

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 114

Выпуск 7

10 октября 2021

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

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

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

Plasmonic metasurface filter with full color sensitivity and narrow band-pass in visible region

R. Zhang^{+*1)}, X. Guo⁺, H. Qiu⁺, X. Liu⁺, M. Han⁺, T. Jia⁺, H. Cheng^{+*1)}

⁺Science and Technology on Low-Light-Level Night Vision Laboratory, Electronic Fourth Road, Yanta District, 710065 Xi'an, China

^{*}Kunming Institute of Physics, Jiaochang East Road, 650221 Kunming, China

Submitted 14 August 2021
Resubmitted 27 August 2021
Accepted 1 September 2021

DOI: 10.31857/S1234567821190010

Recently, metasurfaces have attracted extensive interests in imaging with desirable wavelength, realizing full or multicolor holograms [1, 2], printing [3], and image sensor [4] applications. Among these applications, discrete wavelength selection from white light plays a key role in optical information recording and imaging processes. Plasmonic metasurface filters provide rich platforms for readily realizing desirable wavelength selection due to color tunability, reliability, and multifunctionality. The advantages of metasurface filters beyond traditional filters are ascribed to three aspects. First, plasmonic color filters are based on the resonant interaction between incident electromagnetic field and the micro/nanoscale structures, which selects required wavelength via optimal design of optical elements including size, shape, thickness, chosen materials, and periodicity of unit cell arrays. Second, plasmonic metasurface filters are stable and insensitive to the ambient environment including humidity, high temperature, and even ultraviolet (UV) radiation, which is superior to some organic filters. Third, plasmonic metasurfaces can be employed as on-chip filter to directly integrate with a complementary metal oxide semiconductor (CMOS) image sensor [4, 5], promoting the development of advanced image sensor technology.

Currently, plasmonic-metasurface-based filtering ranging from UV to terahertz region have been investigated with proper design of unit cells and their arrangements. However, for most-investigated visible color filters, filtering with only primary color, weak transmission, and unsatisfied band width remains a bottleneck, which may limit the performance of complex full-color imaging. How to realize full-color filter with high-quality is a main issue for the investigation of plasmonic filters.

In this work, we design and demonstrate a metasurface filter as shown in Fig. 1a, where the metasurface consists of a metal layer and a SiO₂ substrate layer with thicknesses of $t_m = 10$ nm and $t_s = 100$ nm, respectively. Inspired by the typical SRR structure, the metal layer is designed as complementary SRR dimer arrays, which are etched on the aluminum layer. Compared with gold and silver, aluminum is low cost and abundant, which is a kind of high-quality plasmonic material with plasmon tunability ranging from UV to visible light [6].

Since the resonant wavelengths of metasurfaces depend on the design of unit cell, we select the resonant wavelengths of the metasurfaces by scaling the periodic parameters, SRR length and the gap distance. Polarization properties of micro/nanostructured metasurfaces are important for practical photonic devices [7]. Herein, for the visible light with linearly polarized along x -axis ($E_{in,x}$), transmission peaks of the metasurface filter present at 543, 595, 646, 694, 741, and 787 nm with increasing the geometric parameters, realizing visible color filters ranging from green light to red light, as shown in Fig. 1b. The transmission maxima of the metasurface filter are constant as $\sim 47\%$ and the linewidths (full width at half maximum) are ~ 32 nm for these specifications. As for the visible light with linearly polarized along y -axis ($E_{in,y}$) transmission peaks of the metasurface filter present at 417, 458, 494, and 527 nm with increasing the geometric parameters, realizing visible color filters ranging from violet light to green light, as shown in Fig. 1b. The transmission maxima of the metasurface filter are constant as $\sim 41\%$ and the linewidths are ultranarrow as 16 nm for these specifications.

Transmission spectra are closely related to the plasmonic resonances. Based on the plasmonic mode analysis of $E_{in,x}$ and $E_{in,y}$, plane waves, we can make some conclusions as follows: (1) basic magnetic dipoles are induced in the metasurface filter when transmit $E_{in,x}$

¹⁾zhangruoyu19920220@gmail.com; chh600@163.com

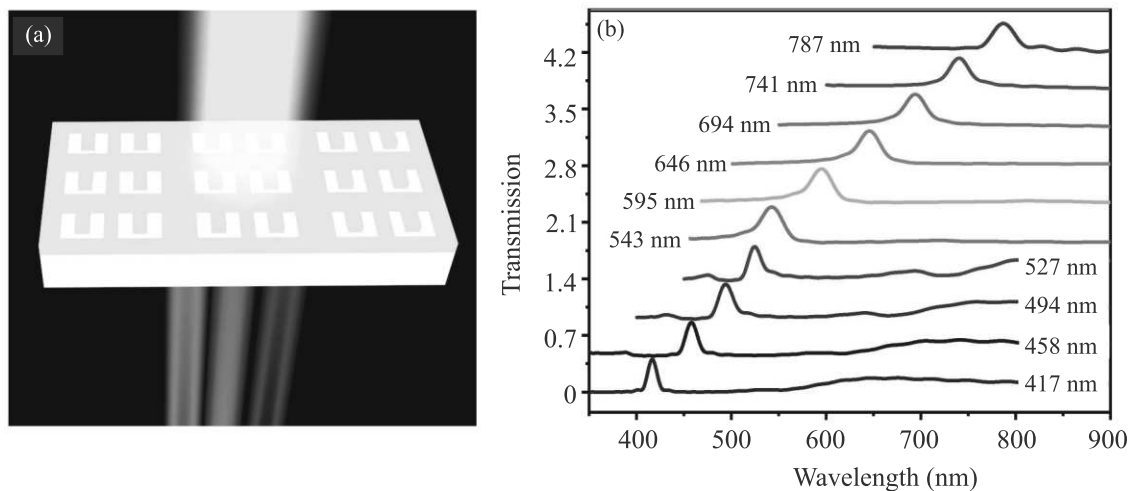


Fig. 1. (Color online) (a) – Schematic illustration of the metasurface filter under linearly polarized white light illumination. (b) – Transmission spectra of the plasmonic metasurface filters with different periodic parameters for linearly polarized visible light along x -axis (543 ~ 787 nm) and y -axis (417 ~ 527 nm)

plane wave, while electric dipoles are generated for $E_{in,y}$ plane wave; (2) plasmonic modes are basically identical as increasing periodic parameters at their resonant wavelengths for both $E_{in,x}$ and $E_{in,y}$ plane waves; (3) magnetic or electric field can be generated in the gap region with proper gap distance between SRRs, which originates from mutual interaction between the SRRs. Based on these conclusions, the polarization dependent filtering property of the metasurface can also be expanded to the dual imaging application.

In order to further examine the filtering performance of the metasurfaces, we explore the transmission spectra with respect to the SRR arm width as this parameter is related to the SRR resonance. The transmission resonant wavelength is tunable under x -polarized white light, while the transmission amplitude is controlled under y -polarized white light with maximum modulation depth of $\sim 92\%$. Furthermore, as for different incidences, the performance of this metasurface filter is guaranteed ranging from 0° to 40° for x -polarized illumination and $0^\circ \sim 30^\circ$ for y -polarized illumination. These results raise prospect of the plasmonic metasurface for tunable, compact, and on-chip filtering elements, promoting its potential in security, data storage, and optical information processing applications.

