соответствии с изменением поляризации – $\Delta P \sim P_s \cdot n \cdot \Delta l$, т.е., до некоторой степени, должно быть так, что чем больше стенок, тем больше и эффект. При этом в каждом случае следует подбирать соответствующие значения E и f . Ну и можно ожидать насыщения эффекта при данных значениях E и f . В эксперименте, через время порядка 10 мин какие-либо изменения в картине реполяризации не наблюдаются. Исходная диэлектрическая петля и соответствующие сигналы полностью восстанавливаются приблизительно за такое

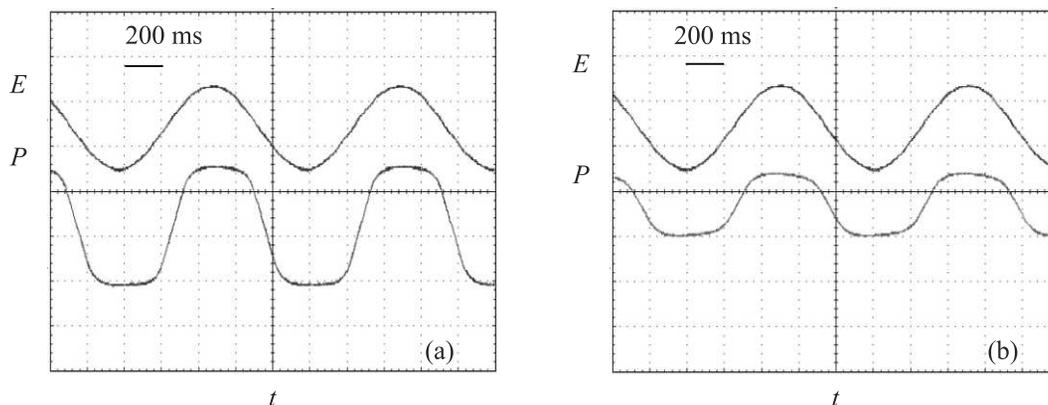


Рис. 2. (Цветной онлайн) Осциллограммы напряжений, которым пропорциональны значения E и P , приведенные на рис. 1 (верхние и нижние, соответственно); исходные (а) и в магнитном поле (б) (вертикальный масштаб осциллограмм различен – 2 В/дел для верхних сигналов и 100 мВ/дел для нижних, временная развертка по горизонтали – 200 мс/дел)

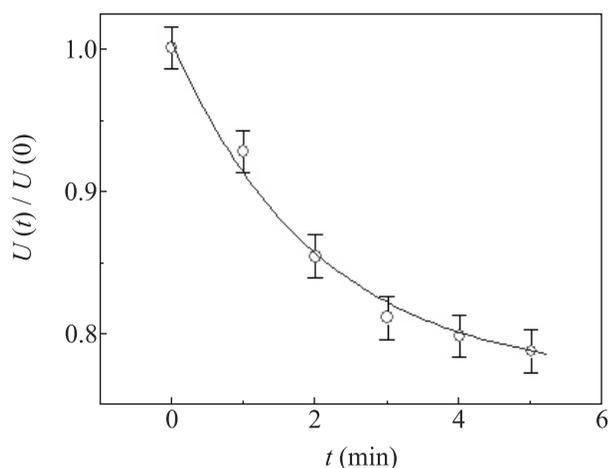


Рис. 3. (Цветной онлайн) Изменение со временем действующего значения сигнала напряжения, пропорционального поляризации P , в условиях действия магнитного поля (сплошная кривая – экспоненциальная аппроксимация)

же время после удаления образца из магнитного поля. При этом ясно, что пиннинг-депиннинг доменных стенок происходит термоактивационным образом за значительно меньшее характерное время, определяемое как $t_p \sim \omega_0^{-1} \exp(W/kT)$, где ω_0 – частота колебаний ионов, W – величина энергетического барьера в системе центров пиннинга (дефектов-стопоров), k – постоянная Больцмана, T – температура. Но релаксация системы доменов к квазиравновесной конфигурации происходит за значительно большее время, что и наблюдается в эксперименте. Это время соответствует временам эволюции доменной структуры в различных ситуациях. Например, за такое же по порядку величины время восстанавливается исходная

доменная конфигурация после отключения статического электрического поля [3].

Полученный эффект качественно воспроизводится и на разных образцах, и на одном образце с измененной предысторией. Но количественные различия в этих случаях возможны. Эти различия будут и при вариации указанных выше условий эксперимента.

Следует отметить, что наблюдаемый эффект никак не связан с магнитным взаимодействием с какими-либо подвижными зарядами – монокристалл RS хороший диэлектрик, его удельная проводимость при комнатной температуре не превышает $10^{-12} (\text{Ом} \cdot \text{см})^{-1}$. Эффект также не связан и с возможным магнитным моментом, возникающим в результате изменяющейся во времени поляризации при движении доменных границ [17]. При рассмотрении и того, и другого можно ожидать значительно меньший эффект, нежели реально наблюдаемый.

Таким образом, как и в случае эффекта магнитопластичности, наблюдаемый эффект, по-видимому, связан с изменением спинового состояния локальных центров пиннинга в магнитном поле, снимающем запрет на определенный электронный переход. Это приводит к трансформации структуры центров и к соответствующему изменению силы пиннинга, и, следовательно, к изменению подвижности как дислокаций, так и доменных стенок. В данном случае магнитное поле приводит к усилению пиннинга и стабилизации доменной конфигурации кристалла при его переключении. В случае RS центрами пиннинга могут быть как точечные дефекты, так и связанные посредством спонтанной деформации u_{yz} винтовые дислокации. При этом может быть так, что модифицированные магнитным полем точечные дефекты

закрепляют дислокации, которые затем и тормозят движение доменных стенок. Вообще говоря, дислокации в сегнетоэлектриках могут по-разному взаимодействовать с доменными стенками. Например, в случае титаната бария краевые дислокации могут облегчать депиннинг доменных стенок, что сопровождается и снижением коэрцитивного поля, а в случае кристалла RS винтовые дислокации, перпендикулярные доменным стенкам, наоборот, приводят к фиксации доменных стенок [18, 19]. Но в этих разных кристаллах и доменные стенки очень разные, в частности, из-за разной удаленности комнатной температуры от температур фазовых переходов. На доменную конфигурацию кристалла RS сильное влияние оказывает и пьезоэффект $u_{yz} = d_{14} \cdot E_x$, вследствие аномально большого пьезомодуля d_{14} . В общем случае, дислокации существенно влияют на параметры переключения и объемных сегнетоэлектриков, и сегнетоэлектрических пленок. В последнее время предлагается искусственное введение дислокаций в функциональные сегнетоэлектрические кристаллы, модифицирующее и силу пиннинга доменных стенок, и эффективный пьезомодуль, и т.п. [20–22]. Отдельный вопрос – конкретная природа магниточувствительных точечных дефектов, действующих как локальные центры пиннинга. Этот важный вопрос выходит за рамки настоящей статьи. Для ответа на него потребуются новые весьма нетривиальные исследования, как экспериментальные, так и теоретические. Трудность состоит в несоизмерности элементарного акта преобразования пиннинг-центра атомного размера и макроскопического отклика на него, который обычно измеряется в эксперименте, в том числе и в настоящей работе. Тем не менее, применительно к магнитному влиянию на микротвердость кристаллов и подвижность дислокаций в литературе уже обсуждаются конкретные модели на атомном уровне (см., например, [9, 23–25]).

В целом же, общая картина такова. Центры пиннинга (точечные дефекты, дислокации) образуют некоторый потенциальный рельеф, в котором движутся доменные стенки. Доменные стенки закрепляются на центрах пиннинга, тем самым минимизируются внутренние напряжения. Процесс переключения поляризации заключается в освобождении доменной стенки от точек закрепления (депиннинг). В данном случае это стимулированное электрическим полем термоактивационное преодоление локальных потенциальных барьеров, создаваемых локальными стопорами. Очевидно, что в магнитном поле центры пиннинга модифицируются так, что эти барьеры повышаются, и при данном электрическом поле оказы-

ваются непреодолимыми, по крайней мере, для части доменных стенок. Соответственно, изменяются параметры петли диэлектрического гистерезиса. При этом, движение доменных стенок начинается с некоторого порогового значения электрического поля. С повышением электрического поля все большее количество стенок получает возможность освободиться от центров пиннинга, кинетическая энергия стенок растет, влияние центров пиннинга уже не столь существенно, процесс принимает лавинообразный характер, и, в конце концов, происходит полное переключение всего объема кристалла. Эксперимент показывает, что действительно, в этом случае эффект действия магнитного поля наблюдать не удается.

Работа выполнена в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН.

1. Ф. Иона, Д. Ширане, *Сегнетоэлектрические кристаллы*, Мир, М. (1965).
2. E. Lemaire, D. Thuau, J.-B. De Vault, N. Vaissiere, and A. Atilla, *Materials* **14**(20), 6132 (2021).
3. М. А. Чернышева, ДАН СССР **81**(6), 1065 (1951).
4. В. Л. Инденбом, М. А. Чернышева, Известия АН СССР, сер. физ. **22**(12), 1469 (1958).
5. T. Nakamura and K. Ohi, *J. Phys. Soc. Jap.* **16**(2), 209 (1961).
6. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, *Кристаллография* **48**, 826 (2003).
7. Р. Б. Моргунов, УФН **174**, 131 (2004).
8. Ю. И. Головин, ФТТ **46**, 769 (2004).
9. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Р. К. Котовский, Е. А. Петржик, П. Трончик, УФН **187**, 327 (2017).
10. Е. А. Петржик, В. И. Альшиц, Письма в ЖЭТФ **113**, 678 (2021).
11. Е. Д. Якушкин, Письма в ЖЭТФ **99**, 483 (2014).
12. Е. Д. Якушкин, Письма в ЖЭТФ **106**, 523 (2017).
13. Е. Д. Якушкин, В. А. Сандлер, Письма в ЖЭТФ **113**, 348 (2021).
14. Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Письма в ЖЭТФ **70**, 226 (1999).
15. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, Письма в ЖЭТФ **88**, 500 (2008).
16. H. Orihara, S. Hashimoto, and Y. Ishibashi, *J. Phys. Soc. Jap.* **63**(3), 1031 (1994).
17. D. M. Juraschek, Q. N. Meier, M. Trassin, S. E. Trolier-McKinstry, C. L. Degen, and N. A. Spaldin, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 127601 (2019).
18. R. C. Miller and G. Weinreich, *Phys. Rev.* **117**, 1460 (1960).
19. T. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **9**, 425 (1954).

20. H. H. Wu, J. Wang, S. G. Cao, and T. Y. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 232904 (2013).
21. M. Höfling, X. Zhou, L. M. Riemer, E. Bruder, B. Liu, L. Zhou, P. B. Groszewicz, F. Zhuo, B. X. Xu, K. Durst, X. Tan, D. Damjanovic, J. Koruza, and J. Rodel, *Science* **372**, 961 (2021).
22. F. Zhuo, X. Zhou, S. Gao, M. Höfling, F. Dietrich, P. B. Groszewicz, L. Fulanović, P. Breckner, A. Wohninsland, B. X. Xu, H. J. Kleebe, X. Tan, J. Koruza, D. Damjanovic, and J. Rodel, *Nat. Communications* **13**, 6676 (2022).
23. А. Л. Бучаченко, *ЖЭТФ* **132**, 827 (2007).
24. Р. Б. Моргунов, А. Л. Бучаченко, *ЖЭТФ* **136**, 505 (2009).
25. В. И. Альшиц, Е. В. Даринская, М. В. Колдаева, Е. А. Петржик, *ФТТ* **54**, 305 (2012).

Электростатическое и ван-дер-ваальсовское взаимодействие наночастиц в электролитах

А. В. Филиппов^{+*×1)}, В. М. Старов[°]

⁺Государственный научный центр Российской Федерации Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований, 108840 Москва, Троицк, Россия

^{*}Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

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

[°]Department of Chemical Engineering, Loughborough University, Loughborough, LE11 3TU, UK

Поступила в редакцию 15 марта 2023 г.

После переработки 15 марта 2023 г.

Принята к публикации 16 марта 2023 г.

Рассмотрено электростатическое взаимодействие наночастиц, обусловленное перекрытием двойных электрических слоев, и взаимодействие Ван-дер-Ваальса, вызванное квантовыми и термодинамическими флуктуациями электромагнитных полей. Электростатическое взаимодействие рассмотрено на основе линеаризованного уравнения Пуассона–Больцмана для частиц с фиксированным электрическим потенциалом их поверхности. Получено точное решение задачи как для одинаковых частиц, так и для частиц сильно отличающихся размеров. Для взаимодействия Ван-дер-Ваальса учтено экранирование статических флуктуаций и запаздывание электромагнитных полей для дисперсионной части взаимодействия. Рассчитана полная энергия взаимодействия двух частиц для диапазона возможных концентраций ионов в электролите от 10^{-2} до 10^{-6} моль/л и размеров наночастиц от 1 до 10^3 нм. Обнаружено преобладание силы Ван-дер-Ваальса над силой экранированного электростатического отталкивания при высоких концентрациях электролита в диапазоне от 10^{-2} до 10^{-3} моль/л как при малых, так и при больших межчастичных расстояниях.

DOI: 10.31857/S1234567823080074, EDN: wfdptc

1. Введение. Силы взаимодействия между заряженными поверхностями, коллоидными частицами, ионами и органическими молекулами, растворенными в водном электролите, играют важную роль в коллоидной физике [1], биофизике [2], в процессах электро- и фото-катализа [3], в геохимии окружающей среды [4]. Эти силы определяют стабильность, динамику, самосборку [5–7], адсорбцию ионов [8], трение [9], адгезию [10], и многие другие свойства коллоидных систем. При не слишком высоких концентрациях соли, эти силы хорошо описываются классической теорией коллоидной физики [11, 12], а именно потенциалом Дерягина–Ландау–Фервея–Овербека (потенциал DLVO – Derjaguin–Landau–Vervey–Overbeek), которая включает в себя силы двойного электрического слоя с характерной областью действия, задаваемой длиной дебаевского экранирования и ван-дер-ваальсовское взаимодействие. На малых расстояниях также нужно учитывать короткодействующие силы, связанные с конеч-

ным размером молекул электролита, т.е. молекулярной структурой растворителя, которые называются силами гидратации в случае водных растворов.

Взаимодействие между наночастицами включает в себя ряд составляющих, все они еще находятся в состоянии активного исследования. Современное состояние в этой области описано в работе [13]. Для описания взаимодействия микро- и нано-частиц сегодня в основном используются приближенные подходы [13] при совместном вычислении сил электростатического и ван-дер-ваальсовского взаимодействия на основе приближения Дерягина [14]. В ряде работ электростатическое взаимодействие рассматривается более точно на основе точного решения линеаризованного уравнения Пуассона–Больцмана [15–21], в других развиты весьма точные методы расчета силы ван-дер-ваальсовского взаимодействия (см., например, [22]). Ниже представлено точное решение задачи электростатического взаимодействия между наночастицами на основе линеаризованного уравнения Пуассона–Больцмана, которое дополнено описанием методики расчета силы взаимодействия Лондона–

¹⁾e-mail: fav@triniti.ru

Ван-дер-Ваальса. На основе развитых подходов рассчитана полная энергия взаимодействия наночастиц для диапазона концентраций ионов в электролите от 10^{-2} до 10^{-6} моль/л и размеров наночастиц от 1 до 10^3 нм. В настоящей работе не рассматриваются силы взаимодействия, связанные с конечным размером молекул электролита, современное описание которых можно найти в работах [23–25].

2. Экранированное электростатическое взаимодействие. Геометрия задачи о взаимодействии частиц в плазме с учетом эффектов экранирования приведена на рис. 1. Как и в работах [17–20], электростатическое взаимодействие в электролите будем рассматривать в рамках линейризованной модели Пуассона–Больцмана:

$$\Delta\phi = k_D^2\phi, \tag{1}$$

где ϕ – самосогласованный потенциал электрического поля, k_D – дебаевская постоянная экранирования:

$$k_D^2 = \frac{4\pi e^2}{\varepsilon T} (n_p z_p^2 + n_n z_n^2), \tag{2}$$

e – заряд протона, ε – диэлектрическая проницаемость электролита, n_p , z_p , n_n , z_n – концентрация и зарядовое число положительных (катионов) и отрицательных ионов (анионов) соответственно, T – температура в энергетических единицах.

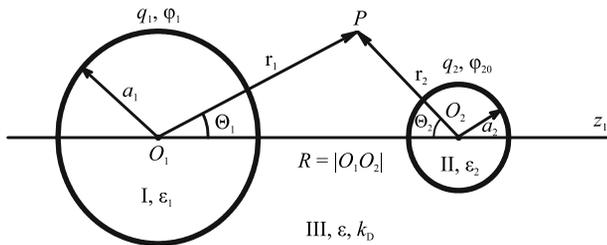


Рис. 1. Геометрия задачи о взаимодействии частиц в плазме с учетом эффектов экранирования. Здесь q_i , ϕ_{i0} , a_i , ε_i – заряд, потенциал поверхности, радиус и диэлектрическая проницаемость i -й частицы, соответственно, $i = 1, 2$, \mathbf{r}_i – радиус-вектор точки наблюдения P , проведенный из центра i -й частицы O_i , θ_i – зенитный угол в сферической системе координат с полюсом в центре i -й частицы и осью, направленной к центру другой частицы, R – межчастичное расстояние, ε – диэлектрическая проницаемость электролита, k_D – обратная длина экранирования (постоянная экранирования) плазмы (электролита)

Общее решение уравнения Гельмгольца (1) для потенциала системы зарядов, связанных с k -й частицей в сферической системе координат с полюсом в

центре этой частицы в рамках линейризованной теории Дебая–Гюккеля определяется выражением:

$$\phi_k = \sum_{n=0}^{\infty} A_{k,n} k_n (k_D r_k) P_n(\cos\theta_k), \tag{3}$$

где $A_{k,n}$ – коэффициенты разложения, k_n – модифицированные сферические функции Бесселя 3-го рода:

$$k_n(x) = \sqrt{\frac{\pi}{2x}} K_{n+1/2}(x), \tag{4}$$

$K_{n+1/2}$ – модифицированные функции Бесселя 3-го рода (функции Макдональда) [26]. Для нахождения коэффициентов $A_{k,n}$ из граничных условий нужно найти коэффициенты переразложения потенциала i -й частицы, записанного через полиномы Лежандра с полюсом в центре этой частицы, по полиномам Лежандра с полюсом в центре другой k -й макрочастицы, для чего воспользуемся формулой сложения [27, 15]:

$$k_n(\tilde{r}_i) P_n(\cos\theta_i) = \sum_{m=0}^{\infty} (2m+1) L_{nm}(\tilde{R}) i_m(\tilde{r}_k) P_m(\cos\theta_k), \tag{5}$$

где $\tilde{r}_i = k_D r_i$, $\tilde{r}_k = k_D r_k$, $\tilde{R} = k_D R$, R – расстояние между центрами макрочастиц, $i = 1, 2$, $k = 3 - i$, $i_n(x)$ – модифицированные сферические функции Бесселя 1-го рода:

$$i_n(x) = \sqrt{\frac{\pi}{2x}} I_{n+1/2}(x), \tag{6}$$

$I_{n+1/2}$ – модифицированные функции Бесселя 1-го рода (функции Инфельда) [26], зависящие от R коэффициенты L_{nm} определены суммой

$$L_{nm}(\tilde{R}) = \sum_{\ell=0}^{\min\{n,m\}} k_{n+m-2\ell}(\tilde{R}) G_{nm}^{\ell}, \tag{7}$$

$$G_{nm}^{\ell} = \frac{(n+m-\ell)!(n+m-2\ell+1/2)}{\ell!(n-\ell)!(m-\ell)!} \times \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma(n-\ell+1/2)\Gamma(m-\ell+1/2)\Gamma(\ell+1/2)}{\Gamma(m+n-\ell+3/2)}, \tag{8}$$

где $\Gamma(x)$ – гамма-функция. Отметим, что $G_{nm}^{\ell} = G_{mn}^{\ell}$ и, следовательно, $L_{nm} = L_{mn}$.

Окончательно, для потенциала i -й частицы получим выражение через полиномы Лежандра с полюсом в центре k -й макрочастицы:

$$\phi_i(\tilde{r}_k, \theta_k) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} A_{i,m} b_{nm}(\tilde{r}_k, \tilde{R}) P_n(\cos\theta_k), \tag{9}$$

где коэффициенты b_{nm} определяются выражением:

$$b_{nm}(\tilde{r}_k, \tilde{R}) = (2n+1) i_n(\tilde{r}_k) L_{mn}(\tilde{R}). \quad (10)$$

В работах [17, 18, 19, 20] коэффициенты b_{nm} определялись в виде двойных сумм от произведений модифицированных функций Бесселя 1-го и 3-го родов, а выражение (10) содержит только одинарное суммирование при вычислении L_{mn} . Численные расчеты показали, что коэффициенты b_{nm} , вычисленные по (10) и формулам, приведенным в [17–20], совпадают в пределах ошибок вычислений с двойной точностью на компьютере.