This is an excerpt of the article “Plasmonic metasurface filter with full color sensitivity and narrow band-pass in visible region”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364021190024

1. W. Wan, J. Gao, and X. Yang, ACS Nano **10**, 10671 (2016).
2. Y.W. Huang, W.T. Chen, W.Y. Tsai, P.C. Wu, C.M. Wang, G. Sun, and D.P. Tsai, Nano Lett. **15**, 3122 (2015).
3. K. Kumar, H. Duan, R.S. Hegde, S.C. Koh, J.N. Wei, and J.K. Yang, Nat. Nanotechnol. **7**, 557 (2012).
4. S. Yokogawa, S.P. Burgos, and H.A. Atwater, Nano Lett. **12**, 4349 (2012).
5. Q. Chen, D. Das, D. Chitnis, K. Walls, T.D. Drysdale, S. Collins, and D.R.S. Cumming, Plasmonics **7**, 695 (2012).
6. M.W. Knight, N.S. King, L. Liu, H.O. Everitt, P. Nordlander, and N.J. Halas, ACS Nano **8**, 834 (2014).
7. A.A. Maksimov, A.B. Peshcherenko, E.V. Filatov, I.I. Tartakovskii, V.D. Kulakovskii, S.G. Tikhodeev, S.V. Lobanov, C. Schneider, and S. Hofling, JETP Lett. **106**, 643 (2017).

Опτικο-терагерцовые солитоны с наклонными фронтами

С. В. Сазонов^{+*×1)}, Н. В. Устинов^{*о}⁺Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия^{*}Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 191991 Москва, Россия[×]Московский авиационный институт (Национальный исследовательский университет), 125993 Москва, Россия^оКалининградский институт управления, 236003 Калининград, Россия

Поступила в редакцию 25 августа 2021 г.

После переработки 28 августа 2021 г.

Принята к публикации 29 августа 2021 г.

Исследован солитоноподобный режим генерации терагерцового излучения оптическими импульсами с наклонными волновыми фронтами в квадратично-нелинейной среде. Показано, что при положительном параметре дисперсии групповой скорости, превышающем определенное критическое значение, которое зависит от угла наклона, и при отрицательной нелинейной восприимчивости в оптическом диапазоне формирование опτικο-терагерцового солитона сопровождается генерацией распространяющегося в другом направлении сугубо терагерцового униполярного солитона.

DOI: 10.31857/S1234567821190022

1. Введение. Одним из наиболее эффективных методов генерации терагерцового излучения является метод, основанный на эффекте оптического выпрямления субпикосекундных и фемтосекундных лазерных импульсов в кристаллах с квадратичной оптической нелинейностью [1–6].

Для генерации терагерцового излучения оптическим методом необходимо выполнение черенковского условия [7]

$$v_g \cos \theta = \frac{c}{n_T}, \quad (1)$$

где $v_g = c/(n_\omega + \omega \partial n_\omega / \partial \omega)$ – групповая скорость оптического импульса на несущей частоте ω , c – скорость света в вакууме, n_T и n_ω – показатель преломления среды в терагерцовой области спектра и на частоте ω соответственно, θ – угол между направлениями распространения оптического импульса и генерируемого терагерцового сигнала.

Из (1) следует, что $v_g \geq c/n_T$. Данное неравенство обычно выполняется в различных одноосных кристаллах.

При условии (1) оптический и терагерцовый импульсы распространяются в разные стороны, отрываясь друг от друга. В результате ослабевает эффективность генерации. В работах [8–11] для повышения данной эффективности использовалась техника наклонных фронтов оптических сигналов. В этом случае θ есть угол между групповыми и фазовыми вол-

новыми фронтами оптического импульса. Здесь терагерцовый сигнал постоянно подпитывается энергией оптического импульса, что приводит к существенному повышению эффективности генерации.

В настоящее время эффективность генерации по энергии данным методом достигает единиц процентов. Интенсивности генерируемых терагерцовых сигналов составляют порядка $\sim 10^8$ Вт/см² [12]. Следовательно, появилась настоятельная необходимость в развитии нелинейной “терагерцовой оптики” [13–18].

Генерируемые оптическим способом терагерцовые импульсы содержат порядка одного периода электромагнитных колебаний, являясь в спектральном смысле широкополосными. Таким образом, они обладают свойствами предельно коротких импульсов. Поэтому при теоретических исследованиях взаимодействия таких импульсов с веществом неприменимо стандартное для квазимонохроматических сигналов приближение медленно меняющихся огибающих (ММО) [19]. В то же время оптический импульс является квазимонохроматическим. Поэтому для него приближение ММО является справедливым.

В коллинеарном режиме ($\theta = 0$), когда оптический и терагерцовый импульсы распространяются в одном и том же направлении, а групповые и фазовые фронты оптического импульса параллельны друг другу, равенство (1) принимает вид $v_g = c/n_T$. В теории нелинейных волн данное равенство называется условием Захарова–Бенни (ЗБ) [20]. В этом случае основные особенности генерации терагерцо-

¹⁾e-mail: sazonov.sergey@gmail.com

вого излучения хорошо описываются солитонными решениями нелинейной системы уравнений Ядзими–Ойкавы (ЯО) для огибающей ψ поля оптического импульса и электрического поля E терагерцовой компоненты [21].

Для теоретического описания процесса генерации при наклонных фронтах оптического импульса необходимо обобщить систему ЯО и проанализировать солитонные решения данной обобщенной системы, чему и посвящена настоящая работа.

2. Система Ядзими–Ойкавы–Кадомцева–Петвиашвили. Пусть оптический импульс и генерируемый им терагерцовый сигнал распространяются в плоскости (z, x) декартовой системы координат. При этом ось x совпадает с оптической осью одноосного кристалла. В этом случае рассматриваемая плоскость (z, x) называется плоскостью главного сечения [22]. Будем считать также, что на входе в кристалл импульс поляризован в плоскости главного сечения, т.е. его электрическое поле E_Σ совпадает с полем необыкновенной волны. При этом фазовые волновые фронты оптического импульса распространяются вдоль оси z , перпендикулярной к оптической оси x одноосного кристалла. В данной ситуации направление электрического поля импульса в кристалле не изменяется [23]. В соответствии с этим при описании распространения импульса можно пользоваться скалярной (однокомпонентной) моделью. Поэтому для суммарного электрического поля E_Σ оптико-терагерцового сигнала справедливо уравнение

$$\frac{\partial^2 E_\Sigma}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_\Sigma}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P_\Sigma}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 E_\Sigma}{\partial x^2}, \quad (2)$$

где c – скорость света в вакууме, P_Σ – суммарный поляризационный отклик кристалла на воздействие электрического поля E_Σ .

При этом электрическое поле E_Σ представим в виде

$$E_\Sigma(z, x, t) = \psi(z, x, t)e^{i(\omega t - kz)} + \psi^*(z, x, t)e^{-i(\omega t - kz)} + E(z, x, t), \quad (3)$$

где ψ – медленно меняющаяся огибающая оптической компоненты, k – волновое число, соответствующее несущей частоте ω .

Учитывая временную дисперсию, а также предполагая, что среда является прозрачной (не поглощающей) как в оптическом, так и в терагерцовом диапазонах, запишем поляризационный отклик P_Σ в виде суммы его линейной и нелинейной частей

$$P_\Sigma = \int_0^\infty \chi_1(t') E_\Sigma(z, x, t - t') dt' +$$

$$+ \int_0^\infty \int_0^\infty \chi_2(t'_1 t'_2) E_\Sigma(z, x, t - t'_1) E_\Sigma(z, x, t - t'_2) dt'_1 dt'_2, \quad (4)$$

где $\chi_1(t')$ и $\chi_2(t'_1, t'_2)$ – соответственно линейная и нелинейная временные восприимчивости.

Считая теперь дисперсию и нелинейность относительно слабыми (что справедливо вдали от линий резонансного поглощения), в линейной части поляризационного отклика используем разложения

$$E(z, x, t - t') = E(z, x, t) - t' \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{t'^2}{2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \dots, \quad (5)$$

$$\psi(z, x, t - t') = \psi(z, x, t) - t' \frac{\partial \psi}{\partial t} + \frac{t'^2}{2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} - \dots, \quad (5a)$$

а в нелинейной части положим

$$E(z, x, t - t'_{1,2}) \approx E(z, x, t), \quad \psi(z, x, t - t'_{1,2}) \approx \psi(z, x, t). \quad (6)$$

Будем полагать также, что значения скоростей v_g и c/n_T настолько близки друг другу, что угол θ можно считать достаточно малым (см. (1)). Поэтому направления распространения обеих компонент (оптической и терагерцовой) близки к направлению оси z . Влияние зависимости поля от поперечной координаты x учтем в параксиальном приближении. В результате, используя для оптической составляющей стандартное приближение ММО [19], а для терагерцовой компоненты – приближение квазиоднаправленного распространения вдоль оси z [24], придем к системе уравнений

$$i \frac{\partial \psi}{\partial z} = -\frac{\beta}{2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \tau^2} + \alpha E \psi + \frac{c}{2n_\omega \omega} \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2}, \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \tau} \left(\frac{\partial E}{\partial z} + \delta \frac{\partial E}{\partial \tau} - \gamma \frac{\partial^3 E}{\partial \tau^3} + \mu E \frac{\partial E}{\partial \tau} + \sigma \frac{\partial}{\partial \tau} |\psi|^2 \right) = \\ = \frac{c}{2n_T} \frac{\partial^2 E}{\partial x^2}. \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь $\tau = t - z/v_g$, $v_g = c/(n_\omega + \omega \partial n_\omega / \partial \omega)$, $n_\omega = \sqrt{1 + 4\pi\chi(\omega)}$, $\chi(\omega) \equiv \int_0^\infty \chi_1(\tau) e^{-i\omega\tau} d\tau$ – линейная восприимчивость среды, соответствующая частоте ω , $\beta = \partial^2 k / \partial \omega^2$ – параметр дисперсии групповой скорости (ДГС) оптической компоненты, $k = n_\omega \omega / c$, $\gamma = 2\pi(\partial^2 \chi / \partial \omega^2)_{\omega=0} / cn_T$ – параметр дисперсии терагерцовой составляющей, $n_T = \sqrt{1 + 4\pi\chi_T}$, $\chi_T \equiv \chi(0) = \int_0^\infty \chi_1(\tau) d\tau$ – терагерцовая восприимчивость среды, $\delta = n_T/c - 1/v_g$ – отстройка обратных скоростей от условия ЗБ, коэффициенты квадратичной нелинейности α , μ и σ выражаются через нелинейные частотные

восприимчивости второго порядка $\chi^{(2)}(\omega_1; \omega_2) = \int_0^\infty \chi_2(t'_1, t'_2) e^{-i(\omega_1 t'_1 + \omega_2 t'_2)} dt'_1 dt'_2$ соотношениями: $\alpha = 4\pi\omega\chi^{(2)}(\omega; 0)v_g/c^2$, $\mu = 4\pi\chi^{(2)}(0; 0)/cn_T$, $\sigma = 4\pi\chi^{(2)}(\omega; -\omega)/cn_T$.

Как линейные, так и нелинейные восприимчивости в оптическом и терагерцовом диапазонах имеют, вообще говоря, различную физическую природу. В оптическом диапазоне восприимчивости среды при воздействии на них фемтосекундных импульсов обусловлены электронно-оптическими квантовыми переходами в атомах или молекулах. В терагерцовом же диапазоне восприимчивости формируются, главным образом, в результате взаимодействия импульса с оптическими колебательными модами ионов в узлах кристаллической решетки.

Для линейных и нелинейных восприимчивостей в оптическом диапазоне наработан достаточный экспериментальный материал [25–27]. Поэтому рассмотрим детальнее линейные и нелинейные восприимчивости в терагерцовом диапазоне. Для этого воспользуемся классическим уравнением Лоренца, дополненным квадратичным ангармонизмом:

$$\frac{\partial^2 q}{\partial t^2} + \omega_T^2 q - \mu q^2 = \frac{e}{N} E, \quad (9)$$

где q – относительное смещение ионов из положения равновесия в узле кристаллической решетки в направлении электрического поля терагерцовой компоненты, ω_T – характерная собственная частота оптической колебательной моды, e – элементарный электрический заряд, M – приведенная масса ионов, параметр нелинейности μ выражается через коэффициент линейного теплового расширения α_t в направлении оптической оси с помощью соотношения [28]

$$\mu = a_1 \frac{M\omega_T^4}{k_B} \alpha_t.$$

Здесь a_1 – постоянная кристаллической решетки, k_B – постоянная Больцмана.

Пусть характерные частоты спектра терагерцового импульса длительностью τ_T лежат ниже резонансной частоты ω_T , так что выполняется условие $(\omega_T \tau_T)^2 \gg 1$. Тогда первое слагаемое в левой части (9) является малым по сравнению со вторым слагаемым, а уравнение (9) удобно переписать в виде

$$q = \frac{e}{M\omega_T^2} E + \frac{\mu}{\omega_T^2} q^2 - \frac{1}{\omega_T^2} \frac{\partial^2 q}{\partial t^2}. \quad (9a)$$

Отсюда в первом приближении по малым второму и третьему слагаемым в правой части будем иметь

$$q = \frac{e}{M\omega_T^2} E + \frac{e^2 \mu}{M^2 \omega_T^6} E^2 - \frac{\partial^2 E}{\partial t^2}.$$

Таким образом, для терагерцового поляризационного отклика $P_T = enq$, где n – концентрация узлов кристалла, находим

$$P_T = \chi_T E + \chi^{(2)}(0; 0) E^2 - \frac{\chi_T}{\omega_T^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2},$$