В плазме или электролите во многих случаях потенциал поверхности макрочастиц оказывается постоянным $\phi_{i,0}$ и совпадающим с плавающим потенциалом плазмы (более подробно см. в работе [20]). Поэтому в настоящей работе, в которой исследуются электролиты с достаточной высокой концентрацией ионов, будет рассмотрен только этот случай.

2.1. *Случай постоянных потенциалов наночастиц.* В этом случае из выражения (9) и из граничного условия непрерывности потенциала на границе раздела диэлектрических сред [28] находим ($n = 0, 1, \dots$):

$$\begin{aligned} k_n(\tilde{a}_1) A_{1,n} + \sum_{m=0}^{\infty} b_{nm}(\tilde{a}_1, \tilde{R}) A_{2,m} &= \phi_{10} \delta_{n0}, \\ k_n(\tilde{a}_2) A_{2,n} + \sum_{m=0}^{\infty} b_{nm}(\tilde{a}_2, \tilde{R}) A_{1,m} &= \phi_{20} \delta_{n0}. \end{aligned} \quad (11)$$

При $R \rightarrow \infty$ влияние частиц друг на друга сильно ослабнет, поэтому из (11) для $n = 0$ находим:

$$A_{i,0} = \frac{\phi_{i0}}{k_0(\tilde{a}_i)} = \frac{2}{\pi} \phi_{i0} \tilde{a}_i e^{\tilde{a}_i}, \quad i = 1, 2. \quad (12)$$

В этом случае из граничного условия скачка нормальной составляющей вектора электрического смещения можно получить известные выражения для связи заряда уединенной частицы с потенциалом поверхности в плазме:

$$q_1 = \varepsilon a_1 \phi_{10} (1 + \tilde{a}_1), \quad q_2 = \varepsilon a_2 \phi_{20} (1 + \tilde{a}_2). \quad (13)$$

2.2. *Сила экранированного электростатического взаимодействия.* Для определения силы, действующей на 1-ю частицу, в случае постоянных потенциалов на основе максвеллова тензора натяжений находим выражение (более подробно см. [17, 18]; в рассматриваемой в настоящей работе постановке задачи отлична от нуля только z -составляющая силы):

$$F_z = \varepsilon \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n \Xi_{n-1} \Xi_n}{(2n-1)(2n+1)}, \quad (14)$$

где

$$\begin{aligned} \Xi_n &= A_{1,n} [nk_n(\tilde{a}_1) - \tilde{a}_1 k_{n+1}(\tilde{a}_1)] + \\ &+ \sum_{m=0}^{\infty} A_{2,m} \tilde{a}_1 \frac{\partial b_{nm}(\tilde{a}_1, \tilde{R})}{\partial \tilde{a}_1}. \end{aligned} \quad (15)$$

При $R \rightarrow \infty$, пренебрегая членами, содержащими $e^{-2\tilde{R}}$ и более высокие степени $e^{-\tilde{R}}$, из (11) находим:

$$\begin{aligned} A_{i,0} &\approx \frac{2}{\pi} \phi_{i0} \tilde{a}_i e^{\tilde{a}_i} - \frac{1}{k_0(\tilde{a}_i)} i_0(\tilde{a}_{3-i}) k_0(\tilde{R}) A_{3-i,0}, \\ A_{i,n} &\approx -\frac{1}{k_n(\tilde{a}_i)} A_{3-i,0} (2n+1) i_n(\tilde{r}_k) k_n(\tilde{R}). \end{aligned} \quad (16)$$

С этим решением из (15) находим:

$$\begin{aligned} \Xi_0 &= -\tilde{a}_1 \phi_{10} \frac{k_1(\tilde{a}_1)}{k_0(\tilde{a}_1)} + e^{-\tilde{R}} O(1) + \dots, \\ \Xi_1 &= 3\phi_{20} k_1(\tilde{R}) \frac{\tilde{a}_2 e^{\tilde{a}_2}}{\tilde{a}_1 k_1(\tilde{a}_1)} + e^{-2\tilde{R}} O(1) + \dots \end{aligned} \quad (17)$$

Теперь из (14) для силы, пренебрегая членами, содержащими $e^{-2\tilde{R}}$ и выше, получим:

$$F_{\text{DLVO}} = a_1 a_2 \phi_{10} \phi_{20} \frac{1 + \tilde{R}}{R^2} e^{-(\tilde{R} - \tilde{a}_1 - \tilde{a}_2)}. \quad (18)$$

После интегрирования это выражение приводит к известному потенциалу Дерягина–Ландау–Фервея–Овербика:

$$U_{\text{DLVO}} = \phi_{10} \phi_{20} \frac{a_1 a_2}{R} e^{-(\tilde{R} - \tilde{a}_1 - \tilde{a}_2)}. \quad (19)$$

В литературе предложен ряд приближенных выражений для потенциала взаимодействия частиц в электролите, среди которых отметим выражение, полученное в работе [29] для частиц равного радиуса $a_1 = a_2 = a$:

$$U_{\text{ML}} = \varepsilon a \phi_0^2 \frac{R-a}{R} \ln \left[1 + \frac{a}{R-a} e^{-(\tilde{R}-2\tilde{a})} \right]. \quad (20)$$

В работе [30] было предложено выражение для потенциала взаимодействия частиц в электролите и в случае частиц разного радиуса, но как показали численные расчеты, оно работает хорошо только при высоких концентрациях электролита и при не слишком сильно отличающихся радиусах частиц.

На рисунке 2 приведены зависимости приведенной силы от расстояния между поверхностями частиц радиусом $a_1 = a_2 = 100$ нм при различных значениях концентрации электролита от 10^{-2} до 10^{-6} моль/л. Видно, что с ростом концентрации

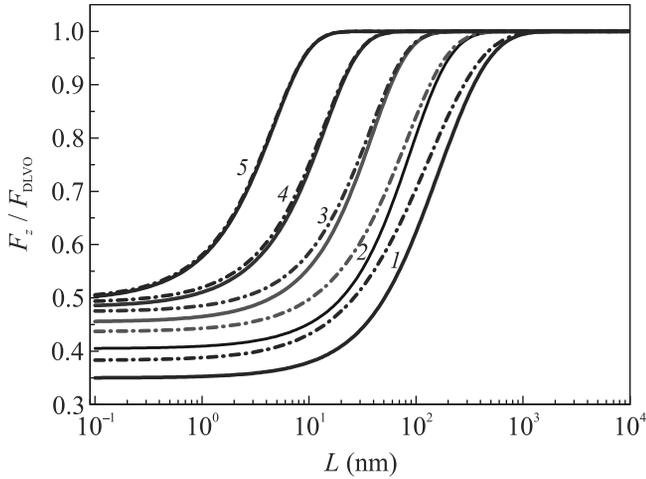


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость приведенной силы от расстояния между поверхностями частиц радиусом $a_1 = a_2 = 100$ нм при концентрации электролита 10^{-6} (1), 10^{-5} (2), 10^{-4} (3), 10^{-3} (4) и 10^{-2} моль/л (5). Сплошные кривые – результаты численного расчета, штрихпунктирные – дифференцирование выражения (20)

ионов и, соответственно, ростом постоянной экранирования, значения силы взаимодействия на малых расстояниях растут, а на больших расстояниях при $L \gg k_D^{-1}$ выходят на DLVO-зависимость (18). Из рисунка 2 также видно, что приближенное выражение (20) дает разумное согласие с точным решением только при высоких концентрациях электролита, а с уменьшением концентрации расхождения растут. Как видно из рис. 2, с ростом концентрации электролита сила взаимодействия выходит на зависимость (18) все на более малых расстояниях, при этом оказалось, что размер частиц слабо влияет на это расстояние.

3. Взаимодействие Ван-дер-Ваальса. Теория взаимодействия твердых тел за счет флуктуаций электрического поля начала развиваться с работы [31], в которой путем суммирования ван-дер-ваальсовского парного взаимодействия всех атомов, составляющих тела, было получено выражение для потенциала взаимодействия твердых тел. В работе [32] была построена более точная теория взаимодействия двух бесконечных плоских диэлектриков, разделенных вакуумом, а в работе [33] – разделенных жидкостью. Общая теория ван-дер-ваальсовского взаимодействия изложена во многих работах (см., например, работы [34, 35, 36]).

Сегодня ввиду сложности теории в общем случае, для определения постоянной Гамакера для взаимодействия 1-й диэлектрик – жидкость (вакуум) – 2-й диэлектрик используется выражение

$$A_{132} = \frac{3\hbar}{4\pi} \int_0^\infty \frac{(\varepsilon_1 - \varepsilon_3)(\varepsilon_2 - \varepsilon_3)}{(\varepsilon_1 + \varepsilon_3)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)} d\xi, \quad (21)$$

полученное в работе [33] и справедливое при пренебрежимо малых расстояниях между диэлектриками. Здесь $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$ – диэлектрические проницаемости тел и жидкости-прослойки, частотные зависимости которых берутся при мнимой частоте $i\xi$.

Потенциал ван-дер-ваальского взаимодействия в диэлектрической жидкости двух диэлектрических частиц сферической формы без учета эффектов запаздывания методом, близким к использованному в работе [32], был получен в работе [37] для случая $L \ll a_1, a_2$:

$$U_{vdW} = -\frac{2\pi a_1 a_2 L}{(a_1 + a_2)} \frac{A_{131}}{12\pi L^2}, \quad (22)$$

где A_{131} – постоянная Гамакера, определенная соотношением (21). В работе [37] получен и следующий член приближения, который требует расчета аналога постоянной Гамакера по отличной от (21) формуле. Ввиду неизвестности точности данного приближения эта формула в научной литературе практически не используется.

В настоящей работе потенциал взаимодействия Ван-дер-Ваальса определялся согласно работе [22] по формуле

$$U_{vdW} = -\frac{1}{12} (A_0 f_{sh} F_H + A_1 F_g), \quad (23)$$

где A_0 – вклад нулевых колебаний в постоянную Гамакера, который экранируется, но не испытывает эффектов запаздывания, A_1 – дисперсионный вклад в постоянную Гамакера, который запаздывает, но не экранируется, f_{sh} – экранирующий фактор, F_H – геометрический фактор Гамакера, F_g – геометрический фактор с учетом запаздывания флуктуирующего электромагнитного поля. Вклад нулевых колебаний и дисперсионный вклад в константу Гамакера вычислялись согласно работам [22, 38]:

$$A_0 = \frac{3}{4} k_B T \left[\frac{\varepsilon_1(0) - \varepsilon_2(0)}{\varepsilon_1(0) + \varepsilon_2(0)} \right]^2, \quad (24)$$

$$A_1 = \frac{3\hbar}{64} \frac{\sqrt{\omega_1 \omega_2}}{n_m^{7/2}} \times \frac{X^2 n_m^2 + 2X \Delta \varepsilon_0 n_m + \Delta \varepsilon_0^2 (3 + 2Y)}{(\sqrt{Y - \sqrt{Y^2 - 1}} + \sqrt{Y + \sqrt{Y^2 - 1}})^3}, \quad (25)$$

где \hbar – постоянная Планка, $\varepsilon_1(0)$ и $\varepsilon_2(0)$ – статические диэлектрические проницаемости сред 1 и 2, n_{01}

и n_{02} – коэффициенты преломления, ω_1 и ω_2 – частоты поглощения, величины n_m , $\Delta\epsilon_0$, X и Y определены соотношениями:

$$n_m^2 = \frac{1}{2} (n_{01}^2 + n_{02}^2), \quad \Delta\epsilon_0 = n_{01}^2 - n_{02}^2, \quad (26)$$

$$X = \frac{\omega_1}{\omega_2} (n_{01}^2 - 1) - \frac{\omega_2}{\omega_1} (n_{02}^2 - 1), \quad (27)$$

$$Y = \frac{1}{4\sqrt{n_m}} \left[\frac{\omega_1}{\omega_2} (n_{01}^2 + 1) + \frac{\omega_2}{\omega_1} (n_{02}^2 + 1) \right].$$

Полагалось, что $\omega_1 \approx \omega_{UV1}$, $\omega_2 \approx \omega_{UV2}$, где ω_{UV1} , ω_{UV2} – границы зон поглощения в ультрафиолетовой области материала наночастиц и жидкости, в которой наночастицы находятся. Для воды [22] при 20 °C $\epsilon_2(0) = 80.1$, $\omega_{UV2} = 1.899 \times 10^{16} \text{ c}^{-1}$, $n_{02}^2 = 1.755$, $\lambda_0 = 99.26 \text{ нм}$. Для наночастиц из полистирола при 20 °C $\epsilon_1(0) = 2.557$, $\epsilon_{UV1} = 1.432 \times 10^{16} \text{ c}^{-1}$, $n_{01}^2 = 2.447$. Экранирующий фактор в (23) определялся выражением [22]

$$f_{sc} = (1 + 2k_D L) \exp(-2k_D L). \quad (28)$$

Геометрический фактор Гамакера определяется выражением [31]:

$$F_H = \left[4a_1 a_2 \left(\frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_2} \right) + 2 \ln \frac{D_1}{D_2} \right], \quad (29)$$

где D_1 и D_2 – величины, определенные выражениями:

$$D_1 = (R - a_1 - a_2)(R + a_1 + a_2) = R^2 - (a_1 + a_2)^2,$$

$$D_2 = (R - a_1 + a_2)(R + a_1 - a_2) = R^2 - (a_1 - a_2)^2.$$

Геометрический фактор с учетом запаздывания в выражении (23) вычислялся согласно работам [39, 40].

В работе [22] предлагалось считать энергию взаимодействия Ван-дер-Ваальса по формуле

$$U_{vdW} = -\frac{A_{131}}{12} F_H, \quad A_{131} = (A_0 f_{sh} + A_1 F_{ret}) \quad (30)$$

с фактором запаздывания

$$F_{ret} = \left[1 + \left(\pi H / 4\sqrt{2} \right)^{3/2} \right]^{-2/3}, \quad (31)$$

где

$$H = n_{02} (n_{01}^2 - n_{02}^2)^{1/2} \frac{L}{c} \sqrt{\omega_1 \omega_2}, \quad (32)$$

c – скорость света в вакууме.

В расчетах потенциала взаимодействия по формуле (22) из работы [37] постоянная Гамакера в настоящей работе определялась соотношением $A_{131} = A_0 f_{sh} + A_1$. Необходимые для расчета постоянных

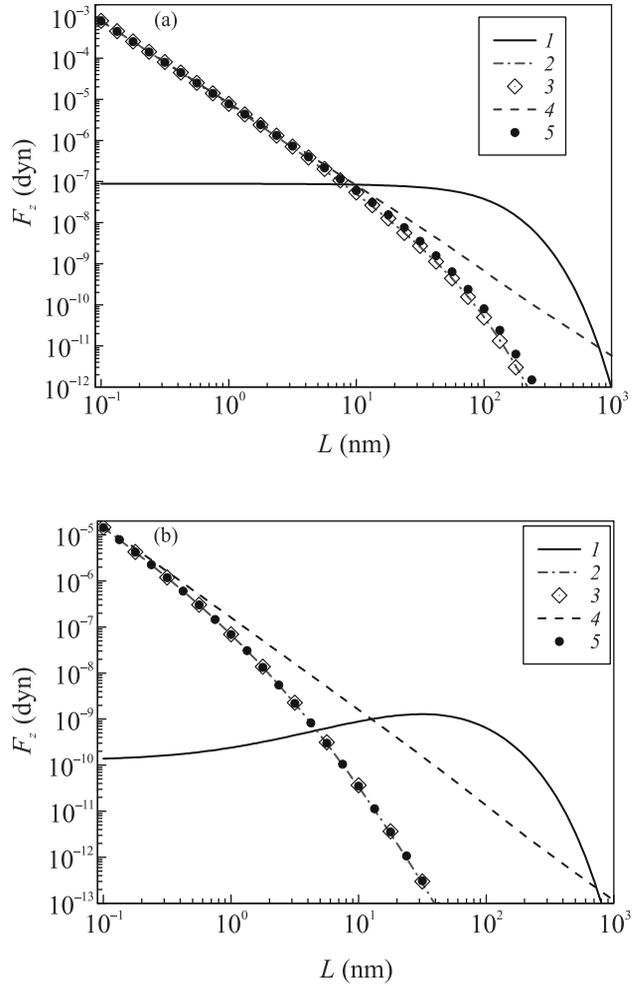


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости силы экранированного электростатического взаимодействия (1, знак изменен на противоположный) и взаимодействия Ван-дер-Ваальса от наименьшего расстояния между поверхностями частиц из полистирола в электролите при $\phi_{10} = \phi_{20} = 18 \text{ мВ}$, $n_p = n_n = 10^{-5} \text{ моль/л}$, $a_1 = a_2 = 100 \text{ нм}$ (а), $a_1 = 1 \text{ нм}$, $a_2 = 100 \text{ нм}$ (б): 2 – с геометрическим фактором из работы [40]; 3 – с геометрическим фактором из работы [39]; 4 – со свободной энергией из выражения (22); 5 – со свободной энергией из выражения (30)

Гамакера данные можно найти, например, в работах [41, 42].

4. Численные расчеты и обсуждение. На рисунке 3 проводится сравнение силы экранированного электростатического взаимодействия и силы Ван-дер-Ваальса, рассчитанных в разных приближениях. Видно, что сила Ван-дер-Ваальса на малых расстояниях оказывается на 4–5 порядков больше абсолютной величины силы электростатического взаимодействия. При концентрации электролита

10^{-5} моль/л на расстояниях $L \sim 10$ нм они сравниваются и далее превалирует электростатическое взаимодействие. При высокой концентрации электролита 10^{-2} моль/л преобладание электростатического взаимодействия начинается уже при $L \approx 2$ нм (см. рис. 4). Для частиц одинакового радиуса сила Ван-дер-Ваальса, как видно из рис. 4, снова начинает преобладать при $L > 20$ нм. Такое поведение связано с тем, что дисперсионная часть взаимодействия Ван-дер-Ваальса не экранируется и согласно работе [39] на больших расстояниях сила взаимодействия выходит на асимптотику

$$F_{vdW} \approx \frac{4A_1}{27} \frac{a_1^3 a_2^3}{R^8} \left[\left(7a' - \frac{8b'}{R} \right) \right], \quad (33)$$

где $a' = 2.45\lambda_0/2\pi$, $b' = 2.04(\lambda_0/2\pi)^2$. А электростатическое взаимодействие уже близко к значениям, даваемым DLVO зависимостью (18). Поэтому на больших расстояниях сила Ван-дер-Ваальса убывает как R^{-8} , а сила электростатического взаимодействия убывает экспоненциально. Поэтому на расстояниях $R < 1/k_D$ скорость убывания первой силы с ростом R заметно выше, чем второй и они в конце концов сравниваются. На расстояниях $R \gg 1/k_D$ сила Ван-дер-Ваальса опять начнет преобладать, что видно из рис. 4, но на рис. 3 из-за большого радиуса экранирования это произойдет вне нарисованной области, где силы уже становятся пренебрежимо малыми.

Сравнение различных методов вычисления силы Ван-дер-Ваальса, проведенное на рис. 3 и 4 показывает, что 1) геометрические факторы из работ [39] и [40] приводят к практически не отличающимся результатам; 2) учет запаздывания взаимодействия приводит к заметному уменьшению силы взаимодействия; 3) предложенная в работе [22] схема вычисления силы взаимодействия работает достаточно хорошо, но несколько завышает силу, что хорошо видно из рис. 4. В работе [40], в отличие от [39], предложено единое выражение для вычисления геометрического фактора для всех расстояний, поэтому далее мы будем использовать данные из этой работы.