где $\chi_T = \frac{\omega_p^2}{4\pi\omega_T^2}$, $\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi n e^2}{M}}$ – ионная плазменная частота,

$$\chi^{(2)}(0; 0) = e a_1 \frac{\alpha_t \chi_T}{k_B} > 0. \quad (10)$$

Легко видеть, что $\chi_T/\omega_T^2 = (\partial^2 \chi / \partial \omega^2)_{\omega=0}$. Тогда выражение для коэффициента γ в уравнении (8) имеет вид

$$\gamma = \frac{2\pi\chi_T}{cn_T\omega_T^2} > 0. \quad (11)$$

Пренебрегая в (7) и (8) зависимостью от поперечной координаты, после интегрирования (8) получим

$$i \frac{\partial \psi}{\partial z} = -\frac{\beta}{2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \tau^2} + \alpha E \psi, \quad (12)$$

$$\frac{\partial E}{\partial z} + \delta \frac{\partial E}{\partial \tau} - \gamma \frac{\partial^3 E}{\partial \tau^3} + \mu E \frac{\partial E}{\partial \tau} + \sigma \frac{\partial}{\partial \tau} |\psi|^2 = 0. \quad (13)$$

Полагая здесь $\delta = \gamma = \mu = 0$, будем иметь систему ЯО, описывающую солитонный режим генерации терагерцового излучения в случае коллинеарного распространения оптического и терагерцового импульсов [21]. При $\psi = 0$ уравнения (7) и (12) обращаются в тождество $0 = 0$. В то же время (13) и (8) переходят, соответственно, в уравнения Кортевега–де Вриза (КдВ) и Кадомцева–Петвиашвили (КП) [29].

Ниже уравнения (7), (8) будем называть системой Ядзимы–Ойкавы–Кадомцева–Петвиашвили (ЯО–КП), а уравнения (12), (13) – системой Ядзимы–Ойкавы–Кортевега–де Вриза (ЯО–КдВ).

3. Физический анализ решений в виде “косых” солитонов. В работах [30, 31] было найдено солитоноподобное решение системы ЯО–КдВ. Обобщая его на случай зависимости поля от поперечной координаты, найдем решение системы ЯО–КП (7), (8) в виде “косого” солитона:

$$\psi = \psi_m e^{i(\kappa z - \Omega \tau)} \text{sech}^2 \left[\frac{t - (z \cos \theta + x \sin \theta)/v}{2\tau_p} \right], \quad (14)$$

$$E_s = -E_{ms} \text{sech}^2 \left[\frac{t - (z \cos \theta + x \sin \theta)/v}{2\tau_p} \right], \quad (15)$$

где амплитуды компонент

$$\psi_m = \frac{3}{4\alpha\tau_p^2} \times \quad (16)$$

$$\times \sqrt{\frac{1}{2\sigma} \left(\beta - \frac{c}{n_\omega\omega} \frac{\sin^2 \theta}{v^2} \right) \left[4\alpha\gamma - \mu \left(\beta - \frac{c}{n_\omega\omega} \frac{\sin^2 \theta}{v^2} \right) \right]},$$

$$E_{ms} = \frac{3}{4\alpha\tau_p^2} \left(\beta - \frac{c}{n_\omega\omega} \frac{\sin^2 \theta}{v^2} \right). \quad (17)$$

При этом групповая скорость солитона и параметр κ определяются соответственно выражениями

$$v = \frac{v_g \cos \theta}{1 - v_g \beta \Omega}, \quad (18)$$

$$\kappa = \frac{\beta}{2} \left[\frac{1}{\tau_p^2} \left(1 - \frac{c}{n_\omega\omega\beta} \frac{\sin^2 \theta}{v^2} \right) - \Omega^2 \right]. \quad (19)$$

Сдвиг Ω несущей частоты оптической компоненты, угол θ между фазовыми и групповыми фронтами оптического импульса и временная длительность τ_p импульса связаны между собой соотношением

$$\beta\Omega = -\delta + \frac{\gamma}{\tau_p^2} + \frac{c}{2n_T} \frac{\sin^2 \theta}{v^2}. \quad (20)$$

Электрическое поле терагерцовой компоненты в (15) мы снабдили нижним индексом “s”, чтобы подчеркнуть, что эта компонента захвачена в оптико-терагерцовый солитон.

Солитоноподобное решение (14)–(20) обладает двумя свободными параметрами, в качестве которых можно выбрать, например, угол θ и частотный сдвиг Ω . Зная эти параметры, с помощью выражения (18) найдем скорость солитона. Далее с помощью (18) и (20) определяется временная длительность τ_p . Из (16) и (17) находятся амплитуды обеих компонент солитона.

Терагерцовая компонента солитона является униполярной, поэтому его “электрическая площадь” $\int_{-\infty}^{+\infty} E_s dt \neq 0$.

Следует отметить, что многие известные оптические эффекты проявляют себя самым неожиданным образом при использовании униполярных импульсов [32, 33]. Кроме того, оптика униполярных импульсов может найти и многие оригинальные приложения [32, 34].

Интегрируя (8) по τ и учитывая, что на бесконечности поле исчезает вместе со всеми своими производными, будем иметь $\frac{\partial^2}{\partial x^2} \int_{-\infty}^{+\infty} E d\tau = 0$. Отсюда $S \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} E d\tau = f_1(z)x + f_2(z)$, где $f_1(z)$ и $f_2(z)$ – некоторые функции. После интегрирования по τ уравнение

(8) может быть переписано в виде закона сохранения $\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{\partial j_\tau}{\partial \tau} + \frac{\partial j_x}{\partial x} = 0$, где $j_\tau = \delta E - \gamma \frac{\partial^2 E}{\partial \tau^2} + \frac{\mu}{2} E^2 + \sigma |\psi|^2$, $j_x = \frac{c}{2n_T} \frac{\partial}{\partial x} \int_{-\infty}^{\tau} E d\tau$. Отсюда, учитывая, что на бес-

конечности $j_\tau = j_x = 0$, получим $\frac{d}{dz} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} E d\tau = \frac{d}{dz} \int_{-\infty}^{+\infty} S dx = 0$. Следовательно, $\int_{-\infty}^{+\infty} S dx = \text{const}$. Учитывая полученное выше выражение для S , запишем $f_1(z)x^2/2 + f_2(z)x = \text{const}$. Очевидно, это возможно, только если $f_1(z) = f_2(z) = \text{const} = 0$. Таким образом,

$$S \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} E dt = 0. \quad (21)$$

Данное равенство отмечалось в работах [35, 36]. Заметим, что оно является частным случаем общего правила сохранения “электрической площади”, вытекающего из уравнений Максвелла [37, 38].

Здесь равенство нулю “электрической площади” терагерцовой компоненты объясняется тем, что на входе в среду терагерцовая компонента отсутствует. Ее генерация происходит в среде.