На рисунке 5 приведены зависимости полной энергии взаимодействия при концентрации ионов 10^{-2} моль/л как суммы электростатического экранированного и ван-дер-ваальсовского потенциалов, которые рассчитаны на основе описанной выше методики. На вставках рис. 5 показано поведение потенциала взаимодействия вблизи потенциального барьера между первичной и вторичной потенциальными ямами. Потенциальный барьер и вторичная потенциальная яма (или ее отсутствие) наблюдаются на разном расстоянии (разные масштабы по оси

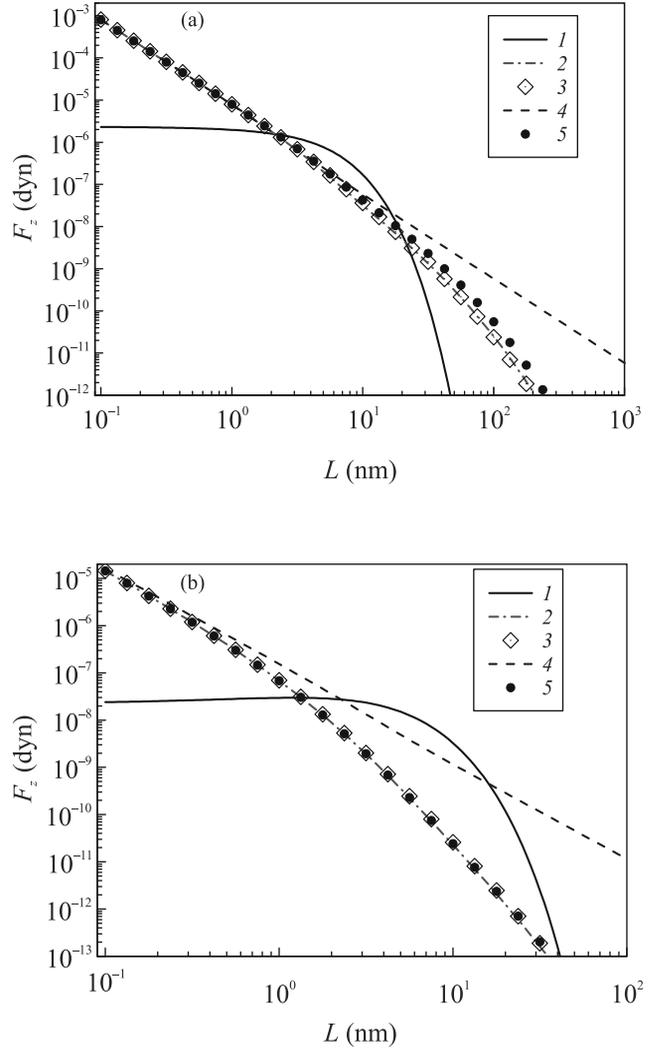


Рис. 4. (Цветной онлайн) Аналогичные приведенным на рис. 5 зависимости силы при $n_p = n_n = 10^{-2}$ моль/л. Остальные обозначения как на рис. 5

ординат). Согласно используемой модели глубина первичной потенциальной ямы бесконечна, следовательно коагуляция в первичной потенциальной яме будет всегда необратимой.

Важно отметить, что согласно рис. 5, во всех рассмотренных случаях потенциальный барьер между первичной и вторичной потенциальными ямами относительно высок, его высота уменьшается с ростом концентрации электролита (рис. 6) и сильно зависит от размеров частиц (рис. 5).

На расстоянии $L \approx 20$ нм на 2-й вставке на рис. 5 наблюдается минимум для всех рассмотренных размеров наночастиц. Следовательно, на расстояниях $L > 20$ нм между наночастицами будет действовать сила притяжения, что может привести к таким эффектам, как появление поверхностного натяжения и формирование слабосвязанных ван-дер-

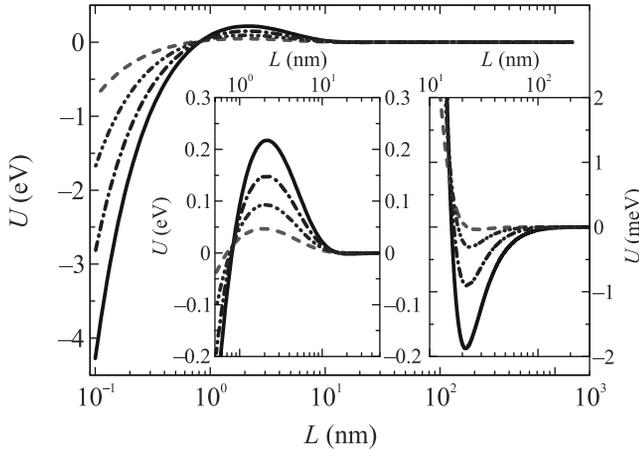


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости суммарного (электростатического и Ван-дер-Ваальсовского) потенциала взаимодействия при $\phi_{10} = \phi_{20} = 18$ мВ, $a_2 = 100$ нм, $n_p = n_n = 10^{-2}$ моль/л: — $a_1 = 100$ нм, - - - $a_1 = 50$ нм, - · - · - $a_1 = 25$ нм, - - - $a_1 = 10$ нм

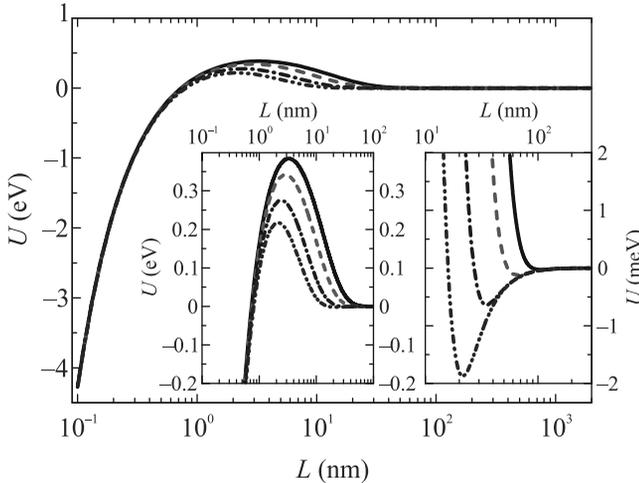


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимости суммарного (электростатического и Ван-дер-Ваальсовского) потенциала взаимодействия при $\phi_{10} = \phi_{20} = 18$ мВ, $a_1 = a_2 = 100$ нм: — $n_p = n_n = 10^{-3}$ моль/л, - - - 2×10^{-3} моль/л, - · - · - 5×10^{-3} моль/л, - · - · - 10^{-2} моль/л

ваальсовских комплексов из наночастиц. Глубина этой ямы уменьшается по мере уменьшения концентрации электролита и при $n_p = n_n < 10^{-3}$ моль/л полностью исчезает. При этом потенциал взаимодействия монотонно сходится к DLVO потенциалу (19). Следовательно, между наночастицами на больших расстояниях при малых концентрациях электролита имеет место только отталкивание.

При $n_p = n_n = 10^{-2}$ моль/л дебаевский радиус составляет 3.1 нм, поэтому на расстояниях, где наблюдается потенциальная яма на рис. 5 и 6, потенциал

ная энергия ионов много меньше тепловой энергии, поэтому линейаризация распределений Больцмана в уравнении Пуассона (1) физически обоснована. Также при $L \ll \lambda_0$ (для водных растворов $\lambda_0 \approx 99.26$ нм) эффекты запаздывания малы и практически все используемые приближения на расстояниях $L \sim 20$ нм приводят к одинаковым значениям силы Ван-дер-Ваальса (см. рис. 3 и 4). Поэтому мы можем сделать вывод, что наблюдаемая яма в суммарном потенциале при концентрации электролита от 10^{-2} до 10^{-3} моль/л не лишена физического смысла.

5. Заключение. Рассмотрено взаимодействие между наночастицами, включающее только две составляющие: электростатическое отталкивание и притяжение Ван-дер-Ваальса. Электростатическое отталкивание рассчитывается на основе линейаризованного уравнения Пуассона–Больцмана для частицы с фиксированным электрическим потенциалом границ раздела (постоянные дзета-потенциалы). Получено точное решение задачи как для одинаковых частиц, так и для частиц разного размера. Для взаимодействия Ван-дер-Ваальса проведено сравнение хорошо известных в литературе моделей. Суммарная энергия взаимодействия двух частиц рассчитывалась для диапазона возможных размеров от 1 до 10^3 нм и концентраций ионов от 10^{-2} до 10^{-6} моль/л. Показано, что для всех размеров наночастиц высота потенциального барьера между первичным и вторичным минимумами относительно велика (при комнатной температуре порядка $10k_B T$, k_B – постоянная Больцмана). Высота уменьшается с концентрацией электролита и сильно зависит от соотношения размеров наночастиц в паре. При концентрации электролита от 10^{-2} до 10^{-3} моль/л обнаружено образование потенциальной ямы на расстояниях порядка $L \sim 20$ нм. Это указывает на то, что на расстояниях $L > 20$ нм между наночастицами будет действовать сила притяжения вследствие превышения силы Ван-дер-Ваальса над силой экранированного электростатического отталкивания, что может привести к таким эффектам, как поверхностное натяжение и формирование слабосвязанных ван-дер-ваальсовских комплексов из наночастиц.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект # 22-22-01000, А. В. Филиппов), проектов NanoPaInt Marie Curie, ЕС и MAP EVAPORATION, Европейское космическое агентство (В. М. Старов).

1. J. N. Israelachvili, *Intermolecular and surface forces*, 3rd ed., Elsevier, Amsterdam (2011), p.191.

2. B. Honig and A. Nicholls, *Science* **268**(5214), 1144 (1995).
3. I. Ledezma-Yanez, W.D.Z. Wallace, P. Sebastián-Pascual, V. Climent, J.M. Feliu, and M.T. Koper, *Nat. Energy* **2**(4), 17031 (2017).
4. B. Smit, J.A. Reimer, C.M. Oldenburg, and I.C. Bourg, *Introduction to carbon capture and sequestration*, World Scientific, Singapore (2014), v. 1.
5. M. Manciu and E. Ruckenstein, *Langmuir* **17**(22), 7061 (2001).
6. H. Wennerstrom, E. Vallina Estrada, J. Danielsson, and M. Oliveberg, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **117**(19), 10113 (2020).
7. S. Su, I. Siretanu, D. van den Ende, B. Mei, G. Mul, and F. Mugele, *Adv. Mater.* **33**, 2106229 (2021).
8. D.F. Parsons, M. Boström, P.L. Nostro, and B.W. Ninham, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**(27), 12352 (2011).
9. J. Klein, *Friction* **1**(1), 1 (2013).
10. K. Voitchovsky, J.J. Kuna, S.A. Contera, E. Tosatti, and F. Stellacci, *Nat. Nanotechnol.* **5**(6), 401 (2010).
11. J.N. Israelachvili, *Intermolecular and surface forces*, Academic Press, Amsterdam (2015).
12. Y. Liang, N. Hilal, P. Langston, and V. Starov, *Adv. Colloid Interface Sci.* **134–135**, 151 (2007).
13. N.M. Kovalchuk, D. Johnson, V. Sobolev, N. Hilal, and V. Starov, *Adv. Colloid Interface Sci.* **272**, 102020 (2019).
14. B.V. Derjaguin, N.V. Churaev, and V.M. Muller, *Surface Forces*, Consultants Bureau, N.Y. (1987).
15. A.B. Glendinning and W.B. Russel, *J. Colloid Interface Sci.* **93**(1), 95 (1983).
16. S.L. Carnie and D.Y.C. Chan, *J. Colloid Interface Sci.* **161**, 260 (1993).
17. А.В. Филиппов, И.Н. Дербенев, *ЖЭТФ* **150**, 1262 (2016).
18. I.N. Derbenev, A.V. Filippov, A.J. Stace, and E. Besley, *J. Chem. Phys.* **145**, 084103 (2016).
19. А.В. Филиппов, И.Н. Дербенев, А.А. Паутов, М.М. Родин, *ЖЭТФ* **152**, 607 (2017).
20. I.N. Derbenev, A.V. Filippov, A.J. Stace, and E. Besley, *Soft Matter* **14**, 5480 (2018).
21. S.V. Siryk, A. Bendandi, A. Diaspro, and W. Rocchia, *J. Chem. Phys.* **155**, 114114 (2021).
22. W.R. Bowen and F. Jenner, *Adv. Colloid Interface Sci.* **56**, 201 (1995).
23. J.I. Kilpatrick, S.-H. Loh, and S.P. Jarvis, *J. Am. Chem. Soc.* **135**(7), 2628 (2013).
24. S.R. van Lin, K.K. Grotz, I. Siretanu, N. Schwierz, and F. Mugele, *Langmuir* **35**(17), 5737 (2019).
25. A. Klaassen, F. Liu, F. Mugele, and I. Siretanu, *Langmuir* **38**(3), 914 (2022).
26. Г.Н. Ватсон, *Теория бесселевых функций*, Иностранная литература, М. (1949), т.1 [G.N. Watson, *A treatise on the theory of Bessel functions*, Cambridge University Press, London (1922)].
27. D. Langbein, *Theory of Van der Waals Attraction*, *Springer Tracts in Modern Physics*, ed. by G. Hohler, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, N.Y. (1974), v. 72.
28. В.В. Батыгин, И.Н. Топтыгин, *Сборник задач по электродинамике*, Наука, М. (1970).
29. L.N. McCartney and S. Levine, *J. Colloid Interface Sci.* **30**(3), 345 (1969).
30. G.M. Bell, S. Levine, and L.N. McCartney, *J. Colloid Interface Sci.* **33**(3), 335 (1970).
31. Н.С. Намакер, *Physica* **4**(10), 1058 (1937).
32. Е.М. Лифшиц, *ЖЭТФ* **29**, 94 (1955).
33. И.Е. Дзялошинский, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский, *ЖЭТФ* **37**, 229 (1959).
34. Б.В. Дерягин, И.И. Абрикосова, Е.М. Лифшиц, *УФН* **185**, 981 (2015).
35. Ю.С. Бараш, В.Л. Гинзбург, *УФН* **143**, 345 (1984).
36. Н.В. Чураев, *Успехи химии* **73**, 26 (2004).
37. D.J. Mitchell and B.W. Ninham, *J. Chem. Phys.* **56**, 1117 (1972).
38. R.G. Horn and J.N. Israelachvili, *J. Chem. Phys.* **75**(3), 1400 (1981).
39. B. Vincent, *J. Colloid. Interf. Sci.* **42**, 270 (1973).
40. J. Chen and A. Anandarajah, *J. Colloid Interface Sci.* **180**(2), 519 (1996).
41. L. Bergström, *Adv. Colloid Interface Sci.* **70**, 125 (1997).
42. V.A. Parsegian and G.H. Weiss, *J. Colloid. Interf. Sci.* **81**(1), 285 (1981).

Magnetic anisotropy of single-ion magnet (PPh₄)₂[ReF₆] · 2H₂O

L. S. Taran⁺¹⁾, V. Y. Elfimova*, S. V. Streltsov^{+*}

⁺M. N. Mikheev Institute of Metal Physics of Ural Branch of Russian Academy of Sciences, 620137 Yekaterinburg, Russia

*Institute of Physics and Technology, Ural Federal University, 620002 Yekaterinburg, Russia

Submitted 7 March 2023
Resubmitted 18 March 2023
Accepted 18 March 2023

DOI: 10.31857/S1234567823080086, EDN: wfexqu

In the present work we studied the magnetocrystalline anisotropy of two related single-molecule magnets [1] with a single rhenium ion in irregular tilted octahedra (PPh₄)₂[ReF₆]·2H₂O, (**1**), (PPh₄ stands for tetraphenylphosphonium, (C₆H₅)₄P), and [Zn(viz)₄(ReF₆)], (**2**), (viz = 1-vinylimidazole) [2].

All density functional theory (DFT) calculations were performed using the VASP code [3–6] with projector-augmented wave method (PAW) [7], employing Perdew–Burke–Ernzerhof (PBE) version of the generalized gradient approximation (GGA) exchange–correlation functional [8] and taking into account strong Coulomb correlations *via* rotationally invariant DFT + *U* approach after Dudarev et al. [9].

In order to estimate single-ion anisotropy (SIA) we performed total energy calculations with spin-orbit coupling (GGA + *U* + SOC) for different spin directions and mapped these results onto the model, where the SIA is described by the following Hamiltonian:

$$\hat{H}_{\text{SIA}} = D \cdot \hat{S}_z^2. \quad (1)$$

The obtained results have shown the easy-plane anisotropy for these 5*d*³ systems with large single-ion anisotropy parameters *D* equal to 11.7 K for (**1**) and 16.8 K for (**2**). Magnetic moments for both complexes are less than expected 3*μ_B*. It can be explained by the covalency effects and substantial spin-orbit coupling. Due to irregular tilted [ReF₆]²⁻ octahedra, there is a strong *t*_{2*g*} – *e_g* crystal-field splitting of the order of 3.5 eV. Since symmetry of the crystal-field is lower than cubic, *t*_{2*g*} levels get an additional splitting onto nearly degenerate *xz* and *yz* orbitals, that are lower in energy than *xy* orbital (see Fig. 1). The spin-orbit coupling mixes the ground state singlet Γ₂ with orbital triplet Γ₅, lying on 10*Dq* higher (*t*_{2*g*} – *e_g* crystal field splitting parameter in spectroscopy) [10]. This triplet is split by the non-cubic crystal-field onto a doublet, characterized by

fictitious orbital moment $\tilde{l}_z = \pm 1$ and having energy Δ₁, and a singlet with $\tilde{l}_z = 0$ and Δ₀.

In the second order of the perturbation theory one can take into account the mixing of these Γ₅ states with the ground state (Γ₂) due to the spin-orbit coupling. This admixture splits the ground state into two spin doublets and the value of this splitting is proportional to the spin-orbit coupling constant λ [10]:

$$2D = -\frac{8\lambda^2}{\Delta_0} + \frac{8\lambda^2}{\Delta_1}. \quad (2)$$

Using estimation of λ = 320 meV for Re⁴⁺ [11] and the crystal-field splittings shown in Fig. 1 for (PPh₄)₂[ReF₆]·2H₂O, one can see that such a consideration gives a reasonable estimation of *D* = 14.6 K. This agrees with the obtained single-ion anisotropy parameters *D* presented above.

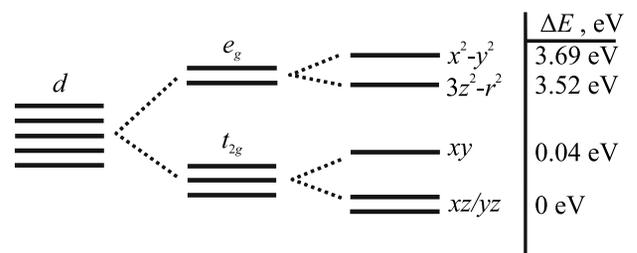


Fig. 1. Results of the Wannier function projection of the non-magnetic DFT Hamiltonian for (**1**). We used the local coordinate system where axes are directed as much as possible to the ligand to calculate on-site energies of different Re 5*d* orbitals

This is an excerpt of the article “Magnetic anisotropy of single-ion magnet (PPh₄)₂[ReF₆] · 2H₂O”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023600623

¹⁾e-mail: taran@imp.uran.ru

1. V. V. Novikov and Yu. V. Nelyubina, Russ. Chem. Rev. **90**, 1330 (2021); 10.1070/RCR5002.
2. K. S. Pedersen, M. Sigrist, M. A. Sørensen, A.-L. Barra, T. Weyhermüller, S. Piligkos, C. Aa. Thuesen, M. G. Vinum, H. Mutka, H. Weihe, R. Clérac, and J. Bendix, *Angewandte Chemie International Edition* **53**, 1351 (2014); 10.1002/anie.201309981.
3. G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B **47**, 558 (1993); 10.1103/PhysRevB.47.558.
4. G. Kresse and J. Furthmüller, *Comput. Mater. Sci.* **6**, 15 (1996); 10.1016/0927-0256(96)00008-0.
5. G. Kresse and J. Furthmüller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996); 10.1103/PhysRevB.54.11169.
6. K. Lejaeghere, G. Bihlmayer, T. Björkman et al. (Collaboration), *Science* **351**, aad3000 (2016); 10.1126/science.aad3000.
7. G. Kresse and D. Joubert, Phys. Rev. B **59**, 1758 (1999); 10.1103/PhysRevB.59.1758.
8. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. **78**, 1396 (1997); 10.1103/PhysRevLett.78.1396.
9. S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys, and A. P. Sutton, Phys. Rev. B **57**, 1505 (1998); 10.1103/PhysRevB.57.1505.
10. A. Abragam and B. Bleaney, *Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions*, Clarendon press, Oxford (1970).
11. M. Vijayakumar and M. S. Gopinathan, *Journal of Molecular Structure (Theochem)* **361**, 15 (1996).

Спектроскопия эффекта многократных андреевских отражений в монокристаллах $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ недодопированного состава

С. А. Кузьмичев^{*+}, И. В. Морозов[×], А. И. Шилов⁺, Е. О. Рахманов^{×+}, Т. Е. Кузьмичева⁺¹

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

^{*} Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

[×] Химический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 марта 2023 г.

После переработки 18 марта 2023 г.

Принята к публикации 20 марта 2023 г.

В работе определена структура сверхпроводящего параметра порядка пниктидов $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ семейства 111 недодопированных составов с $T_c \approx 19\text{--}21$ К. С помощью спектроскопии эффекта некогерентных многократных андреевских отражений, реализованной в планарных контактах на микротрещине, напрямую определены величины двух микроскопических сверхпроводящих параметров порядка: малой сверхпроводящей щели $\Delta_S(0)$ и, предположительно, экстремумов большой щели $\Delta_L(0)$ с анизотропией в ab -плоскости при $T \ll T_c$, соответствующие им характеристические отношения теории Бардина–Купера–Шриффера (БКШ), а также их температурные зависимости. В $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ обнаружены особенности туннельных $dI(V)/dV$ -спектров при $eV^* > 2\Delta_L(0)$, не связанные со сверхпроводящим состоянием; обсуждается их происхождение.