Как замечено выше, “электрическая площадь” импульса (15) отлична от нуля. Поэтому в данном солитоноподобном решении недостает еще какой-то части терагерцовой компоненты. Численные эксперименты, проведенные в [36] с одномерной системой (12), (13) при $\mu = 0$, показали, что помимо терагерцовой компоненты, захваченной оптическим импульсом в оптико-терагерцовый солитон, появляется еще одна терагерцовая составляющая противоположной полярности. Данная составляющая не захватывается оптическим импульсом, а распространяется в свободном режиме. Поэтому, чтобы описать динамику этой терагерцовой компоненты, следует в (8) положить $\psi = 0$. В результате будем иметь уравнение КП, решение которого в виде сугубо терагерцового “косого” солитона имеет вид [29, 39]

$$E_T = -E_{mT} \text{sech}^2 \left[\frac{t - (z \cos \theta_T + x \sin \theta_T)/v_T}{2\tau_T} \right], \quad (22)$$

где

$$E_{mT} = \frac{3\gamma}{\mu\tau_T^2}, \quad (23)$$

а скорость v_T связана с временной длительностью τ_T и углом θ_T с помощью соотношения

$$\frac{\gamma}{\tau_T^2} = \frac{n_T}{c} - \frac{\cos \theta_T}{v_T} - \frac{c}{2n_T} \frac{\sin^2 \theta_T}{v_T^2}. \quad (24)$$

Теперь мы можем с хорошей точностью записать для терагерцовой компоненты $E = E_s + E_T$. “Электрическая площадь” данной суммарной терагерцовой компоненты должна обращаться в нуль. Тогда из (21), (15), (17), (22), а также из выражений для μ и α приходим к равенству, которое связывает длительности терагерцовой компоненты, захваченной в оптико-терагерцовый солитон, и компоненты, распространяющейся в свободном солитонном режиме:

$$\frac{\tau_p}{\tau_T} = -\frac{\chi^{(2)}(0;0)}{4\chi^{(2)}(\omega;0)\gamma\omega} \left(\beta - \frac{c}{n_\omega\omega} \frac{\sin^2\theta}{v^2} \right). \quad (25)$$

Для выполнения данного условия правая часть в (25) должна быть положительной. Вместе с этим подкоренное выражение в (16) также должно быть положительным.

Пусть вначале

$$\beta > \frac{c}{n_\omega\omega} \frac{\sin^2\theta}{v^2} \approx \frac{c}{n_\omega\omega v_g^2} \text{tg}^2\theta. \quad (26)$$

Тогда, как видно из (25), нелинейные восприимчивости $\chi^{(2)}(0;0)$ и $\chi^{(2)}(\omega;0)$ должны иметь противоположные знаки. Такое возможно, так как нелинейные восприимчивости в разных частотных диапазонах имеют, как было замечено выше, различную физическую природу. Квадратичная нелинейность, определяемая восприимчивостью $\chi^{(2)}(\omega;0)$, формируется в оптическом диапазоне и вызвана электронно-оптическими переходами. В свою очередь терагерцовая нелинейная восприимчивость $\chi^{(2)}(0;0)$ формируется за счет ангармонизма оптических колебательных мод ионов в кристалле. Согласно выражению (10), $\chi^{(2)}(0;0) > 0$. Следовательно, необходимо, чтобы $\chi^{(2)}(\omega;0) < 0$. Тогда, как видно из (16), подкоренное выражение положительно, если $\sigma \sim \chi^{(2)}(\omega;-\omega) < 0$. Такая ситуация реализуется, например, в кристалле LiNbO_3 [25–27]. Полагая в (2) $\beta \sim (\omega v_g)^{-1}$, запишем $\frac{c}{n_\omega v_g} \text{tg}^2\theta < 1$. Таким образом, условие (25) может быть выполнено при достаточно малых углах θ . Пусть, например, $\frac{c}{n_\omega v_g} \text{tg}^2\theta \ll 1$. Тогда равенство (24) примет вид

$$\frac{\tau_p}{\tau_T} \approx -\frac{\beta\chi^{(2)}(0;0)}{4\gamma\omega\chi^{(2)}(\omega;0)}. \quad (25a)$$

Учитывая (11), а также использованное выше оценочное выражение для β , запишем

$$\frac{\tau_p}{\tau_T} \sim \left(\frac{\omega_T}{\omega} \right)^2 \frac{\chi^2(0;0)}{\chi_T|\chi^{(2)}(\omega;0)|}.$$

Подставляя в (10) для ниобата лития $a_1 \approx 5 \times 10^{-8}$ см, $\alpha_t \sim 10^{-5}/^\circ\text{C}$, $\chi_T \sim 1$ [25–27, 40], найдем

$\chi^{(2)}(0;0) \sim 10^{-6}$ СГСЭ. В то же время $\chi^{(2)}(\omega;0) \sim 10^{-7}$ СГСЭ. Учитывая также, что $\omega_T \sim 5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$, $\omega \sim 10^{15} \text{ с}^{-1}$, будем иметь $\tau_p/\tau_T \sim 10^{-2}$. Таким образом, длительность сугубо терагерцового солитона в кристалле ниобата лития оказывается на два порядка больше длительности оптико-терагерцового солитона.

При принятых выше условиях из (16), (17) и (23) находим

$$\begin{aligned} \psi_m &\sim \frac{1}{\tau_p^2} \sqrt{\frac{\beta\gamma}{\alpha\sigma}} \sim \\ &\sim \frac{1}{\omega\omega_T\tau_p^2 \sqrt{\chi^{(2)}(\omega;0)\chi^{(2)}(\omega;-\omega)}} \sim 10^6 \text{ СГСЭ}, \\ E_{ms} &\sim \frac{\beta}{\alpha\tau_p^2} \sim \frac{1}{4\pi(\omega\tau_p)^2\chi^{(2)}(\omega;0)} \sim 10^2 \text{ СГСЭ}, \\ E_{mT} &\sim \frac{\gamma}{\mu\tau_T^2} \sim \frac{\chi_T}{(\omega_T\tau_T)^2\chi^{(2)}(0;0)} \sim 10 \text{ СГСЭ}. \end{aligned}$$

Отсюда для пиковых интенсивностей имеем $I_o \sim c\psi_m^2/4\pi \sim 10^{10} \text{ Вт/см}^2$, $I_s \sim cE_{ms}^2/4\pi \sim 10^6 \text{ Вт/см}^2$, $I_T \sim cE_{mT}^2/4\pi \sim 10^4 \text{ Вт/см}^2$.

Оценим дистанции, на которых могут сформироваться рассмотренные солитоны. Эти дистанции по порядку величины равны дисперсионным длинам. Для дисперсионной длины оптико-терагерцового солитона получаем $l_{ds} \sim \tau_p^2/\beta \sim c\tau_p\omega\tau_p \sim 10^{-1}$ см. В то же время дисперсионная длина сугубо терагерцового солитона $l_{dt} \sim \tau_T^3/\gamma \sim c\tau_T(\omega_T\tau_T)^2 \sim 10$ м. Таким образом, дистанции, на которых способен сформироваться сугубо терагерцовый солитон, на четыре порядка превышают дистанции формирования оптико-терагерцового солитона.

На рисунке 1 схематически изображено распространение оптико-терагерцового и сугубо терагерцового солитонов.

Положив в (24) $\theta_T = 0$, получим следующее выражение для скорости сугубо терагерцового солитона: $v_T = \frac{c/n_T}{1-c\gamma/n_T\tau_T^2}$. Отсюда и из (18) приходим к выводу, что скорости распространения обоих солитонов вдоль своих осей равны, если

$$\frac{v_g \cos\theta}{1-v_g\beta\Omega} = \frac{c/n_T}{1-c\gamma/n_T\tau_T^2}. \quad (27)$$

Пренебрегая в знаменателях малыми нелинейными поправками в сравнении с единицей, придем к равенству (1).