DOI: 10.31857/S1234567823080098, EDN: wgajfi

1. Введение. Семейство 111 сверхпроводящих (СП) пниктидов на основе щелочных металлов, типичными представителями которого являются LiFeAs и NaFeAs , до сих пор привлекает внимание теоретиков и экспериментаторов набором уникальных свойств, нехарактерных для остальных железосодержащих СП (в качестве обзора см. [1]). NaFeAs является сверхпроводником даже в стехиометрическом составе; при частичном замещении Fe переходным металлом [1] критическая температура достигает максимума $T_c \approx 22$ К одновременно с подавлением антиферромагнетизма и нематичности. На поверхности Ферми обнаружены дырочные цилиндры вблизи Г-точки зоны Бриллюэна и электронные цилиндры около М-точки [2], на которых ниже T_c возникают несколько СП конденсатов.

Крайне малое на данный момент количество экспериментальных данных по NaFeAs обусловлено сложностью работы с этим соединением: из-за быстрой (в течение нескольких минут) деградации их СП свойств в присутствии даже следовых количеств H_2O и O_2 , подготовку образцов и эксперимент необходимо проводить в защитной атмосфере. Величины СП щелей в $\text{Na}(\text{Fe},\text{Co})\text{As}$ были исследованы поверхностными (фотоэмиссионная спектроскопия с угловым раз-

решением (ARPES), сканирующая туннельная спектроскопия) и объемными методами (измерения теплоемкости): обнаружена двухщелевая СП с диапазоном характеристических отношений $2\Delta(0)/k_B T_c \approx 5\text{--}9$ и $2.5\text{--}4.5$ для большой и малой СП щелей, соответственно (см. рис. 6 в обзоре [1]). Интересно отметить, что в $\text{Na}(\text{Fe},\text{Co})\text{As}$ недодопированного состава с помощью ARPES была обнаружена заметная анизотропия большой СП щели в k -пространстве [3], ненаблюдаемая теми же исследователями в кристаллах передопированного состава с близкой $T_c \approx 18$ К, что может быть следствием влияния магнитной фазы на СП свойства.

Значительный разброс характеристических отношений СП щелей, имеющийся в литературе на данный момент, очевидно, вызван отсутствием прямых исследований щелевой структуры NaFeAs . В работе с помощью спектроскопии эффекта некогерентных многократных андреевских отражений, реализованной на планарных наноконтактах на микротрещине, локально и напрямую определены энергетические СП параметры порядка, их характеристические отношения и температурные зависимости. Высказано предположение о реализации анизотропии большой СП щели без точек нулей в k -пространстве. Впервые обнаружены особенности туннельных $dI(V)/dV$ -спектров, не связанные напрямую со СП свойствами.

¹)e-mail: kuzmichevate@lebedev.ru

2. Детали эксперимента. Монокристаллы номинального состава $\text{NaFe}_{0.979}\text{Co}_{0.021}\text{As}$ были получены кристаллизацией из расплава. Получение прекурсора (NaAs) и подготовка реакционной смеси, отбор полученных кристаллов, подготовка и монтаж образцов для изучения физических свойств проводились в перчаточном боксе в атмосфере аргона с концентрацией кислорода и паров воды менее 0.1 ppm. Для получения NaAs стехиометрическое количество мышьяка постепенно добавляли к расплавленному в агатовой ступке натрию. Далее в алундовый тигель к 2.018 г приготовленного NaAs добавляли 1.127 г Fe и 0.058 г CoAs. Алундовый тигель с реакционной смесью заваривали в герметичный ниобиевый контейнер для исключения потери щелочного металла, а металлический контейнер запаивали в вакуумированную кварцевую ампулу. Полученную сборку помещали в муфельную печь, нагревали до температуры 1050 °C со скоростью 100 °C/ч и выдерживали в течение суток. Затем печь охлаждали до температуры 400 °C со скоростью 3 °C/ч, выдерживали в течение суток при данной температуре, а затем отключали. Полученные кристаллы при помощи цифрового микроскопа Levenhuk DTX 700 отделяли от остатков флюса механически, а затем нарезали скальпелем на прямоугольные пластинки с линейными размерами 1.5–2.5 мм. Количественный и качественный состав полученного образца был подтвержден методом локального рентгеноспектрального микроанализа, а также рентгеновской дифракции. Критическая температура объемных монокристаллов $T_c \approx 21$ K была определена с помощью резистивных (рис. 1) и магнитных измерений. Выше T_c сопротивление объемного монокристалла $\text{NaFe}_{0.979}\text{Co}_{0.021}\text{As}$ уменьшается с ростом температуры, достигает минимума при температуре $T_s \approx 35$ K структурного перехода, а при более высоких температурах $R(T)$ демонстрирует монотонный рост.

Для создания планарных механически регулируемых наноконтактов сверхпроводник–барьер–сверхпроводник (ScS) с направлением протекания тока вдоль оси c использовалась техника “break-junction” [4]. Геометрия и детали эксперимента с образцами слоистых соединений, преимущества и недостатки метода подробно описаны в обзоре [5], физическая модель получаемого контакта схематически приведена на рис. 1 в [6].

Выше T_c ток через NcN-контакт (N – объемный нормальный металл), согласно классическому подходу [7], определяется распределением металлической плотности электронных состояний $N(E)$ вблизи уровня Ферми E_F : $I \propto \int_{-\infty}^{\infty} N(\varepsilon - eV)N(\varepsilon)[f_0(\varepsilon -$

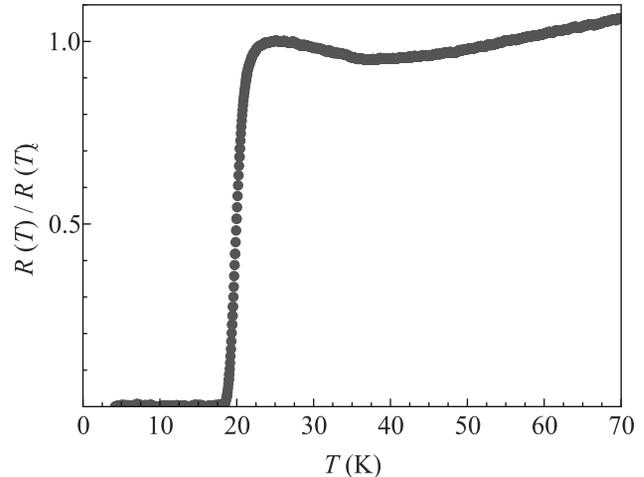


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурная зависимость сопротивления объемного монокристалла номинально недодопированного состава $\text{NaFe}_{0.979}\text{Co}_{0.021}\text{As}$

$eV) - f_0(\varepsilon)] d\varepsilon$, где f_0 – равновесная функция Ферми–Дирака.

В СП состоянии в SnS-контакте (n – тонкий нормальный металл) с NS-границами высокой прозрачности (сила туннельного барьера $Z \lesssim 0.3$) реализуется эффект многократных андреевских отражений (MAO). Некогерентный андреевский транспорт вызывает на вольтамперной характеристике (ВАХ) SnS-контакта избыточный ток (относительно нормальной ВАХ выше T_c) во всем диапазоне смещений eV , при этом сверхтоковая ветвь отсутствует [8, 9]. На спектре при $eV \rightarrow 0$ (так называемая область пьедестала) динамическая проводимость повышается в разы относительно проводимости G_N контакта в нормальном состоянии, также возникает серия минимумов субгармонической щелевой структуры (СГС), положение которых V_n напрямую определяется величиной сверхпроводящей щели Δ при любых температурах вплоть до T_c [8–10]: $|eV_n(T)| = 2\Delta(T)/n$, $n = 1, 2, \dots$ Для многощелевого сверхпроводника на $dI(V)/dV$ -спектре будут присутствовать СГС от каждой щели. Число n^* наблюдаемых минимумов СГС для планарного контакта примерно соответствует отношению размера контакта d_c и характерной длины неупругого рассеяния l_c в c -направлении [6, 9]: $n^* \approx l_c/d_c$.

В планарном SnS-контакте в случае баллистического транспорта в ab -плоскости (если длина свободного пробега l_{ab}^{el} превышает d_{ab}) x - и y -компоненты импульса носителей заряда сохраняются, при этом может иметь место несохранение k_z -компоненты из-за “перемешивания” носителей вдоль направления тока в результате неупругого рассеяния.

Влияние углового распределения $\Delta(\theta)$ в $k_x k_y$ -плоскости на форму андреевских минимумов в рамках подхода [11] показано на рис. 4 в [5]. Гипотетически, если для изотропной СП щели на $dI(V)/dV$ ожидаются резкие интенсивные минимумы СГС, то СГС со значительно подавленной амплитудой должна наблюдаться в случае параметра порядка с точками нулей (“нодами”) в распределении $\Delta(\theta)$ (θ – угол в $k_x k_y$ -плоскости). Для СП щели с расширенной s -волновой симметрией в ab -плоскости без нодов ожидаются дублетные минимумы СГС, протяженность которых определяется максимальной Δ^{out} и минимальной Δ^{in} энергиями связи куперовских пар в k -пространстве. Степень анизотропии далее определена как $A \equiv 100\% \cdot [1 - \Delta^{\text{in}}/\Delta^{\text{out}}]$.

Таким образом, МАО-спектроскопия баллистических планарных SnS-контактов дает возможность напрямую определять величины и температурные зависимости СП параметров порядка и получать информацию об их возможной анизотропии в $k_x k_y$ -плоскости.

3. Экспериментальные данные и обсуждение. На рисунке 2 показано температурное изменение $dI(V)/dV$ спектра SnS-контакта на базе Na(Fe,Co)As. В нормальном состоянии выше $T_c^{\text{local}} \approx 19.7\text{ K}$ (T_c^{local} соответствует температуре перехода контактной области размером порядка десятков нм в нормальное состояние) спектр сильно нелинеен: наблюдается широкая область повышенной динамической проводимости при малых смещениях и минимумы при $eV^* \approx 22, 27\text{ мэВ}$. С увеличением температуры от самых низких вплоть до T_c из-за подавления процессов МАО величина проводимости G_{ZBC} при $eV \rightarrow 0$ уменьшается. Минимумы на eV^* слабо сдвигаются в сторону нулевого смещения. Для температур выше T_c (синяя, голубая и сиреневая кривые на рис. 2a) значение G_{ZBC} меняется слабо (красные кружки на рис. 2b).

Отметим, что для SnS-андреевского контакта с рис. 2 подобная форма спектра не может быть вызвана локальным перегревом контакта измерительным током, так как $G_N(eV \gg 2\Delta)$, приведенная на рис. 2 зелеными ромбами, практически не меняется во всем диапазоне T . В полученном андреевском контакте не должно выделяться тепло в принципе, так как он изначально находился в баллистическом режиме. Проверить это можно по неизменности значения G_{ZBC} , которое при $T > T_c$ меняется мало (см. красные кружки, рис. 2b) по сравнению с изменением объемной проводимости объемного кристалла (согласно $R(T)$ на рис. 1).

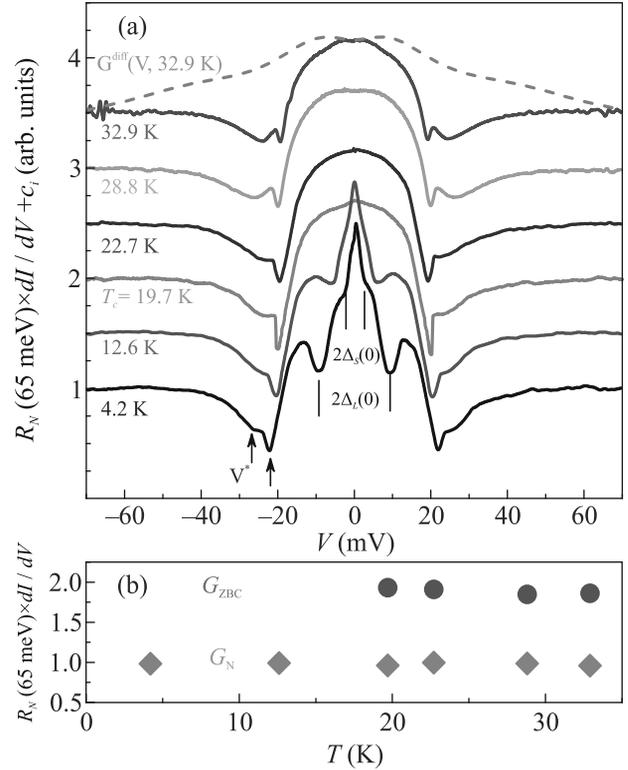


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – $dI(V)/dV$ -спектр SnS-контакта на базе Na(Fe,Co)As, измеренный ниже и выше $T_c \approx 19.7\text{ K}$. Спектры намеренно сдвинуты на постоянную величину $c = 0.5$ по вертикали для удобства. При 4.2 K вертикальными штрихами отмечено положение щелевых особенностей ($2\Delta_L(0)$, $2\Delta_S(0)$), стрелками показаны особенности нормальной проводимости контакта V^* . Штриховой линией показан теоретический спектр полностью диффузионного контакта $G^{\text{diff}}(V)$ при $T = 32.9\text{ K}$, рассчитанный на основе $R(T > T_c)$ с рис. 1 для сравнения с верхней фиолетовой кривой. (b) – Неизменность нормальной проводимости контакта $G_N(T, V \gg 2\Delta_{L,S})$ и проводимости в нуле $G_{\text{ZBC}}(T > T_c)$

Также отсутствие нагрева в полученном контакте высокой прозрачности может быть проверено из следующих соображений: при локальном перегреве контакта из-за присутствия диффузионного транспорта для смещений $eV \gg k_B T$ выполняется $T^{\text{local}} \approx \sqrt{VL}^{-1/2}/2$, где L – число Лоренца, и наблюдаемая G_N контакта будет искусственно зависеть от V . По экспериментальным данным $R(T)$ (см. рис. 1) подобная зависимость $G^{\text{diff}}(V, T = 32.9\text{ K})$ была нами построена и приведена в верхней части рис. 2a (штриховая линия). Несмотря на некоторую схожесть с экспериментальным спектром при той же температуре (фиолетовая кривая) в диапазоне малых смещений, дальнейший ход G^{diff} при $V > V^*$ для гипотетиче-

ского диффузионного контакта отличается от полученного в эксперименте.

Обнаруженные особенности $dI(V)/dV$ не связаны напрямую со СП состоянием, поскольку наблюдаются как выше, так и ниже T_c . Можно предложить несколько причин возникновения нелинейности $dI(V)/dV$ -спектров в металлическом состоянии:

а) нелинейность $N(E)$ вблизи E_F вследствие особенностей зонной структуры Na(Fe,Co)As (например, из-за близости перехода Лифшица или присутствия минищели). В этом случае максимум $dI(V)/dV$ при $eV \rightarrow 0$ соответствует пику N_E вблизи E_F ;

б) обратное рассеяние квазичастиц вследствие сильного электрон-фононного взаимодействия [12];

в) перенормировка $N(E)$ на взаимодействие электронов с характерными бозонными модами, существующими выше T_c (например, фононами или немагнитическими флуктуациями).

Для установления природы нелинейности $dI(V)/dV$ -спектров туннельных контактов на базе Na(Fe,Co)As требуются дальнейшие исследования ее зависимости от температуры и степени допирования.

В СП состоянии на фоне данной нелинейности на $dI(V)/dV$ -спектре появляются андреевские структуры: узкий пьедестал при $eV \rightarrow 0$ и минимумы от большой и малой СП щелей (метки $2\Delta_L$, $2\Delta_S$ на рис. 2).

На рисунке 3 приведены ВАХ и $dI(V)/dV$ -спектры SnS-контактов при 4.2 К в диапазоне смещений $\pm V^*$, полученных на монокристаллах Na(Fe,Co)As недодопированного состава из одной закладки с $T_c \approx 19-21$ К. Видно, что зависимости $I(V)$ симметричны относительно нуля, воспроизводимо не имеют гистерезиса и сверхтоковой ветви, что исключает джозефсоновскую природу наблюдаемых на $dI(V)/dV$ особенностей. Помимо этого, на ВАХ наблюдается избыточный ток во всем диапазоне смещений eV (сравните сплошную и штриховую синие линии на рис. 3а), а на $dI(V)/dV$ -спектрах хорошо виден “пьедестал” при $eV \rightarrow 0$ и андреевские минимумы. Данные особенности ВАХ и $dI(V)/dV$ соответствуют реализации некогерентного режима MAO и достаточно высокой прозрачности SnS-контакта ($Z > 1/2$) согласно всем базовым теоретическим моделям MAO [8–10].

Особенности, существующие вне зависимости от наличия СП состояния и расположенные на смещении V^* , воспроизводимо наблюдаются на спектрах различных SnS-контактов, представленных на рис. 3б. При смещениях $|eV| \approx 10.8$ мэВ и $|eV| \approx 6.6$ мэВ наблюдаются два андреевских миниму-

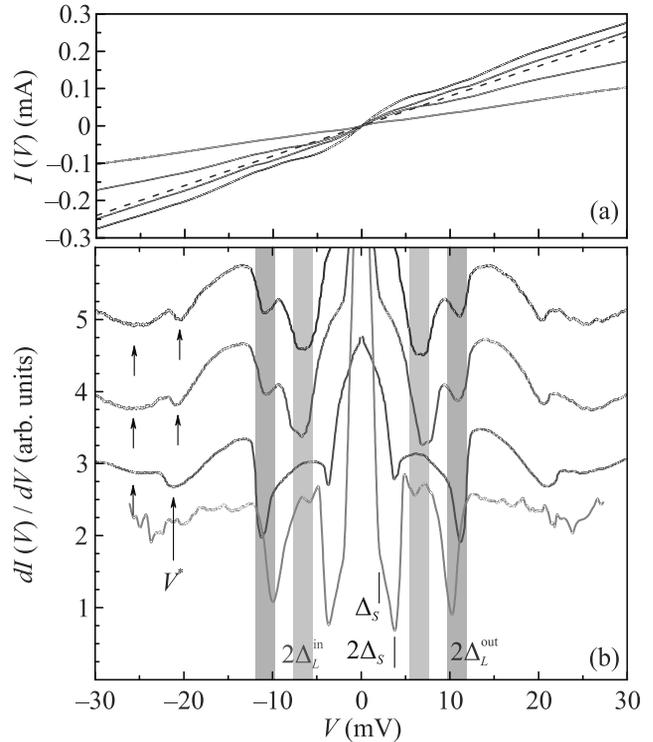


Рис. 3. (Цветной онлайн) ВАХ (а) и $dI(V)/dV$ -спектры (б) SnS-контактов с $T_c^{\text{local}} \approx 19 - 21$ К, измеренные при 4.2 К. Стрелками показаны особенности нормальной проводимости V^* . Вертикальные области отмечают положения фундаментальных андреевских минимумов, соответствующих энергетическим параметрам $2\Delta_L^{\text{out}} \approx 10.8$ мэВ и $2\Delta_L^{\text{in}} \approx 6.6$ мэВ (предположительно, дублет от большой СП щели с анизотропией $A_L \approx 39\%$ в импульсном пространстве), штрихами показаны $n = 1, 2$ андреевские минимумы от малой СП щели $2\Delta_S \approx 3.7$ мэВ. На панели (а) штриховой линией для сравнения приведена аппроксимация омической зависимости, соответствующей наклону G_N для ВАХ синего цвета

ма. Отношение их положений составляет ≈ 1.6 и не соответствует андреевским субгармоникам порядка $n = 1, 2$ от какой-либо изотропной СП щели, поскольку $V_1/V_2 = 2$. Значит, оба эти минимума могут являться дублетом фундаментальной ($n = 1$) андреевской особенности от анизотропной СП щели, а их положения при $T \ll T_c$ напрямую определяют два энергетических параметра СП порядка $\Delta_L^{\text{out}} \approx 5.4$ мэВ и $\Delta_L^{\text{in}} \approx 3.3$ мэВ: экстремумы возможного распределения энергии связи пар по углу в базальной плоскости. Положения дублета воспроизводятся для $dI(V)/dV$ -спектров различных SnS-контактов (см. вертикальные сиреневые полосы на рис. 3б), не зависят от случайной формы контактной области и величины ее нормальной проводимо-

сти G_N (и, следовательно, площади контакта), поэтому определяют именно объемные энергетические СП параметры $\text{Na}(\text{Fe},\text{Co})\text{As}$ и, таким образом, *не могут быть следствием размерных резонансов*. Схожие дублеты воспроизводимо наблюдались нами в родственном соединении LiFeAs [13, 14], а также в пниктидах $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$ (семейство 122) с близкими T_c [15–17].

СГС от малой СП щели $\Delta_S \approx 1.9$ мэВ составляют минимумы, расположенные при меньших смещениях $|eV| \approx 3.8$ мэВ ($n = 1$) и 1.9 мэВ ($n = 2$) и отмеченные вертикальными штрихами на рис. 3. Причиной подавления субгармоник порядка $n > 1$ от $\Delta_L^{\text{in,out}}$, по всей вероятности, является их перекрытие с СГС от малой СП щели (поскольку значения $\Delta_L^{\text{out}} \approx 2.5\Delta_S$ при $T \ll T_c$).