Пусть теперь

$$\beta < \frac{c}{n_\omega\omega} \frac{\sin^2\theta}{v^2} \approx \frac{c}{n_\omega\omega v_g^2} \text{tg}^2\theta. \quad (28)$$

В этом случае условия положительности правой части в (25) и подкоренного выражения в (16) совместны только, если $\sigma \sim \chi^{(2)}(\omega;-\omega) < 0$ и $\alpha \sim \chi^{(2)}(\omega;0) > 0$. Таким образом, две нелинейные

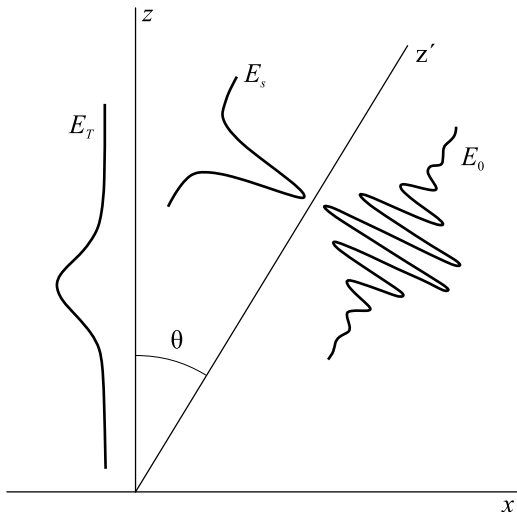


Рис. 1. Схематическое изображение распространения опико-терагерцовых и сугубо терагерцовых импульсов при угле θ между фазовой и групповой скоростями оптического сигнала; фазовые фронты распространяются в направлении оси z , а групповые – в направлении оси $z' = z \cos \theta + x \sin \theta$; при условии (26) формируются распространяющиеся в различных направлениях опико-терагерцовый $E_0 + E_s$, где $E_0 = \psi(z, x, t)e^{i(\omega t - kz)} + \text{с.с}$ (см. (3)), и сугубо терагерцовый E_T солитоны

восприимчивости, формируемые в оптическом диапазоне, должны быть противоположных знаков. Такая ситуация вряд ли возможна в реальном эксперименте. Таким образом, при условии (25), вбирающем в себя случай аномальной ДГС ($\beta < 0$), полярности солитонных решений (15) и (22) совпадают. Это противоречит условию (21). Следовательно, при условии (28) терагерцовый солитон (22) сформироваться не может. Данный случай требует отдельного рассмотрения, выходящего за рамки настоящей работы.

4. Заключение. Таким образом, в настоящей работе на основе предложенного подхода исследован солитоподобный режим генерации терагерцового излучения оптическими импульсами с наклонными фронтами. Условие (21) равенства нулю электрической площади терагерцового излучения позволило прийти к выводу о том, что помимо опико-терагерцового солитона при условии (26) должен также генерироваться отдельный сугубо терагерцовый сигнал. При этом временная длительность терагерцового солитона может на порядки быть больше, а интенсивность – на порядки меньше, чем соответственно длительность и интенсивность опико-терагерцового солитона. Дистанция формирования терагерцового солитона также на порядки превышает дистанцию, на которой формируется опико-терагерцовый солитон.

Рассмотренные здесь опико-терагерцовые солитоны с наклонными волновыми фронтами, скорее всего, не являются солитонами в строгом математическом смысле, связанным с вопросом интегрируемости [19, 28, 38, 41]. По всей видимости, система ЯО–КП (7), (8), как и система ЯО–КП (12), (13), не является интегрируемой. Однако, следуя уже сложившейся в нелинейной оптике традиции [42], мы называем здесь солитонами локализованные решения, не вдаваясь в вопрос интегрируемости уравнений, их порождающих.

Очень важным является вопрос об устойчивости рассмотренных здесь солитонов по отношению к поперечным возмущениям. Речь здесь прежде всего идет о возможном развитии модуляционной и изгибной неустойчивостей. Соответствующее исследование, которое мы планируем провести отдельно, может быть основано на методе усредненного лагранжиана, наподобие того, как это сделано в работе [43] для системы ЯО.

Не исключено, что отмеченная здесь корреляция параметров опико-терагерцовых и сугубо терагерцовых сигналов может рассматриваться как одно из проявлений корреляций между угловыми модами опико-терагерцового поля при сильно-невырожденном спонтанном параметрическом рассеянии, исследованном в работе [44] для бифотонов. Разумеется, для строгого анализа здесь необходимо рассмотрение с позиций квантования электромагнитного поля.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 19-02-00234).

1. У. А. Абдуллин, Г. А. Ляхов, О. В. Руденко, А. С. Чиркин, ЖЭТФ **66**, 1295 (1974) U. A. Abdullin, G. A. Lyakhov, O. V. Rudenko, and A. S. Chirkin, Sov. Phys. JETP **39**, 633 (1974)].
2. Д. А. Багдасарян, А. О. Макарян, П. С. Погосян, Письма в ЖЭТФ **37**, 498 (1983) [D. A. Bagdasaryan, A. O. Makaryan, and P. S. Pogosyan, JETP Lett. **37**, 594 (1983)].
3. D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman, Phys. Rev. Lett. **53**, 1555 (1984).
4. С. В. Сазонов, Письма в ЖЭТФ **96**, 281 (2012) [S. V. Sazonov, JETP Lett. **96**, 263 (2012)].
5. А. Н. Бугай, ЭЧАЯ **50**, 185 (2019) [A. N. Bugay, Physics of Particles and Nuclei **50**, 210 (2019)].
6. А. Н. Тучак, Г. Н. Гольцман, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, С. В. Селиверстов, М. И. Финкель, А. В. Шепелев, П. В. Якунин, Письма в ЖЭТФ **96**, 97 (2012) [A. N. Tuchak, G. N. Gol'tsman, G. Kh. Kitaeva, A. N. Penin, S. V. Seliverstov,

- M. I. Finkel, A. V. Shepelev, and P. V. Yakunin, JETP Lett. **96**, 94 (2012)].
7. G. Kh. Kitaeva, Laser Phys. Lett. **5**, 559 (2008).
8. J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, Opt. Express **10**, 1161 (2002).
9. А. Г. Степанов, А. А. Мельников, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, Письма в ЖЭТФ **85**, 279 (2007) [A. G. Stepanov, A. A. Mel'nikov, V. O. Kompanets, and S. V. Chekalin, JETP Lett. **85**, 227 (2007)].
10. M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, and V. V. Tsarev, J. Appl. Phys. **104**, 073105 (2008).
11. J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Barta, and K. A. Nelson, JOSA B **25**, 6 (2008).
12. А. Н. Тсупкин, М. В. Мельник, М. О. Zhukova, I. O. Vorontsova, S. E. Putilin, S. A. Kozlov, and X.-Ch. Zhang, Opt. Express **27**, 10419 (2019).
13. С. В. Сазонов, ЖЭТФ **146**, 483 (2014) [S. V. Sazonov, JETP **119**, 423 (2014)].
14. С. В. Сазонов, Н. В. Устинов, ЖЭТФ **151**, 249 (2017) [S. V. Sazonov and N. V. Ustinov, JETP Lett. **124**, 213 (2017)].
15. С. В. Сазонов, Н. В. Устинов, Письма в ЖЭТФ **112**, 30 (2020) [S. V. Sazonov and N. V. Ustinov, JETP Lett. **112**, 24 (2020)].
16. А. Г. Казарян, ЖЭТФ **159**, 952 (2021) [A. G. Ghazaryan, JETP **132**, 843 (2021)].
17. И. С. Абрамов, Е. Д. Господчиков, А. Г. Шалашов, ЖЭТФ **159**, 270 (2021) [I. S. Abramov, E. D. Gospodchikov, and A. G. Shalashov, JETP **132**, 223 (2021)].
18. С. А. Шленов, Е. В. Васильев, С. В. Чекалин, В. О. Компанец, Р. В. Скиданов, ЖЭТФ **159**, 400 (2021) [S. A. Shlenov, E. V. Vasilyev, S. V. Chekalin, V. O. Kompanets, and R. V. Skidanov, JETP **132**, 334 (2021)].
19. С. А. Ахманов, В. А. Выслоух, А. С. Чиркин, *Оптика фемтосекундных лазерных импульсов*, Наука, М. (1988).
20. Р. Додд, Дж. Эйлбек, Дж. Гиббон, Х. Моррис, *Солитоны и нелинейные волновые уравнения*, Мир, М. (1988) [R. K. Dodd, J. C. Eilbeck, J. Gibbon, and H. C. Morris, *Solitons and Nonlinear Wave Equations*, Academic Press, N.Y. (1982)].
21. С. В. Сазонов, А. Ф. Соболевский, Письма в ЖЭТФ **75**, 746 (2002) [S. V. Sazonov and A. F. Sobolevskii, JETP Lett. **75**, 621].
22. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, М. (1973) [M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press, N.Y. (1968)].
23. С. В. Сазонов, А. Ф. Соболевский, ЖЭТФ **123**, 1160 (2003) [S. V. Sazonov and A. F. Sobolevskii, JETP **96**, 1019 (2003)].
24. Э. М. Беленов, А. В. Назаркин, Письма в ЖЭТФ **100**, 252 (1990) [E. M. Belenov and A. V. Nazarkin, JETP Lett. **51**, 288 (1990)].
25. D. N. Nikogosyan, *Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey*, Springer, N.Y. (2005).
26. Д. В. Сизмин, *Нелинейная оптика*, Саровский физико-технический институт-филиал НИЯУ МИФИ, Саров (2015).
27. R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, Elsevier Inc., Amsterdam (2008).
28. K. Dolgaleva, D. V. Materikina, R. W. Boyd, and S. A. Kozlov, Phys. Rev. A **92**, 023809 (2015).
29. В. Е. Захаров, С. В. Манаков, С. П. Новиков, Л. П. Питаевский, *Теория солитонов: метод обратной задачи*, Наука, М. 1980 [V. E. Zakharov, S. V. Manakov, S. P. Novikov, and L. P. Pitaevskii, *Theory of Solitons: The Inverse Scattering Method*, Consultants Bureau, N.Y. (1984)].
30. E. Gromov and B. Malomed, Chaos **27**, 113107 (2017).
31. L. A. Cisneros-Ake and J. F. Solano Pelaez, Physica D **346**, 20 (2017).
32. Р. М. Архипов, Письма в ЖЭТФ **113**, 636 (2021) [R. M. Arkhipov, JETP Lett. **113**, 611 (2021)].
33. М. В. Баистракова, Н. В. Кленов, А. М. Сатанин, ЖЭТФ **158**, 579 (2020) [M. V. Basrakova, N. V. Klenov, and A. M. Satanin, JETP **131**, 507 (2020)].
34. Н. Н. Розанов, Н. В. Высотина, ЖЭТФ **157**, 63 (2020) [N. N. Rosanov and N. V. Vysotina, JETP **130**, 52 (2020)].
35. С. А. Козлов, С. В. Сазонов, ЖЭТФ **111**, 404 (1997) [S. A. Kozlov and S. V. Sazonov, JETP **84**, 221 (1997)].
36. А. Н. Бугай, С. В. Сазонов, Письма в ЖЭТФ **87**, 470 (2008) [A. N. Bugai and S. V. Sazonov, JETP Lett. **87**, 403 (2008)].
37. Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **107**, 761 (2009) [N. N. Rosanov, Optics and Spectroscopy **107**, 721 (2009)].
38. Н. Н. Розанов, Р. М. Архипов, М. В. Архипов, УФН **188**, 1347 (2018) [N. N. Rosanov, R. M. Arkhipov, and M. V. Arkhipov, Phys.-Uspekhi **61**, 1227 (2018)].
39. М. Абловиц, Х. Сигур, *Солитоны и метод обратной задачи*, Мир, М. (1987) [M. J. Ablowitz and H. Segur, *Solitons and Inverse Scattering Transform*, SIAM, Philadelphia (1981)].
40. М. А. Окатов, *Справочник технолога-оптика*, Политехника, СПб. (2004).
41. А. И. Конюхов, Е. В. Щуркин, Л. А. Мельников, А. А. Сысолятин, К. С. Гочелашвили, ЖЭТФ **155**, 446 (2019) [A. I. Konyukhov, E. V. Shchurkin, L. A. Mel'nikov, A. A. Sysolyatin, and K. S. Gochelashvili, JETP **128**, 384 (2019)].
42. Ю. С. Кившарь, Г. П. Агравал, *Оптические солитоны: от волоконных световодов к фотонным кристаллам*, Физматлит, М. (2005) [Yu. S. Kivshar and G. P. Agrawal, *Optical Solitons: From Fibers to Photonic Crystals*, Academic Press, N.Y. (2003)].
43. С. В. Сазонов, Письма в ЖЭТФ **112**, 305 (2020) [S. V. Sazonov, JETP Lett. **112**, 283 (2020)].
44. П. А. Прудковский, Письма в ЖЭТФ **114**, 204 (2021).

Диагностика наносистем с использованием ультракоротких рентгеновских импульсов: теория и эксперимент (Миниобзор)

М. К. Есеев, В. И. Матвеев, Д. Н. Макаров¹⁾

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

Поступила в редакцию 22 июля 2021 г.

После переработки 24 августа 2021 г.

Принята к публикации 25 августа 2021 г.

Рентгеноструктурный анализ (РСА) – это один из самых известных и используемых методов исследования структуры вещества. Хорошо известно, что рассеяние рентгеновских ультракоротких импульсов (УКИ) может быть использовано в РСА. При рассеянии таких импульсов на различных многоатомных объектах и наносистемах возникают дифракционные картины, которые несут информацию не только о структуре объекта, но и о динамике протекающих процессов в этом объекте. На сегодняшний день существует техническая возможность создания мощных источников УКИ с фемто- и аттосекундной длительностью импульса. Несмотря на это, в РСА при использовании УКИ не всегда применяют новые теории, учитывающие специфику взаимодействия таких импульсов с веществом. Учет такой специфики приведет к лучшему раскрытию возможностей источников УКИ и новым научным результатам. Здесь представлен миниобзор по рентгеновским источникам УКИ, широко используемым методам и новым теориям РСА, учитывающим специфику взаимодействия таких импульсов с веществом, а также современным экспериментам с использованием УКИ.