Эволюция $dI(V)/dV$ -спектра SnS -контакта с температурой показана на рис. 4. С увеличением температуры уменьшается амплитуда пьедестала, андреевские минимумы становятся менее интенсивны и смещаются в сторону нуля в соответствии с температурными зависимостями $\Delta_i(T)$. При $T \approx 19.6$ К, превышающей локальную критическую температуру T_c^{local} исследуемого контакта, а также при более высоких T на ВАХ и $dI(V)/dV$ -спектре отсутствуют особенности, вызванные андреевским транспортом, что соответствует переходу контактной области в нормальное состояние (см. верхние спектры на рис. 4).

По данным рис. 4 напрямую определены температурные зависимости трех наблюдаемых энергетических щелевых параметров $\Delta_L^{\text{out}}(T)$, $\Delta_L^{\text{in}}(T)$ и $\Delta_S(T)$ (рис. 5а). Зависимости типичны для случая умеренного межзонного взаимодействия, поскольку их тренды близки, но проходят ниже однозонной БКШ-образной зависимости (штрихпунктир на рис. 5а), что указывает на реализацию многощелевого СП состояния. Величина $T_c^{\text{local}} \approx 18.8$ К этого контакта была оценена, как температура, при которой $\Delta_L^{\text{out}}, \Delta_S \rightarrow 0$. Положение андреевской особенности, отмеченной как Δ_S , убывает быстрее вблизи T_c , поскольку отношение $\Delta_L^{\text{out}}/\Delta_S$ заметно возрастает с температурой (рис. 5б). Таким образом, Δ_S следует считать отдельным СП параметром порядка, так как андреевские особенности $dI(V)/dV$, отмеченные на рис. 3, 4 как Δ_S , не могут быть субгармониками от $\Delta_L^{\text{in,out}}$. Зависимости $\Delta_L^{\text{out}}(T)$, $\Delta_L^{\text{in}}(T)$ в целом подобны, а отношение $A_L \equiv 100\% \cdot [1 - \Delta_L^{\text{in}}/\Delta_L^{\text{out}}] \approx 39\%$ практически не меняется с температурой.

Наблюдаемые дублеты схожи по форме с результатами численных расчетов для анизотропной СП щели (рис. 4 в [5]) и могут быть вызваны расши-

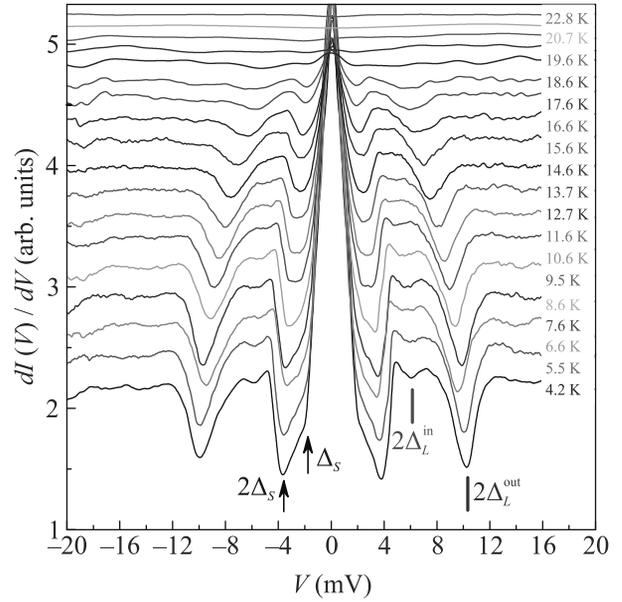


Рис. 4. (Цветной онлайн) Эволюция $dI(V)/dV$ -спектра SnS -контакта ($T_c^{\text{local}} \approx 19$ К) с температурой. Кривые намеренно сдвинуты по вертикали, нелинейности $dI(V)/dV$ нормального состояния подавлена для удобства. При 4.2 К отмечены андреевские гармоники от СП энергетических параметров $\Delta_L^{\text{out}} \approx 5.1$ мэВ, $\Delta_L^{\text{in}} \approx 3.1$ мэВ (вертикальные линии), $\Delta_S \approx 1.9$ мэВ (стрелки)

ренной s -волновой симметрией большой щели Δ_L в $k_x k_y$ -плоскости без узлов: в этом случае Δ_L^{out} и Δ_L^{in} соответствуют максимальной и минимальной энергии связи куперовских пар “ведущего” СП конденсата в зависимости от направления импульса. Предположительная анизотропия $A_L \approx 39\%$ близка к оцененной нами ранее для Δ_L в $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$, $\text{EuCsFe}_4\text{As}_4$ и LiFeAs [13–18], а также наблюдаемой с помощью ARPES в недодопированных образцах $\text{Na}(\text{Fe},\text{Co})\text{As}$ [3].

Характеристические отношения $r_i \equiv \Delta_i(0)/k_B T_c^{\text{local}}$ определенных нами СП энергетических параметров порядка составляют $r_L^{\text{out}} \approx 6.1$, $r_L^{\text{in}} \approx 3.7$ и $r_S \approx 2.3 < 3.53$ (последнее характерно для “слабого” или “ведомого” конденсата в многощелевом СП).

С другой стороны, сравнивая полученные отношения r_i с данными других групп (заштрихованные области на рис. 6 в обзоре [1]), отметим, что r_L^{out} находится на нижней границе диапазона характеристических отношений большой СП щели (штриховка синим), в то время как r_L^{in} оказывается в диапазоне отношений меньшей СП щели (штриховка серым на рис. 6 в [1]). Таким образом, мы не можем исключить сосуществование двух СП параметров поряд-

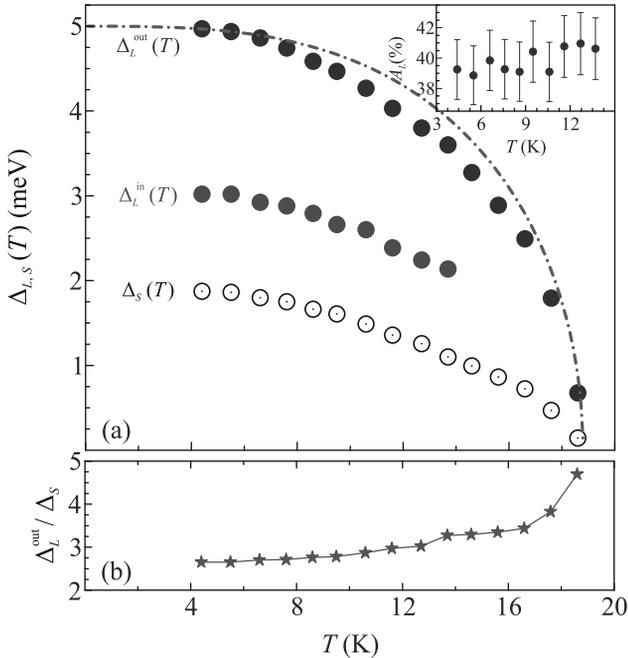


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Температурные зависимости СП щелевых параметров $\Delta_i(T)$, полученные по данным рис. 3. На вставке приведена температурная зависимость предположительной анизотропии большой СП щели $A_L = 100\% \cdot [1 - \Delta_L^{\text{in}}/\Delta_L^{\text{out}}]$. (б) – Зависимость отношения $\Delta_L^{\text{out}}(T)/\Delta_S(T)$ от температуры. Штрихпунктирной линией показана однозонная БКШ-образная функция

ка (обозначенных здесь как Δ_L^{in} и Δ_L^{out}), реализующихся ниже T_c на отдельных листах поверхности Ферми. Для того чтобы различить указанные случаи и достоверно определить тип симметрии Δ_L , необходимо расширение имеющихся теоретических моделей MAO [8–10] для СП с анизотропной щелью и упругими процессами перемешивания носителей (по направлению тока), а также более детальные исследования формы дублетов на $dI(V)/dV$ -спектрах туннельных контактов.

4. Заключение. С помощью спектроскопии планарных ScS-контактов в пниктидах Na(Fe,Co)As недодопированного состава с $T_c \approx 19\text{--}21$ К при температурах как выше, так и ниже T_c обнаружена нелинейность $dI(V)/dV$ -спектров, не являющаяся следствием СП состояния, которая может быть вызвана особенностями зонной структуры вблизи E_F или сильным электрон-бозонным взаимодействием.

Ниже T_c напрямую определены энергетические параметры СП порядка Δ_L^{out} , Δ_L^{in} и Δ_S с характеристическими отношениями теории БКШ 6.1, 3.7 и 2.3, соответственно. Δ_L^{out} и Δ_L^{in} могут быть как двумя СП щелями, открывающимися на различных листах

поверхности Ферми, так и экстремумами единой анизотропной СП щели (максимальной и минимальной энергиями связи куперовских пар для ее распределения по углу в k -пространстве).

Температурные зависимости $\Delta_L^{\text{in,out}}(T)$ и $\Delta_S(T)$ в Na(Fe,Co)As типичны для случая умеренного межзонного взаимодействия, степень предположительной анизотропии большой щели $A_L \approx 39\%$ практически не меняется с температурой.

Работа выполнена в рамках проекта Российского научного фонда 22-72-10082.

Измерения частично проведены с использованием оборудования Центра коллективного пользования ФИАН.

1. T. E. Kuzmicheva and S. A. Kuzmichev, JETP Lett. **114**, 630 (2021).
2. M. D. Watson, S. Aswartham, L. C. Rhodes, B. Parrett, H. Iwasawa, M. Hoesch, I. Morozov, B. Büchner, and T. K. Kim, Phys. Rev. B **97**, 035134 (2018).
3. Q. Q. Ge, Z. R. Ye, M. Xu, Y. Zhang, J. Jiang, B. P. Xie, Y. Song, C. L. Zhang, P. Dai, and D. L. Feng, Phys. Rev. X **3**, 011020 (2013).
4. J. Moreland and J. W. Ekin, J. Appl. Phys. **58**, 3888 (1985).
5. S. A. Kuzmichev and T. E. Kuzmicheva, Low Temp. Phys. **42**, 1008 (2016).
6. Z. Popović, S. A. Kuzmichev, and T. E. Kuzmicheva, J. Appl. Phys. **128**, 013901 (2020).
7. I. Giaever and K. Megerle, Phys. Rev. **122**, 1101 (1961).
8. M. Octavio, M. Tinkham, G. E. Blonder, and T. M. Klapwijk, Phys. Rev. B **27**, 6739 (1983).
9. R. Kümmel, U. Günsenheimer, and R. Nicosky, Phys. Rev. B **42**, 3992 (1990).
10. D. Averin and A. Bardas, Phys. Rev. Lett. **75**, 1831 (1995).
11. T. P. Devereaux and P. Fulde, Phys. Rev. B **47**, 14638 (1993).
12. I. K. Yanson, Sov. Phys. JETP **39**, 506 (1974).
13. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, I. V. Morozov, S. Wurmehl, and B. Büchner, JETP Lett. **111**, 350 (2020).
14. S. Kuzmichev, T. Kuzmicheva, I. Morozov, A. Boltalin, and A. Shilov, SN Appl. Sci. **4**, 189 (2022).
15. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, and V. A. Vlasenko, JETP Lett. **112**, 786 (2020).
16. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, and V. A. Vlasenko, Phys. Rev. B **104**, 174512 (2021).
17. A. V. Sadakov, A. V. Muratov, S. A. Kuzmichev, O. A. Sobolevskiy, B. I. Massalimov, A. R. Prishchepa, V. M. Mikhailov, K. S. Pervakov, V. A. Vlasenko, and T. E. Kuzmicheva, JETP Lett. **116**, 708 (2022).
18. S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, V. A. Vlasenko, A. Yu. Degtyarenko, S. Yu. Gavrilkin, and T. E. Kuzmicheva, JETP Lett. **116**, 723 (2022).

Магнитные свойства гетероструктуры $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ на подложке NdGaO_3

Т. А. Шайхулов^{a,1)}, А. Р. Сафин^{a,b}, К. Л. Станкевич^c, А. В. Матасов^b, М. П. Темиряева^d, Д. А. Винник^e,
В. Е. Живулин^e, С. А. Никитов^{a,f}

^aИнститут радиоэлектроники им. В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

^bНациональный исследовательский университет “МЭИ”, 111250 Москва, Россия

^cМосковский государственный университет имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^dФрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия

^eЮжно-Уральский государственный университет, 454080 Челябинск, Россия

^fМосковский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 16 марта 2023 г.

После переработки 21 марта 2023 г.

Принята к публикации 22 марта 2023 г.

Эпитаксиальная гетероструктура на основе манганитных пленок стронция и лантана-стронция (SrMnO_3 и $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$) изучалась в данной работе. Измерены спектры ферромагнитного резонанса, угловые зависимости резонансного поля при различных температурах, плоскостная и кубическая анизотропия, а также температурные зависимости намагниченности. Полученные магнитные параметры гетероструктуры сравнивались с магнитными параметрами одиночной пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Мы предполагаем, что наличие межслоевого обмена на границе раздела ферромагнетик–антиферромагнетик при низких температурах приводит к возникновению однонаправленной анизотропии в гетероструктуре $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Мы полагаем, что представленные результаты будут полезны для практической разработки сверхбыстродействующих устройств на основе антиферромагнетиков: излучателей, усилителей, детекторов.

DOI: 10.31857/S1234567823080104, EDN: wgohch

Перовскитные манганиты демонстрируют различные интересные физические явления, в том числе колоссальное магнитосопротивление (КМС). Ожидается, что из-за сосуществующих спиновых, зарядовых и орбитальных степеней свободы граничные слои между различными оксидами в гетероструктурах будут демонстрировать гораздо более богатую физику, чем их обычные полупроводниковые аналоги. Были обнаружены новые межфазные электронные состояния и некоторые интересные явления [1–12]. Например, ферромагнитное упорядочение наблюдалось в пленке иридата SrIrO_3 . Иридат был верхним слоем гетероструктуры $\text{SrIrO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ [13]. Эпитаксиальные гетероструктуры манганитов смешанной валентности открывают возможности для создания устройств, основанных на магнитных явлениях и конкурирующих взаимодействиях на границах раздела. Одним из межфазных эффектов является возникновение

дополнительной однонаправленной анизотропии, ее возникновение объясняется обменным взаимодействием между ферромагнитными (ФМ) и антиферромагнитными (АФМ) спинами на границе раздела. Манганиты со структурой перовскита хорошо подходят для изучения интерфейсных эффектов, возникающих в бислоях ферромагнетик/антиферромагнетик, поскольку имеют богатые фазовые диаграммы с несколькими магнитными порядками [14, 15].

Ранее несколько экспериментов продемонстрировали, что тонкий слой АФМ может преобразовывать и эффективно усиливать спиновый ток [16, 17]. ФМ-слой, управляемый ФМ резонансом, возбуждает спиновый ток, который трансформируется в АФМ-слое и может быть обнаружен обратным спиновым эффектом Холла [18, 19]. Одной из самых интригующих особенностей было то, что величина спинового тока, при наличии АФМ слоя, превышает значение величины спинового тока при отсутствии АФМ слоя. Таким образом, изучение гетероструктур АФМ/ФМ

¹⁾e-mail: shcaihulov@hitech.cplire.ru

имеет большие прикладные перспективы в спинтронике.

АФМ оксиды имеют большой потенциал для создания устройств спинтроники следующего поколения благодаря уникальным свойствам, таким как устойчивость к внешним магнитным полям и сверхбыстрое спиновое возбуждение. Благодаря сильному обменному взаимодействию резонансные частоты антиферромагнетиков находятся в терагерцовом или субтерагерцовом режиме, что важно для быстродействующих приложений спинтроники [20].

Манганит со стехиометрией $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) является одним из самых перспективных материалов среди $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ манганитов благодаря своим уникальным магнитным и магнито-транспортным свойствам. В процессе роста пленки несоответствие кристаллических решеток пленки и подложки приводит к возникновению напряжений в слое LSMO, влияющих на его магнитные и магнито-транспортные свойства.

SrMnO_3 (SMO) принадлежит к семейству $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$. Обычно он имеет три различные полиморфные фазы, а именно, кубическую, 4H- и 6H-гексагональную фазы, стабилизированные при разных температурах роста [21]. Все фазы обладают свойствами АФМ изолятора G -типа при температуре Нееля (T_N), которая варьируется от 260 до 278 K [21, 22]. АФМ обмен в объемном SMO определяется сверхобменным взаимодействием между ионами Mn^{4+} , что сохраняет вырожденность Mn^{4+} орбиталей. С другой стороны, тонкие пленки SMO могут использоваться для демонстрации широкого диапазона магнитного упорядочения. Например, при разных эпитаксиальных расхождениях между подложкой и пленкой антиферромагнитное упорядочение в тонких пленках SMO может быть перестроено с G -типа на C/A -тип [23, 24].

В данной работе мы представляем новые экспериментальные результаты по магнитным характеристикам гетероструктуры $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{NdGaO}_3$ в широком диапазоне температур.

Гетероструктуры были изготовлены методом магнетронного высокочастотного (ВЧ) напыления на плоскость (110) подложки из монокристаллического галлата неодима NdGaO_3 (NGO) при температуре $T = 800^\circ\text{C}$ и давлении кислорода 0.5 мбар для слоев $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) [12] и SrMnO_3 (SMO). Толщина пленки (LSMO) в исследуемой гетероструктуре составляла 44 нм, а толщина пленки SrMnO_3 (SMO) была 5 нм. Кристаллическую структуру гетерострук-

туры анализировали с помощью рентгеновской дифрактометрии [25].

Рентгенофазовый анализ (РФА) синтезированного образца выполнен на рентгеновском дифрактометре ДРОН-4 с использованием фильтрованного $\text{CuK}\alpha 1$ излучения. Результат рентгенофазового анализа гетероструктуры толщиной 49 нм представлен на рис. 1а, четыре рефлекса, соответствующие подложке [220] NGO, пленке SMO, а также пленке LSMO (нижняя часть гетероструктуры) и пленке LSMO (верхняя часть гетероструктуры).

В соответствии с результатами рентгеновских данных слой LSMO испытывает деформацию растяжения за счет его эпитаксиального роста на подложке NGO. На рисунке 1а показано, что манганит имеет 2 фазы с разными параметрами кристаллической решетки (для нижнего слоя, близкого к подложке) $c_1 = 3.875 \text{ \AA}$, (верхняя часть гетероструктуры) $c_2 = 3.908 \text{ \AA}$, что хорошо согласуется со спектрами ФМ резонанса (ФМР) на рис. 2 и 3b, где показаны 2 спектра ФМР с разными магнитными параметрами. Постоянная решетки слоя SMO по оси c составляет 3.858 \AA , что почти совпадает с объемным значением 3.857 \AA , что указывает на то, что слой SMO не испытывает деформации растяжения с этой подложкой. На основании полученного параметра кристаллической решетки c можно сделать вывод, что пленочный SMO имеет АФМ порядок G -типа ниже температуры Нееля [24]. Измерения атомно-силовой микроскопии гетероструктуры SMO/LSMO, показанные на рис. 1b, среднеквадратичная шероховатость гетероструктуры равна 3.1 нм.

В отсутствие какого-либо внешнего воздействия вектор намагниченности в ферромагнетике направлен вдоль резонансного поля для спектров ФМР одиночной пленки LSMO и гетероструктуры SMO/LSMO. Все спектры сняты на образцах размером $5 \times 5 \text{ мм}^2$ при условии, что внешнее постоянное магнитное поле лежит в плоскости образца (параллельная ориентация), а магнитная составляющая сверхвысокочастотного (СВЧ) поля направлена по нормали к пленке. Измерения проводились на стандартном спектрометре Bruker ER 200 на частоте 9.6 ГГц и при комнатной температуре.

На рисунке 2а, b представлены полученные спектры поглощения ФМР чистой пленки LSMO (44 нм), двухслойного LSMO (44 нм)/SMO (5 нм), измерения при $f = 9.6 \text{ ГГц}$ показывают, что пленка SMO толщиной 5 нм значительно уширяет ширину линии ФМР. Это указывает на то, что неупорядоченный АФМ (выше температуры Нееля) SMO играет важную роль в затухании LSMO. Слой SMO толщиной 5 нм

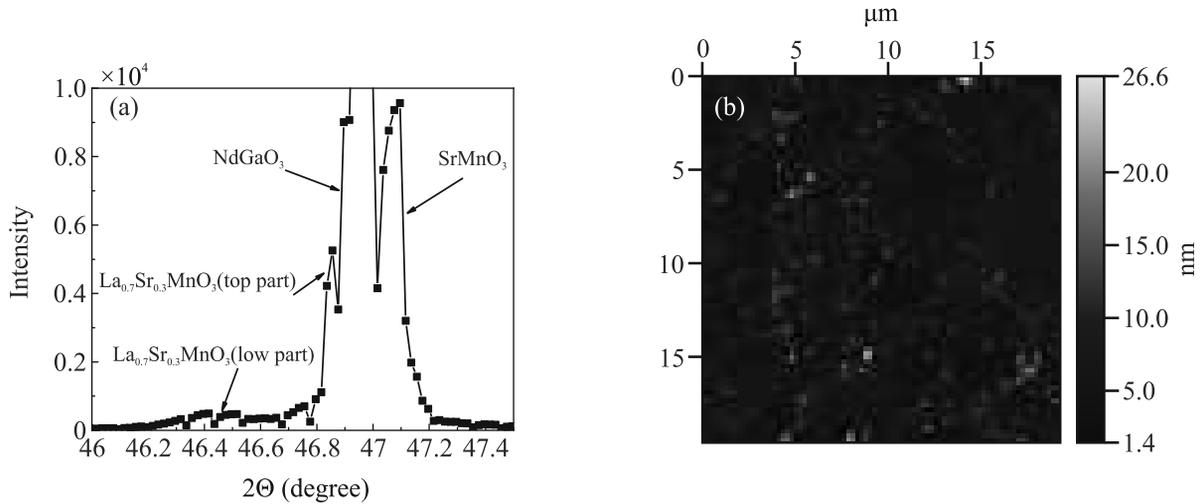


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Дифрактограмма брегговского отражения гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ выращенной на подложке NGO. (б) – Анализ поверхности с помощью сканирующего атомно-силового микроскопа

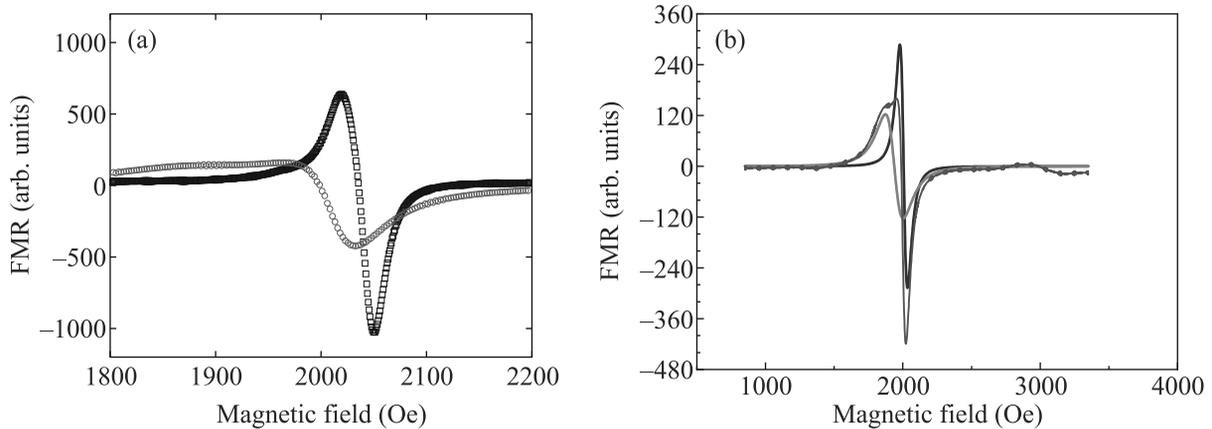


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Спектры гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ (круги), La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ пленки (квадраты); магнитное поле в обоих случаях задавалось вдоль оси легкого намагничивания. (б) – Спектры верхней части гетероструктуры (синяя линия) и нижней части гетероструктуры слой (зеленая линия), экспериментальная кривая (красная линия) гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃

явно увеличивает затухание в LSMO. Этот результат можно объяснить сильным присутствием спин-орбитального взаимодействия в SMO или каким-то слабым АФМ упорядочением, которое могло бы объяснить значительное уширение линии в ФМ [16].

Метод определения параметров магнитной анизотропии заключается в обработке угловых зависимостей резонансных полей спектров ФМР. Решение уравнения Ландау–Лифшица для эволюции намагниченности M_{eff} во внешнем постоянном магнитном поле H под действием магнитной составляющей радиочастотного поля дает аналитическое соотношение для резонансного поля H_0 и частоты ω для системы с одним ФМ слоем [26].

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(4\pi M_{\text{eff}} + H_0 + H_u \cos^2 \varphi_u + \frac{H_c}{2} (1 + \cos^2 2\varphi_c)\right) \times (H_0 + H_u \cos 2\varphi_u + H_c \cos 4\varphi_c). \quad (1)$$

Здесь M_{eff} – эффективная намагниченность, представляющая собой сумму равновесной намагниченности и некоторых других возможных эффектов, таких как межслоевые взаимодействия [27], H_u и H_c – поля одноосной и кубической анизотропии, φ_u и φ_c – углы между легкой осью одноосной и кубической анизотропии и внешним магнитным полем соответственно. Здесь H_u , H_c , M_{eff} , а так же

углы φ_u и φ_c были получены путем подгонки экспериментальных данных с помощью уравнения (1), описывающего угловые зависимости резонансного поля (см. рис. 3).

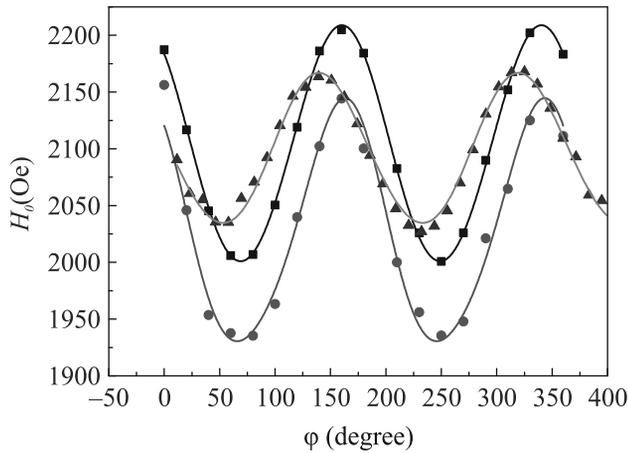


Рис. 3. (Цветной онлайн) Угловая зависимость резонансного поля пленки одиночного $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ пленка (синие квадраты), угловая зависимость резонансного поля обеих линий $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ гетероструктура (черные квадраты и красные кружки). Сплошные линии, описывающие экспериментальные точки, являются линиями аппроксимации, полученной из уравнения (1)

Здесь угол φ измерялся от одной из граней подложки. Таким образом, направления легких осей также определяются относительно этой грани. Большое количество полученных точек позволяет определить подгоночные параметры уравнения (1). Данные о температурных изменениях как параметров M_{eff} (рис. 4а), так и параметров магнитной анизотропии (рис. 5а, б) были получены путем аналогичной обработки угловых зависимостей спектров ФМР, снятых при различных температурах. На рисунке 2б представлены спектр одиночной пленки LSMO и спектр гетероструктуры SMO/LSMO, измеренные во внешнем магнитном поле, ориентированном вдоль оси легкого намагничивания.

В целом из рис. 3 можно судить об изменении магнитных параметров каждой части гетероструктуры. Для пленки LSMO, которая является нижней частью гетероструктуры, магнитные параметры $M_{\text{eff}} = 308 \text{ Э}$, $H_u = 122 \text{ Э}$, $H_c = 13 \text{ Э}$, для слоя LSMO, граничащего с пленкой SMO $M_{\text{eff}} = 286 \text{ Э}$, $H_u = 120 \text{ Э}$, $H_c = 3 \text{ Э}$ по сравнению с одиночной пленкой LSMO $M_{\text{eff}} = 289 \text{ Э}$, $H_u = 76 \text{ Э}$, $H_c = 3 \text{ Э}$, о чем свидетельствуют различия в угловой зависимости, представленной на рис. 3, и изменения спектра линии на рис. 2а, б. Интересно отметить увеличение

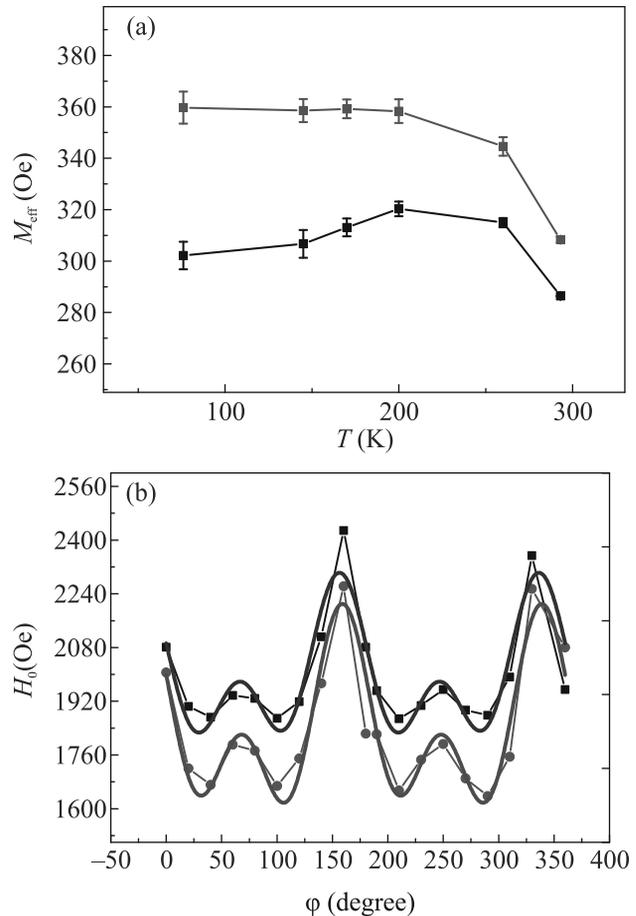


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Температурная зависимость намагниченности для различных слоев гетероструктуры $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Нижняя часть гетероструктуры (красные кружки), верхняя часть гетероструктуры (черные квадраты). Ошибка обозначена полусой ошибкой (черная и красная). (б) – Угловая зависимость резонансного поля каждой из линий гетероструктуры (черные квадраты и красные кружки) $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, аппроксимация верхней части гетероструктуры (синяя линия), нижней части гетероструктуры (зеленая линия) при $T = 75 \text{ К}$

плоскостной анизотропии для обеих частей гетероструктуры SMO/LSMO по сравнению с одиночной пленкой. Мы полагаем, что объяснение этого эффекта заключается в появлении дополнительной анизотропии на границе между ферромагнитной пленкой LSMO и парамагнитной пленкой SMO.

На рисунке 4а представлены температурные зависимости намагниченности двух частей гетероструктуры SMO/LSMO, намагниченность нижней части гетероструктуры (красные кружки), скорее всего, относится к чистой пленке LSMO, в связи с тем, что она показывает типичную монотонное из-

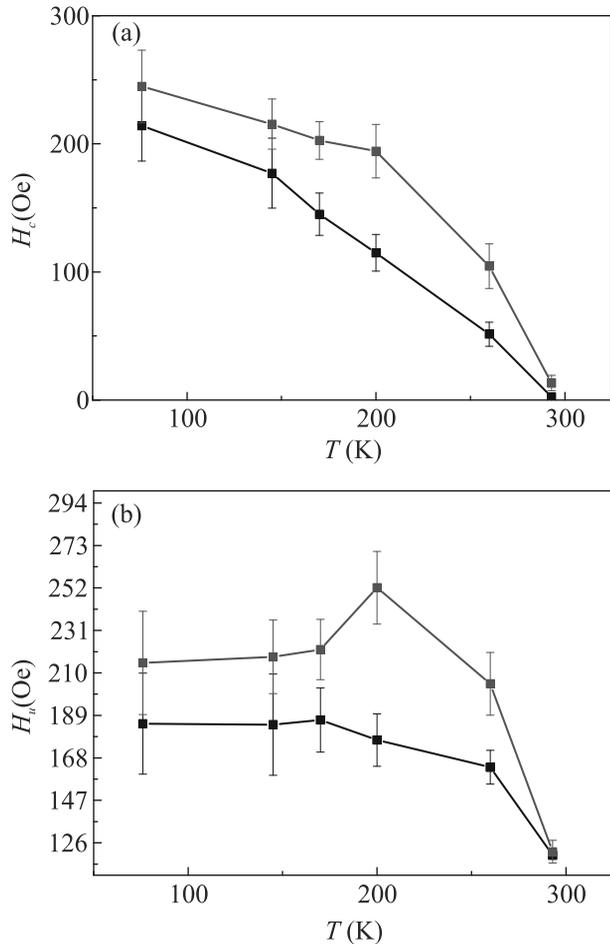


Рис. 5. (Цветной онлайн) Температурная зависимость для различных слоев гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃. Нижняя часть гетероструктуры (красные кружки), верхняя часть гетероструктуры (черные квадраты): (а) – кубической анизотропии; (б) – одноосная анизотропия. На ошибку указывает полоса ошибок (черная и красная)

менение намагниченности одиночной пленки LSMO при понижении температуры [28, 29].

Уменьшение намагниченности верхней части гетероструктуры (пленка LSMO, образующая контакт с АФМ пленкой SMO с температурой Нееля около 200 К) с температурой указывает на появление дополнительного обменного взаимодействия на границе раздела при 200 К (рис. 4а). Это также является причиной того, что уравнение (1) может описывать поведение намагниченности только в одной части пленки ферромагнетика. При наличии другого спин-активного слоя, контактирующего с ФМ пленкой, может проявиться межфазное взаимодействие, которое проявится как дополнительный член в свободной энергии ФМ пленки. В результате уравнение (1) уже

не будет адекватно описывать связь между частотой и внешним магнитным полем в условиях ФМР, а намагниченность M_0 будет заменена на M_{eff} . Аналогичная проблема наблюдалась нами в работе [13]. Итак, мы предполагаем, что дополнительный член указывает на появление межфазного спин-спинового гамильтониана для бислоев АФМ/ФМ, подробно описанного в [30].

Рисунок 4б подтверждает переход пленки SMO из парамагнитного в АФМ состояние. В гетероструктуре АФМ/ФМ вместо одноосной анизотропии (две эквивалентные легкие конфигурации в противоположных направлениях) намагниченность в системах АФМ/ФМ имеет только одно легкое направление, часто называемое однонаправленной анизотропией, появление антисимметричных пиков в угловой зависимости верхней части гетероструктуры (часть пленки LSMO, граничащей с пленкой антиферромагнетика SMO) свидетельствует о появлении однонаправленной анизотропии в верхней части гетероструктуры, что объясняется возникновением обменного взаимодействия на границе АФМ/ФМ [30].

Также из уравнения (1) были получены температурные зависимости для кубической и одноосной анизотропии. В случае части пленки (красные кружки), которая, как мы полагаем, не взаимодействует с пленкой SMO, температурная зависимость каждой из анизотропий вполне типична для пленки чистого манганита. Увеличение плоскостной анизотропии нижнего слоя, возможно, связано с растяжением кристаллической решетки в направлении c (рис. 1). Для верхней части гетероструктуры определить поле анизотропии затруднительно, поскольку, как объяснялось выше, для поведения намагниченности, уравнение (1) нельзя корректно использовать для определения магнитных параметров верхней части гетероструктуры [31].

В настоящей работе представлены экспериментальные данные, демонстрирующие в интервале температур 300–70 К проявление дополнительного взаимодействия, возникающего на границе раздела гетероструктуры SMO/LSMO. Наблюдаемый эффект, как мы предполагаем, является следствием интерфейсной связи за счет обменного взаимодействия между антиферромагнетиком (SrMnO₃) и ферромагнетиком (La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃). Наши результаты стали еще одним доказательством разнообразия фазовых характеристик манганитов, возникающих на межфазных границах. Мы считаем, что наши результаты будут полезны для разработки перестраиваемых, высокочувствительных и сверхбыстродействующих устройств спинтроники на основе антиферро-

магнетиков, таких как излучатели, усилители, детекторы.

Авторы выражают благодарность В. В. Демидову за помощь в проведении эксперимента и полезные обсуждения.

Измерения резонансных характеристик образцов было проведено при поддержке Российского научного фонда # 21-79-10396, обработка экспериментальных результатов выполнена в рамках гранта Российского научного фонда # 19-19-00607-Р.

1. J. Mannhart and D. G. Schlom, *Science* **327**, 1607 (2010).
2. Z. V. Gareeva and X. M. Chen, *JETP Lett.* **114**, 215 (2022).
3. K. V. Voronin, I. S. Lobanov, and V. M. Uzdin, *JETP Lett.* **116**, 242 (2022).
4. P. Zubko, S. Gariglio, M. Gabay, P. Ghosez, and J. M. Triscone, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **2**, 141 (2011).
5. M. Bibes, J. E. Villegas, and A. Barthelemy, *Adv. Phys.* **60**, 5 (2011).
6. H. Y. Hwang, Y. Iwasa, M. Kawasaki, B. Keimer, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Nat. Mater.* **11**, 103 (2012).
7. M. Gibert, P. Zubko, R. Scherwitzl, J. Iniguez, and J. M. Triscone, *Nat. Mater.* **11**, 195 (2012).
8. A. Bhattacharya, S. J. May, S. G. E. te Velthuis, M. Warusawithana, X. Zhai, B. Jiang, J. M. Zuo, M. R. Fitzsimmons, S. D. Bader, and J. N. Eckstein, *Phys. Rev.* **100**, 257203 (2008).
9. J. W. Seo, W. Prellier, P. Padhan, P. Boullay, J. Y. Kim, H. Lee, C. D. Batista, I. Martin, E. E. M. Chia, T. Wu, B. G. Cho, and C. Panagopoulos, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 167206 (2010).
10. N. Kida, H. Yamada, H. Sato, T. Arima, M. Kawasaki, H. Akoh, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 197404 (2007).
11. I. F. Sharafullin and H. T. Diep, *JETP Lett.* **114**, 536 (2021).
12. K. L. Stankevich, *JETP Lett.* **116**, 167 (2022).
13. V. V. Demidov, N. V. Andreev, T. A. Shaikhulov, and G. A. Ovsyannikov, *J. Magn. Magn. Mater.* **497**, 165979 (2020).
14. A. P. Ramirez, *J. Phys. Condens. Matter* **9**, 8171 (1997).
15. J. M. D. Coey, M. Viret, and S. von Molnar, *Adv. Phys.* **48**, 167 (1999).
16. H. Wang, C. Du, P. C. Hammel, and F. Yang, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 097202 (2014).
17. C. Hahn, G. de Loubens, V. V. Naletov, J. B. Youssef, O. Klein, and M. Viret, *Europhys. Lett.* **108**, 57005 (2014).
18. R. Khymyn, I. Lisenkov, V. Tiberkevich, A. Slavin, and B. Ivanov, *Phys. Rev. B.* **108**, 224421 (2016).
19. A. L. Khoroshilov, A. V. Bogach, S. V. Demishev, K. M. Krasikov, S. E. Polovets, N. Yu. Shitsevalova, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, *JETP Lett.* **115**, 130 (2022).
20. Y. Zhang, J. Chen, J. Zhang, and H. Yu, *Appl. Phys. Rev.* **9**, 041312 (2022).
21. R. Søndergaard, P. Ravindran, S. Stølen, T. Grande, and M. Hanfland, *Phys. Rev.* **74**, 144102 (2006).
22. D. M. Nalecz, R. Bujakiewicz-Koronska, and R. J. Radwanski, *Ferroelectrics* **483**, 86 (2015).
23. L. Maurel, N. Marcano, T. Prokscha, E. Langenberg, J. Blasco, R. Guzman, A. Suter, C. Magen, L. Morellon, M. R. Ibarra, J. A. Pardo, and P. A. Algarabel, *Phys. Rev. B* **92**, 024419 (2015).
24. J. H. Lee and K. M. Rabe, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 207204 (2010).
25. T. A. Shaikhulov, G. A. Ovsyannikov, V. V. Demidov, and N. V. Andreev, *JETP* **129**, 112 (2019).
26. T. M. Vasilevskaya and D. I. Sementsov, *Phys. Met. Metallogr.* **108**, 339 (2009).
27. V. V. Demidov and T. A. Shaikhulov, *J. Magn. Magn. Mater.* **566**, 170299 (2023).
28. A. Tebano, C. Aruta, S. Sanna, P. G. Medaglia, G. Balestrino, A. A. Sidorenko, R. De Renzi, G. Ghiringhelli, L. Braicovich, V. Bisogni, and N. B. Brookes, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 137401 (2008).
29. D. Yi, C. L. Flint, P. P. Balakrishnan, K. Mahalingam, B. Urwin, A. Vailionis, A. T. N'Diaye, P. Shafer, E. Arenholz, Y. Choi, K. H. Stone, J.-H. Chu, B. M. Howe, J. Liu, I. R. Fisher, and Y. Suzuki, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 077201 (2017).
30. F. Li, C. Song, Y. Y. Wang, B. Cui, H. J. Mao, J. J. Peng, S. N. Li, G. Y. Wang, and F. Pan, *Sci. Rep.* **5**, 16187 (2015).
31. J. Nogues and K. I. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 203 (1999).

Устойчивый ферримагнетизм в квазисвободном графене

А. Г. Рыбкин¹⁾, А. В. Тарасов, А. А. Гогина, А. В. Ерыженков, А. А. Рыбкина

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

Поступила в редакцию 7 марта 2023 г.

После переработки 22 марта 2023 г.

Принята к публикации 22 марта 2023 г.

В работе проведено исследование влияния размера петлевых дислокаций на подрешеточный ферримагнетизм в графене. Показано, что графен и нижележащий слой золота с петлевыми дислокациями Au/Co различного размера характеризуются ферримагнитной упорядоченностью внутри атомных слоев. Наличие дополнительных адатомов золота под графеном усиливает индуцированное взаимодействие Рашбы в графене, но при этом не разрушает ферримагнитный порядок в графене. Поскольку при интеркаляции золота могут оставаться кластеры золота, как на поверхности графена, так и под графеном, управление количеством и размером кластеров в результате интеркаляции может быть использовано для усиления индуцированного взаимодействия Рашбы и получения топологической фазы в графене.

DOI: 10.31857/S1234567823080116, EDN: whvln

Введение. Управление спиновой структурой в графене, т.е. спиновым расщеплением его электронных состояний и топологически нетривиальной запрещенной зоной в точке Дирака – одна из важнейших проблем материаловедения на сегодняшний день, которую необходимо решить для использования графена в спинтронике, особенно для реализации бездиссипативного транспорта. Известно, что сильное спин-орбитальное взаимодействие является необходимым условием для наблюдения эффектов, таких как квантовый спиновый эффект Холла [1], квантовый аномальный эффект Холла (КАЭХ) [2–4] и др. Вторым фактором, влияющим на спиновую структуру, является обменное взаимодействие в графене. В связи с этим особое внимание привлекают теоретические и экспериментальные исследования возможного магнитного порядка в двумерных углеродных системах, таких как сверхатомный графен [5], подкрученный двухслойный графен [6], триангулен [7], нанографены [8] и др. Экспериментально нереализованная модель Холдейна на основе графеновой решетки с неоднородным распределением магнитного поля на атомном масштабе [9] остается актуальной и привлекательной, поскольку предсказывает КАЭХ в гексагональной двумерной решетке.

Немаловажное значение имеет эффект магнитной близости, который представляет собой многообещающий способ реализации обменного расщепления электронных состояний [2, 10] без приложения внешнего магнитного поля, что также может быть исполь-

зовано для реализации КАЭХ при условии сохранения топологической нетривиальности электронных состояний. Ранее было показано, что контакт графена с антиферромагнитным оксидом может приводить к возникновению КАЭХ или квантового долинного эффекта Холла в зависимости от направления намагниченности [11]. В работе [12] сообщалось о реализации магнитно-спин-орбитального графена на интерфейсе Au/Co(0001) с петлевыми дислокациями. Результаты теоретических расчетов показали, что индуцированные в графене спин-орбитальное и обменное взаимодействия приводят к асимметрии спинового расщепления в противоположных \bar{K} и \bar{K}' точках. Интеркаляция меньшего количества золота под графен позволила перейти от *p*-допированного графена к *n*-допированному со смещением точки Дирака из зоны проводимости в валентную зону [13]. Было показано, что синтезированный графен характеризуется ферримагнитным упорядочением на атомах углерода двух подрешеток, обычно называемых А и В подрешетками. С использованием модели сильной связи [4, 13] были получены противоположные по знаку кривизны Берри в противоположных \bar{K} и \bar{K}' точках, что позволило предложить *n*-допированный графен для реализации теоретически предсказанного эффекта Холла с циркулярным дихроизмом. Однако, до сих пор в расчетах [13–16], выполненных методом теории функционала плотности (ТФП), не находилось подтверждения гигантского эффекта Рашбы с величиной спин-орбитального расщепления π состояний вблизи уровня Ферми вплоть до 100 мэВ. Причинами такого несоответствия теоретических и

¹⁾e-mail: artem.rybkin@spbu.ru

экспериментальных результатов могут быть структурные отличия в синтезированных и модельных системах и дополнительное влияние фононных колебаний на спин-орбитальное взаимодействие [17, 18] в графене.

В данной работе мы исследовали устойчивость ферромагнитного упорядочения на подрешетках графена на Au/Co(0001) интерфейсе по отношению к возможным структурным изменениям в реальной системе: формирование петлевых дислокаций различного размера под графеном и появление дополнительных атомов кобальта и золота вблизи графена. Необходимость исследования данного вопроса подтверждается результатами диссертационной работы L. P. Nielsen [19], где обсуждается наличие атомов никеля на поверхностном сплаве, вытесненных из верхнего атомного слоя никеля при сплавлении, и продемонстрировано формирование петлевых дислокаций различного размера для монослоя Au на Ni(111). С другой стороны, в работах [20, 21] сообщалось о наличии поверхностных фаз с кластерами золота под графеном с остаточными кластерами золота на поверхности графена после интеркаляции, которые могут влиять на электронную структуру графена. Таким образом, изучение роли структурных отличий синтезированной системы от модельной является актуальной задачей.

Роль петлевых дислокаций в формировании ферромагнетизма в графене. На рисунке 1a показана картина дифракции медленных электронов (ДМЭ) с периодичностью суперструктуры $\sim (9 \times 9)$. Хорошо известно, что монослои благородных металлов (Ag, Au) сплавляются с переходными металлами (Ni, Co, Cu) с образованием петлевых дислокаций треугольной формы [12, 19, 22, 23]. Размер отдельно взятой дислокации зависит от количества вытесненных атомов из интерфейсного слоя переходного металла при ее образовании [19, 22]. Как видно на рис. 1b, петлевые дислокации, сформированные под графеном, носят периодический характер на достаточно больших площадях образца, но могут иметь по меньшей мере два размера – с тремя и шестью атомами золота, составляющими сторону треугольника (0 и 6 атомов золота в центре петлевой дислокации, соответственно). Как и в работе [19], петлевые дислокации с шестью атомами золота в ее центральной части являются часто встречаемыми на поверхности. На рисунках 1c, d показаны карты интенсивности фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением (ФЭСУР) в направлении $\bar{\Gamma}\bar{K}$ поверхностной зоны Бриллюэна. Можно отметить, что в электронной

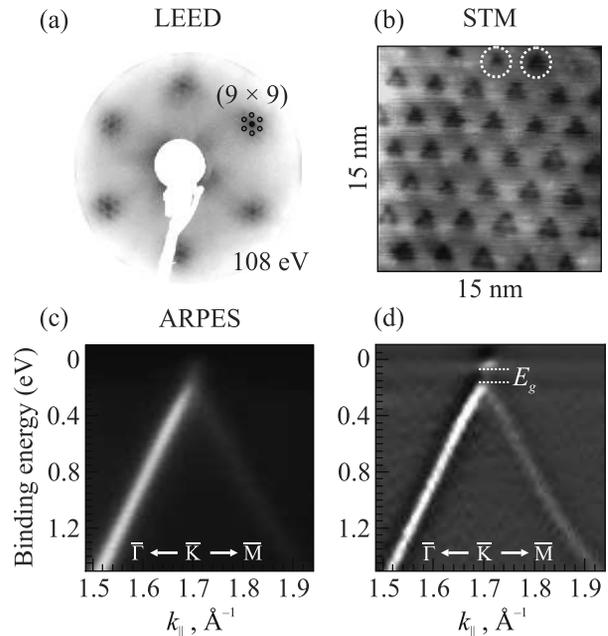


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – ДМЭ картина системы Gr/Au/Co/W(110). (b) – Изображение поверхности, полученное методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ). Петлевые дислокации различного размера отмечены окружностями с пунктирными линиями. (c) – ФЭСУР карта в направлении $\bar{\Gamma}\bar{K}\bar{M}$ зоны Бриллюэна и (d) ее вторая производная по энергии

структуре дираковского конуса графена наблюдается запрещенная зона E_g . С целью исследования электронной структуры графена и анализа величины запрещенной зоны были проведены теоретические расчеты.

Проведенные ТФП расчеты электронной структуры системы Gr/Au/Co(0001), с периодом (9×9) и содержащей петлевые дислокации, показали, что самосогласованное решение уравнения Кона–Шэма характеризуется ферромагнитным порядком на А и В подрешетках графена. Результаты расчетов представлены на рис. 2. При структурной оптимизации узловые атомы золота в дислокации смещаются ближе к кобальтовому слою, и их магнитные моменты оказываются сонаправленными с намагниченностью кобальтового слоя. Большинство остальных атомов золота по периметру ячейки и в ее правой части намагничены против магнитных моментов атомов кобальта. В ячейке без петлевой дислокации, построенной на основе структурно оптимизированной ячейки с петлевой дислокацией с расстоянием Gr-Au, равным 3.4 \AA , ферромагнитного упорядочения в слое золота не наблюдается (рис. 2c). В этом случае все атомы золота имеют магнитные моменты, сонаправленные с магнитными моментами в слое ко-

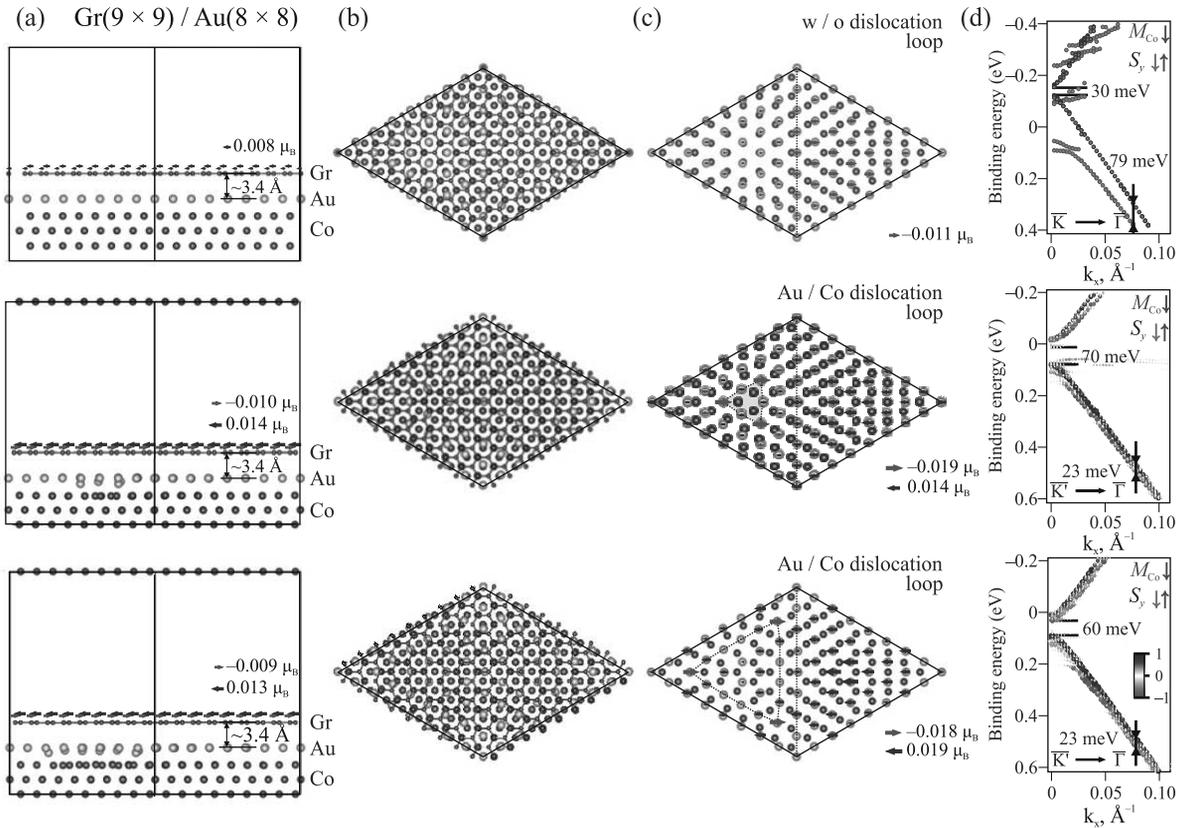


Рис. 2. (Цветной онлайн) Элементарные ячейки системы Gr(9 × 9)/Au(8 × 8)/Co(0001) без петлевой дислокации и с петлевыми дислокациями различных размеров: (a) – вид сбоку, (b) – вид сверху и (c) – вид на интерфейс Au-Co под графеном. (d) – Соответствующая развернутая (9 × 9) электронная структура в окрестности \bar{K} и \bar{K}' точек. Размер и цвет символов показывают спектральный вес Блоха для S_y компоненты спина

бальта. Теперь, если рассмотреть магнитные моменты на атомах графена для представленных ячеек, то можно заметить, что ферромагнитное упорядочение в слое графена присутствует только в ячейках с петлевыми дислокациями (рис. 2a). Как видно на рис. 2d, ферромагнитное упорядочение в графене приводит к появлению запрещенной зоны в \bar{K} точках графена. Напротив, для ячейки без петлевой дислокации наблюдается сильная гибридизация с d -состояниями кобальта, а запрещенная зона составляет не более 30 мэВ. Полученные теоретические результаты подтверждаются данными фотоэлектронной спектроскопии с угловым и спиновым разрешением. По экспериментальным данным величина запрещенной зоны составляет 80 ± 25 мэВ (рис. 1c и d), а спиновое расщепление π состояний – 40 и 80 мэВ в окрестностях противоположных \bar{K} точек при намагниченности слоя кобальта в плоскости поверхности и перпендикулярно направлению $\bar{\Gamma}\bar{K}$ [13].

Таким образом, интерфейс (монослой Au)/Co(0001) с периодическими петлевыми дислокациями играет ключевую роль в передаче обмен-

ного взаимодействия на графен, поскольку именно присутствие дислокаций в теоретической модели кардинальным образом меняет картину электронной структуры графена, создавая в нем запрещенную зону из-за электрон-электронного взаимодействия по модели Хаббарда и неэквивалентности A и B подрешеток.

Влияние адатомов кобальта и золота. Для анализа влияния возможных структурных неоднородностей на электронную и спиновую структуру графена были выполнены ТФП расчеты для системы Gr/Au/Co с различными вариантами дополнительных атомов. Рассмотрим три основных случая.

1) Кластер из трех атомов кобальта под графеном, который может сформироваться при образовании петлевой дислокации минимальных размеров (см. рис. 3a).

Как видно из рис. 3b, π состояния графена (отмечены пунктиром) сильно гибридизованы с d -состояниями кобальта, дираковский конус оказывается разрушенным. При этом графен намагничен ферромагнитным образом по отношению к слою

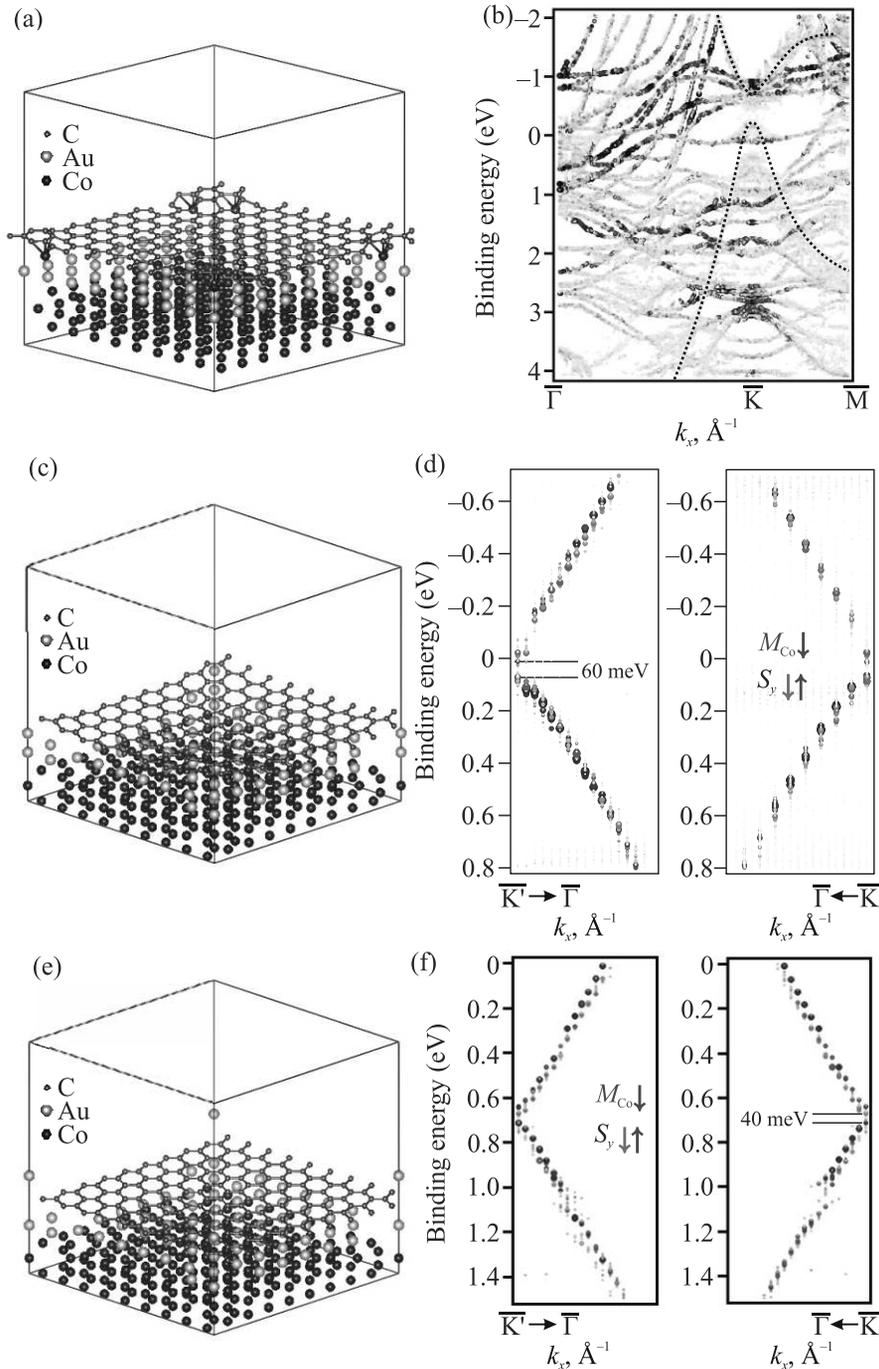


Рис. 3. (Цветной онлайн) Элементарные ячейки с дополнительными атомами: кобальта под графеном (а), золота под графеном (с) и золота над графеном (е). (b), (d) и (f) – соответствующая элементарным ячейкам, изображенным слева, развернутая электронная структура в окрестности \bar{K} и \bar{K}' точек. Графеновая π зона отмечена пунктиром на (b). Размер и цвет символов показывают спектральный вес Блоха для S_y компоненты спина

кобальта с намагниченностями на атомах углерода $\sim 0.9 \mu_B$.

2) Адаомы золота под графеном в результате избыточной интеркаляции (см. рис. 3с).

Электронная структура графена для данного случая представлена на рис. 3d. Обнаружено, что

для данной системы сохраняется ферромагнетизм в графеновой решетке с намагниченностями $\sim 0.010 \div 0.011 \mu_B$ и $-(0.011 \div 0.012) \mu_B$ на подрешетках, дополнительный атом золота в ячейке приводит к увеличению расщепления Рашбы в области дираковского конуса до ~ 20 мэВ. Ширина запрещенной зоны

составляет ~ 60 мэВ и появляется в результате антиферромагнитного взаимодействия в графене.

Хотелось бы отметить, что величина расщепления Рашбы в данном случае (~ 20 мэВ) все еще меньше экспериментального значения (~ 60 мэВ). Немаловажную роль в объяснении эффекта гигантского расщепления Рашбы могут играть корrugация слоя золота под графеном и вклад фоновых колебаний графена, что является предметом дальнейших исследований.

3) Адаптомы золота на графене, оставшиеся на поверхности после интеркаляции (см. рис. 3е).

В данном случае увеличения расщепления Рашбы вблизи уровня Ферми не наблюдается, и оно составляет менее 7 мэВ. В отличие от предыдущего случая инверсия спина относительно $\bar{\Gamma}$ точки отсутствует, что свидетельствует о превалирующем вкладе обменного расщепления, величиной до ~ 50 мэВ. При этом, ферромагнитный порядок сохраняется, но доля антиферромагнитного взаимодействия уменьшается, что приводит к уменьшению ширины запрещенной зоны в точке Дирака до 40 мэВ. Аналогичное уменьшение доли антиферромагнитного упорядочения наблюдается и для случая приближенного к слою золота графена на 0.3 \AA от равновесного состояния.

Заключение. На основе проведенных исследований можно сделать вывод, что графен на петлевых дислокациях Au/Co различного размера характеризуется ферромагнитным упорядочением на его подрешетках. Наличие дополнительных атомов золота под графеном усиливает индуцированное спин-орбитальное взаимодействие Рашбы в графене, но при этом не разрушает его ферромагнитное упорядочение. Управление количеством атомов золота над/под графеном может быть использовано для поиска оптимального соотношения между спин-орбитальными и обменными взаимодействиями для наблюдения квантового аномального эффекта Холла.

Методы исследования. Экспериментальные измерения проводились в УНУ “Нанолаб” в ресурсном центре “Физические методы исследования поверхности” (РЦ ФМИП) Научного парка СПбГУ. Эпитаксиальный хорошо ориентированный графен, выращенный на Co (80 \AA)/W(110) методом химического осаждения из газовой фазы, был интеркалирован монослоем Au после осаждения 3.1 \AA Au с последующим отжигом до 600°C . Синтезированный образец намагничивался вдоль оси легкого намагничивания тонкой пленки Co (вдоль $-y$ оси в плоскости поверхности, перпендикулярно $\bar{\Gamma}\bar{K}$ направлению).

Расчеты из первых принципов в рамках ТФП выполнялись в Вычислительном центре Научного парка СПбГУ. Метод присоединенных плоских волн полного потенциала + локальных орбиталей [24], реализованный в коде WIEN2k [25], использовался с обобщенным градиентным приближением (GGA) в версии Perdew–Burke–Ernzerhof (PBE) [26]. Параметр, определяющий точность расчетов, $RMT \times K_{\max}$ во всех проведенных расчетах был равен 3.30, где RMT – наименьший радиус атомной сферы, а K_{\max} – отсечка базиса плоских волн. Радиусы атомных сфер были установлены равными $1.35a_0$ для углерода, $2.46a_0$ для золота и $2.18a_0$ для кобальта, где a_0 – радиус Бора. Структура интерфейсов моделировалась с помощью периодических суперячеек в приближении периодических кристаллических пластин, состоящих из четырех слоев подложки (три слоя кобальта и один слой золота), покрытых графеном с одной стороны, и вакуумной области, простирающейся более чем на 20 \AA . Дискретная k -сетка зоны Бриллюэна $1 \times 1 \times 1$ была выбрана во время процедуры самосогласованного поля (SCF). Положения атомов в каждой элементарной ячейке релаксировали в рамках скалярно-релятивистского приближения до тех пор, пока силы на каждый атом не стали менее 1 миллиридберг/бор ($\approx 3 \times 10^{-2} \text{ эВ/\AA}$). Спин-орбитальное взаимодействие учитывалось по методу второй вариации со скалярно-релятивистскими орбиталями в качестве базисных функций [27]. Развертка зонной структуры суперячейки проводилась по методике, описанной в работе O. Rubel и др. [28].

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 23-22-00112, <https://rscf.ru/project/23-22-00112/>.

Авторы выражают благодарность лаборатории электронной и спиновой структуры наносистем СПбГУ и Научному парку СПбГУ за помощь в проведении исследований и использование оборудования.

1. C. L. Kane and E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. **95**, 146802 (2005).
2. V. T. Phong, N. R. Walet, and F. Guinea, 2D Materials **5**, 014004 (2017).
3. В. Н. Меньшов, И. А. Швец, Е. В. Чулков, Письма в ЖЭТФ **110**, 777 (2019).
4. A. Eryzhenkov, A. Tarasov, A. Shikin, and A. Rybkin, Symmetry **15**(2), 516 (2023).
5. Y. Zhou and F. Liu, Nano Lett. **21**, 230 (2021).
6. А. О. Сбойчаков, А. В. Рожков, А. Л. Рахманов, Письма в ЖЭТФ **116**, 708 (2022).

7. N. Pavlíček, A. Mistry, Z. Majzik, N. Moll, G. Meyer, D. Fox, and L. Gross, *Nature Nanotech.* **12**, 308 (2017).
8. S. Mishra, X. Yao, Q. Chen, K. Eimre, O. Gröning, R. Ortiz, M. Di Giovannantonio, J. C. Sancho-García, J. Fernández-Rossier, C. A. Pignedoli, K. Müllen, P. Ruffieux, A. Narita, and R. Fasel, *Nat. Chem.* **13**, 581 (2021).
9. F. D. M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2015 (1988).
10. Д. Н. Дресвянкин, А. В. Рожков, А. О. Сбойчаков, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 824 (2021).
11. H. Takenaka, S. Sandhoefer, A. A. Kovalev, and E. Y. Tsymlal, *Phys. Rev. B* **100**, 125156 (2019).
12. A. G. Rybkin, A. A. Rybkina, M. M. Otrokov, O. Y. Vilkov, I. I. Klimovskikh, A. E. Petukhov, M. V. Filianina, V. Y. Voroshnin, I. P. Rusinov, A. Ernst, A. Arnau, E. V. Chulkov, and A. M. Shikin, *Nano Lett.* **18**, 1564 (2018).
13. 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).
14. J. Ślawińska and J. I. Cerdá, *Phys. Rev. B* **98**, 075436 (2018).
15. E. Voloshina and Y. Dedkov, *Advanced Theory and Simulations* **1**, 1800063 (2018).
16. J. Ślawińska and J. I. Cerdá, *New J. Phys.* **21**, 073018 (2019).
17. B. Monserrat and D. Vanderbilt, arXiv:1711.06274v1 (2017).
18. M. Schlipf and F. Giustino, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 237601 (2021).
19. L. P. Nielsen, *The Nucleation and Growth of Au on Ni(110) and Ni(111): A Scanning Tunneling Microscopy Study*, *Phd thesis*, University of Aarhus, Aarhus (1995); https://phys.au.dk/fileadmin/site_files/publikationer/phd/Lars_Pleth_Nielsen.pdf.
20. M. Krivenkov, E. Golias, D. Marchenko, J. Sánchez-Barriga, G. Bihlmayer, O. Rader, and A. Varykhalov, *2D Materials* **4**, 035010 (2017).
21. A. A. Rybkina, A. G. Rybkin, I. I. Klimovskikh, P. N. Skirdkov, K. A. Zvezdin, A. K. Zvezdin, and A. M. Shikin, *Nanotechnology* **31**, 165201 (2020).
22. J. Jacobsen, L. P. Nielsen, F. Besenbacher, I. Stensgaard, E. Lægsgaard, T. Rasmussen, K. W. Jacobsen, and J. K. Nørskov, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 489 (1995).
23. A. Bendounan, H. Cercellier, Y. Fagot-Revurat, B. Kierren, V. Yu. Yurov, and D. Malterre, *Phys. Rev. B* **67**, 165412 (2003).
24. G. K. H. Madsen, P. Blaha, K. Schwarz, E. Sjöstedt, and L. Nordström, *Phys. Rev. B* **64**, 195134 (2001).
25. P. Blaha, K. Schwarz, G. K. H. Madsen, K. Dieter, J. Luitz, R. Laskowski, F. Tran, and L. D. Marks, *WIEN2k, An Augmented Plane Wave Plus Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties*, Vienna University of Technology, Austria (2001).
26. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
27. D. D. Koelling and B. N. Harmon, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **10**(16), 3107 (1977).
28. O. Rubel, A. Bokhanchuk, S. J. Ahmed, and E. Assmann, *Phys. Rev. B* **90**, 115202 (2014).

Gauge equivalence between 1 + 1 rational Calogero–Moser field theory and higher rank Landau–Lifshitz equation

K. Atalikov^{+*1)}, A. Zotov^{+**×1)}

⁺Steklov Mathematical Institute of Russian Academy of Sciences, 119991 Moscow, Russia

^{*}National Research Center “Kurchatov Institute”, 123182 Moscow, Russia

[×]National Research University Higher School of Economics, 119048 Moscow, Russia

Submitted 14 March 2023
 Resubmitted 14 March 2023
 Accepted 18 March 2023

DOI: 10.31857/S1234567823080128, EDN: wjlsjw

The 1 + 1 field generalization of the Calogero–Moser model was proposed in [1, 2], see also [3]. The Hamiltonian is given by the following expression:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}^{2dCM} &= \oint dx H^{2dCM}(x), \\ H^{2dCM}(x) &= \sum_{i=1}^N p_i^2 (c - kq_{ix}) - \\ &\quad - \frac{1}{Nc} \left(\sum_{i=1}^N p_i (c - kq_{ix}) \right)^2 - \\ &\quad - \sum_{i=1}^N \frac{k^4 q_{ixx}^2}{4(c - kq_{ix})} + \frac{k^3}{2} \sum_{i \neq j}^N \frac{q_{ix} q_{jxx} - q_{jx} q_{ixx}}{q_i - q_j} - \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{i \neq j}^N \frac{1}{(q_i - q_j)^2} \left[(c - kq_{ix})^2 (c - kq_{jx}) + \right. \\ &\quad \left. + (c - kq_{ix})(c - kq_{jx})^2 - ck^2 (q_{ix} - q_{jx})^2 \right], \end{aligned} \quad (1)$$

where x is the (space) field variable and $k \in \mathbb{C}$ is a constant parameter. The momenta p_i and coordinates q_j are canonically conjugated fields: $\{q_i(x), p_j(y)\} = \delta_{ij} \delta(x - y)$. The model (1) is integrable in the sense that it has algebro-geometric solutions and equations of motion are represented in the Zakharov–Shabat (or Lax or zero curvature) form: $\partial_t U(z) - k \partial_x V(z) + [U(z), V(z)] = 0$, where U - V pair $U^{2dCM}(z), V^{2dCM}(z) \in \text{Mat}(N, \mathbb{C})$ is a pair of matrix valued functions of the fields $p_j(x), q_j(x), j = 1, \dots, N$ and their derivatives. They also depend on the spectral parameter z . Explicit expression for U - V pair can be found in [1, 2]. It was argued in [3] that there exist a gauge transformation $G(z) \in \text{Mat}(N, \mathbb{C})$, which

transforms U - V pair for the field Calogero–Moser model to the one for some Landau–Lifshitz type model:

$$U^{LL}(z) = G(z)U^{2dCM}(z)G^{-1}(z) + k \partial_x G(z)G^{-1}(z). \quad (2)$$

For the $N = 2$ case explicit construction of the matrix $G(z)$ and the change of variables was derived in our paper [4], and the Landau–Lifshitz model for GL_2 rational R -matrix was derived in [5]. The goal of this article is to define the gauge transformation in gl_N case, describe the corresponding Landau–Lifshitz type model and find explicit change of variables using relation (2).

Recently the 1 + 1 field generalization of the so-called rational top model was suggested in [6]. It is given by Landau–Lifshitz type equation, i.e. the field variables are arranged into $N \times N$ matrix S and the Poisson structure is linear: $\{S_{ij}(x), S_{kl}(y)\} = N^{-1} (S_{il}(x) \delta_{kj} - S_{kj}(x) \delta_{il}) \delta(x - y)$. The construction of the Landau–Lifshitz equation and its U - V pair is based on R -matrix satisfying the associative Yang–Baxter equation [7, 8]: $R_{12}^h R_{23}^\eta = R_{13}^\eta R_{12}^{h-\eta} + R_{23}^{\eta-h} R_{13}^h$, $R_{ab}^x = R_{ab}^x(z_a - z_b)$. Suppose $\text{rank}(S) = 1$, so that $S^2 = cS$, $c = \text{tr}(S)$. Then the Landau–Lifshitz equation reads:

$$\partial_t S = k^{-2} c [S, \partial_x^2 S] + 2c [S, J(S)] - 2k [S, E(\partial_x S)], \quad (3)$$

where $E(S) = \text{tr}_2 \left(r_{12}^{(0)} \overset{2}{S} \right)$, $\overset{2}{S} = 1_N \otimes S$ and $J(S) = \text{tr}_2 \left(m_{12}(0) \overset{2}{S} \right)$ are defined through the coefficients of R -matrix expansion in the classical limit $R_{12}^h(z) = \hbar^{-1} 1_N \otimes 1_N + r_{12}(z) + \hbar m_{12}(z) + O(\hbar^2)$ and $r_{12}^{(0)}$ is the coefficient in the expansion $r_{12}(z) = z^{-1} P_{12} + r_{12}^{(0)} + O(z)$, where P_{12} is the permutation operator. Equa-

¹⁾e-mail: kantemir.atalikov@yandex.ru; zotov@mi-ras.ru

tions (3) are Hamiltonian with the following Hamiltonian function:

$$H^{LL} = \oint dy \left(cN \operatorname{tr} \left(S J(S) \right) - \frac{Nk^2}{2c} \operatorname{tr} \left(\partial_y S \partial_y S \right) + kN \operatorname{tr} \left(\partial_y S E(S) \right) \right), \quad S = S(y). \quad (4)$$

In this paper we use the rational R -matrix calculated in [9]. In the $N = 2$ case it reproduces the 11-vertex R -matrix found by I. Cherednik [10]. For $N > 2$ all its properties, different possible forms and explicit expressions for the coefficients of expansions near $z = 0$ and $\hbar = 0$ can be found in [11].

The statement is that by applying the gauge transformation with a certain matrix $G(z)$ we obtain the desired relation (2). Calculations are performed similarly to those in 0 + 1 mechanics [12]. As a result we obtain explicit change of variables expressed through elementary symmetric functions σ_k :

$$S_{ij} = \frac{(-1)^{\varrho(j)+1}}{N} \times \sum_{m=1}^N \frac{(q_m)^{\varrho(i)} (\tilde{p}_m + \frac{k\alpha_{m\bar{x}}}{\alpha_m}) + \alpha_m^2 \varrho(i) (q_m)^{\varrho(i)-1}}{\prod_{l \neq m} (q_m - q_l)} \sigma_{\varrho(j)}(q),$$

$$\tilde{p}_j = p_j - \sum_{l \neq j} \frac{\alpha_j^2}{q_j - q_l} \quad (5)$$

(here $\varrho(i) = i - 1$ for $i \leq N - 1$ and $\varrho(i) = N$ for $i = N$) with the properties

$$\operatorname{Spec}(S) = (0, \dots, 0, c), \quad \operatorname{rk}(S) = 1, \quad \operatorname{tr}(S) = c, \quad S^2 = cS, \quad (6)$$

where $\alpha_i^2 = kq_{ix} - c$. It can be also verified that the Poisson brackets for $S_{ij}(p, q, c)$ calculated through the canonical brackets for p_i, q_j indeed reproduce the linear Poisson structure, so that (5) is a Poisson map. The Hamiltonian (1) of 1 + 1 field Calogero–Moser

model coincides with the one (4) for the Landau–Lifshitz equation under the change of variables (5): $H^{LL}[S(p(x), q(x))] = H^{2dCM}[p(x), q(x)]$.

This work was supported by the Russian Science Foundation under grant # 21-41-09011, <https://rscf.ru/en/project/21-41-09011/>.

This is an excerpt of the article “Gauge equivalence between 1 + 1 rational Calogero–Moser field theory and higher rank Landau–Lifshitz equation”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023600714

1. I. Krichever, *Commun. Math. Phys.* **229**, 229 (2002); arXiv:hep-th/0108110.
2. A. A. Akhmetshin, I. M. Krichever, and Y. S. Volvovski, *Funct. Anal. Appl.* **36**(4), 253 (2002); arXiv:hep-th/0203192.
3. A. Levin, M. Olshanetsky, and A. Zotov, *Commun. Math. Phys.* **236**, 93 (2003); arXiv:nlin/0110045.
4. K. Atalikov and A. Zotov, *J. Geom. Phys.* **164**, 104161 (2021) 104161; arXiv:2010.14297 [hep-th].
5. A. Levin, M. Olshanetsky, and A. Zotov, *Nucl. Phys. B* **887**, 400 (2014); arXiv:1406.2995 [math-ph].
6. K. Atalikov and A. Zotov, *JETP Lett.* **115**, 757 (2022); arXiv:2204.12576 [math-ph].
7. S. Fomin and A. N. Kirillov, *Advances in geometry, Progress in Mathematics book series*, Springer, N.Y. (1999), v. 172, p. 147.
8. A. Polishchuk, *Adv. Math.* **168**(1), 56 (2002); arXiv:math/0008156 [math.AG].
9. A. Levin, M. Olshanetsky, and A. Zotov, *JHEP* **07**, 012 (2014); arXiv:1405.7523 [hep-th].
10. I. V. Cherednik, *Theor. Math. Phys.* **43**(1), 356 (1980).
11. K. Atalikov and A. Zotov, arXiv:2303.02391 [math-ph].
12. G. Aminov, S. Arthamonov, A. Smirnov, and A. Zotov, *J. Phys. A: Math. Theor.* **47**, 305207 (2014); arXiv:1402.3189. [hep-th].

Содержание
Том 117, выпуск 7
Поля, частицы, ядра

Лосев А.С., Сулимов Т.В. Новые объекты в теории рассеяния с симметриями 487

Сергеева Д.Ю., Тищенко А.А. Форм-фактор в переходном излучении от полых пучков 492

Оптика, лазерная физика

Пустынникова В.М., Мусорин А.И., Федянин А.А. Высокодобротные металлинзы инфракрасного диапазона на основе германиевых димеров 498

Раднатаров Д.А., Кобцев С.М., Андриюшков В.А., Басалаев М.Ю., Тайченачев А.В., Радченко М.Д., Юдин В.И. Активное подавление светового сдвига в атомных часах на основе эффекта когерентного пленения населенностей в парах ^{87}Rb с использованием метода фазовых прыжков 504

Макаров А.О., Бражников Д.В., Гончаров А.Н. Наблюдение сильного магнитооптического вращения поляризации света в парах рубидия для приложений к атомной магнитометрии 509

Соколов И.М. Влияние движения атомов на характер субизлучения холодных и разреженных ансамблей, возбуждаемых резонансным импульсным излучением 518

Плазма, гидро- и газодинамика

Керекелица И.В., Мартюшев Л.М. Температурная вращающаяся волна в тонком слое воды . 523

Конденсированное состояние

Красиков К.М., Богач А.В., Шицевалова Н.Ю., Филиппов В.Б., Случанко Н.Е. 3D ($H-\varphi-\theta$) магнитная фазовая диаграмма антиферромагнетика ErV_{12} с динамическими зарядовыми страйпами 530

Бакланова К.Д., Долганов В.К., Кац Е.И., Долганов П.В. Последовательность трехмерных (3D), двумерных (2D) и одномерных (1D) структур, образующихся из холестерического жидкого кристалла при изменении хиральности 537

Сазонов С.В. Ультразвуковое спиновое эхо, обусловленное необратимой фазовой релаксацией .. 543

Воронковский В.А., Герасимова А.К., Алиев В.Ш. Эффект резистивного переключения в мемристорах $\text{TaN}/\text{HfO}_x/\text{Ni}$ с филаментом, сформированным под действием локальной электронно-лучевой кристаллизации 550

Дискуссия

Volovik G.E. Acoustic metric and Planck constants 556

Содержание
Том 117, выпуск 8
Поля, частицы, ядра

Воробьев А.С., Гагарский А.М., Щербаков О.А., Вайшнене Л.А., Барабанов А.Л. Измерение сечения деления ядер ^{238}U нейтронами с энергиями 0.3–500 МэВ 561

Оптика, лазерная физика

Румянцев Б.В., Пушкин А.В., Сулейманова Д.З., Жидовцев Н.Г., Потемкин Ф.В. Генерация перестраиваемого мощного малопериодного терагерцового излучения в органических кристаллах при накачке мультитигаваттными chirпированными лазерными импульсами ближнего ИК диапазона на длине волны 1.24 мкм 571

Архипов Р.М., Архипов М.В., Пахомов А.В., Дьячкова О.О., Розанов Н.Н. Излучение уединенного импульса поляризации, движущегося со скоростью света 580

Рубан В.П. Неоднородно заполненные вихревые кольца в нелинейной оптике 590

Конденсированное состояние

Skornyakov S.L., Trifonov I.O., Anisimov V.I. Coulomb correlations and electronic structure of CuCo_2S_4 : a DFT + DMFT study 596

Якушкин Е.Д. Переключение поляризации монокристалла сегнетовой соли в магнитном поле .. 598

Филиппов А.В., Старов В.М. Электростатическое и ван-дер-ваальсовское взаимодействие наночастиц в электролитах 604

Taran L.S., Elfimova V.Y., Streltsov S.V. Magnetic anisotropy of single-ion magnet $(\text{PPh}_4)_2[\text{ReF}_6] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 612

Кузьмичев С.А., Морозов И.В., Шилов А.И., Рахманов Е.О., Кузьмичева Т.Е. Спектроскопия эффекта многократных андреевских отражений в монокристаллах $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ недодопированного состава 614

Шайхулов Т.А., Сафин А.Р., Станкевич К.Л., Матасов А.В., Темиряева М.П., Винник Д.А., Живулин В.Е., Никитов С.А. Магнитные свойства гетероструктуры $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ на подложке NdGaO_3 620

Рыбкин А.Г., Тарасов А.В., Гогина А.А., Ерыженков А.В., Рыбкина А.А. Устойчивый ферромагнетизм в квазисвободном графене 626

Методы теоретической физики

Atalikov K., Zotov A. Gauge equivalence between $1 + 1$ rational Calogero–Moser field theory and higher rank Landau–Lifshitz equation 632