DOI: 10.31857/S1234567821190034

1. Введение. Рентгеноструктурный анализ (РСА) – это один из важнейших методов изучения структуры и свойств вещества, который основан на использовании дифракции рентгеновского излучения [1–4]. Этим методом были определены структуры большинства кристаллов и многих молекул. РСА лежит в основе многих современных открытий в области физики, химии, биологии, медицины и кристаллографии, например, [2]. В настоящее время РСА имеет много направлений, которые дополняются и расширяются в связи с созданием новых типов источников излучения, увеличением мощности, уменьшением длительности ультракоротких импульсов и др. [5–9]. Под ультракороткими импульсами (УКИ) в современной литературе обычно подразумевают импульсы длительностью τ порядка пикосекунды (10^{-12} с) и менее, хотя это достаточно условное определение и не отражает полностью данный термин. В целом под УКИ следует понимать импульсы, время действия которых на изучаемую систему много меньше, чем характерные времена самой системы.

Теоретическая база РСА заложена достаточно давно, с пионерских работ Макс фон Лауэ, который

в 1914 г. получил Нобелевскую премию по физике за открытие того, как кристаллы могут дифрагировать рентгеновские лучи [2]. Важность этого направления можно оценить, исходя из числа Нобелевских премий за работы, связанные с рентгеновской кристаллографией, которых в настоящее время более 20. Ключевой величиной в рентгеновском рассеянии является дифференциальная вероятность рассеяния (DSP), которая связана с преобразованием Фурье распределения электронной плотности $\rho(\mathbf{r})$ в веществе следующим образом [10, 11]:

$$\frac{dP}{d\Omega} = \frac{dP_e}{d\Omega} \left| \rho(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{p}\mathbf{r}} d^3r \right|^2, \quad (1)$$

где $\frac{dP_e}{d\Omega}$ – дифференциальная вероятность рассеяния свободного электрона (рассеяние Томсона), $\mathbf{p}$ – импульс, переданный электрону при рассеянии света (иначе $\mathbf{p} = \frac{2\pi}{\lambda}(\mathbf{n} - \mathbf{n}_0)$ – вектор рассеяния, где $\mathbf{n}$ – направление рассеянного излучения, $\mathbf{n}_0$ – направление первичного излучения), Ω – телесный угол, в который происходит рассеяние. Используя известные методы [12], можно определить $\rho(\mathbf{r})$ по картине рассеяния рентгеновских лучей. Удивительным результатом является то, что уравнение (1) можно получить из классического описания электро-

¹⁾e-mail: makarovd0608@yandex.ru

магнитного излучения, рассеянного стационарной электронной плотностью $\rho(\mathbf{r})$, что дает результат, идентичный результату, полученному при квантово-электродинамическом (КЭД) описании рассеяния [11]. Простота уравнения (1) обусловила его широкое распространение в РСА при использовании не только обычных источников рентгеновского излучения, но и источников, генерирующих ультракороткие рентгеновские импульсы. Отметим, однако, что в формуле (1) нет величин, характеризующих УКИ, и этот вопрос заслуживает отдельного рассмотрения.

Для описания рассеяния рентгеновского импульса на динамической системе обычно используют расширение уравнения (1). В предположении, что длительность рентгеновского импульса меньше временной шкалы, на которой разворачивается движение электронного волнового пакета, используют выражение [7]:

$$\frac{dP}{d\Omega} = \frac{dP_e}{d\Omega} \left| \rho(\mathbf{r}, t) e^{i\mathbf{p}\mathbf{r}} d^3r \right|^2. \quad (2)$$

Выражение (2) отличается от (1) только заменой $\rho(\mathbf{r}) \rightarrow \rho(\mathbf{r}, t)$. Такая замена обеспечит доступ к мгновенной электронной плотности $\rho(\mathbf{r}, t)$ в зависимости от времени при экспериментальном анализе (расшифровке) динамики различных систем [7].

В теоретическом описании процессов рассеяния рентгеновских импульсов на различного рода многоатомных системах и наносистемах общепринято использовать выражение (1) для стационарных систем и выражение (2) для нестационарных. Конечно, такое простое расширение теории рассеяния рентгеновских лучей на случай рассеяния рентгеновских импульсов несет неточности. В этом обзоре мы рассмотрим различные источники рентгеновских УКИ, методы, используемые для решения научных и прикладных задач с использованием таких импульсов и, самое главное, покажем новые подходы в теории рассеяния рентгеновских УКИ и отличия от выражений (1) и (2). Это позволит понять, где можно пользоваться известными подходами, т.е. выражениями (1) и (2), а где необходимо использовать более современные подходы. Это приведет к лучшему использованию возможностей источников рентгеновских УКИ для расшифровки структуры и динамики сложных систем. Оригинальный научный вклад авторов в этом обзоре сосредоточен в разделе, представляющем новые подходы в теории рассеяния рентгеновских УКИ. В конце обзора приведем современные экспериментальные результаты в рентгеноструктурном анализе различных сложных структур,

в том числе и наноструктур. Следует добавить, что здесь рассматривается только РСА с использованием рентгеновских УКИ. Другие современные методы диагностики атомов, молекул и наноструктур с использованием рентгеновских импульсов здесь не затрагиваются и хорошо представлены в обзоре [9].

2. Источники рентгеновских УКИ. С момента появления рентгеноструктурного анализа существовало достаточно много источников искусственной генерации рентгеновского излучения. В настоящее время по степени использования в задачах РСА можно выделить 3 основных источника:

1. Рентгеновская трубка (РТ) и современная модификация этого устройства – микрофокусные РТ.
2. Синхротронное излучение (СИ).
3. Источники рентгеновских УКИ.

Конечно, хотя рентгеновские источники УКИ занимают сейчас не основное место в исследованиях и прикладном использовании, дальнейшие перспективы их применения велики. В первую очередь это связано с тем, что процессы, происходящие на атомном, молекулярном и наноуровнях, происходят на малых интервалах времени и их можно исследовать только с помощью УКИ, см. рис. 1.

В целом можно выделить пять основных источников рентгеновских УКИ:

1. Лазеры на свободных электронах (XFELs).
2. Лазерно-плазменные источники УКИ.
3. Методы на основе синхротронов.
4. УКИ при генерации высших гармоник (ННГ).
5. УКИ на основе обратного комптоновского рассеяния (ICS).

Способов генерации УКИ в настоящее время достаточно много [13–17], поэтому далее рассмотрим только основные, представленные выше, пять источников рентгеновских УКИ.

2.1 Рентгеновские лазеры на свободных электронах (XFELs). Лазеры на свободных электронах (FELs) были изобретены Мэйди [18], а затем экспериментально продемонстрированы его группой в Стэнфордском университете в 1970-х гг. [19]. Эти лазеры используют релятивистские электроны, распространяющиеся через периодическую систему магнитов (ондулятор), для генерации и усиления когерентного электромагнитного излучения.

Первоначально работа таких лазеров была продемонстрирована в инфракрасном режиме [19]. После этого были продолжены работы по расширению FEL в направлении экстремально ультрафиолетового (EUV) и рентгеновского режимов. Для решения этой проблемы излучение дополнительно усиливалось при использовании режима самоусиления спон-

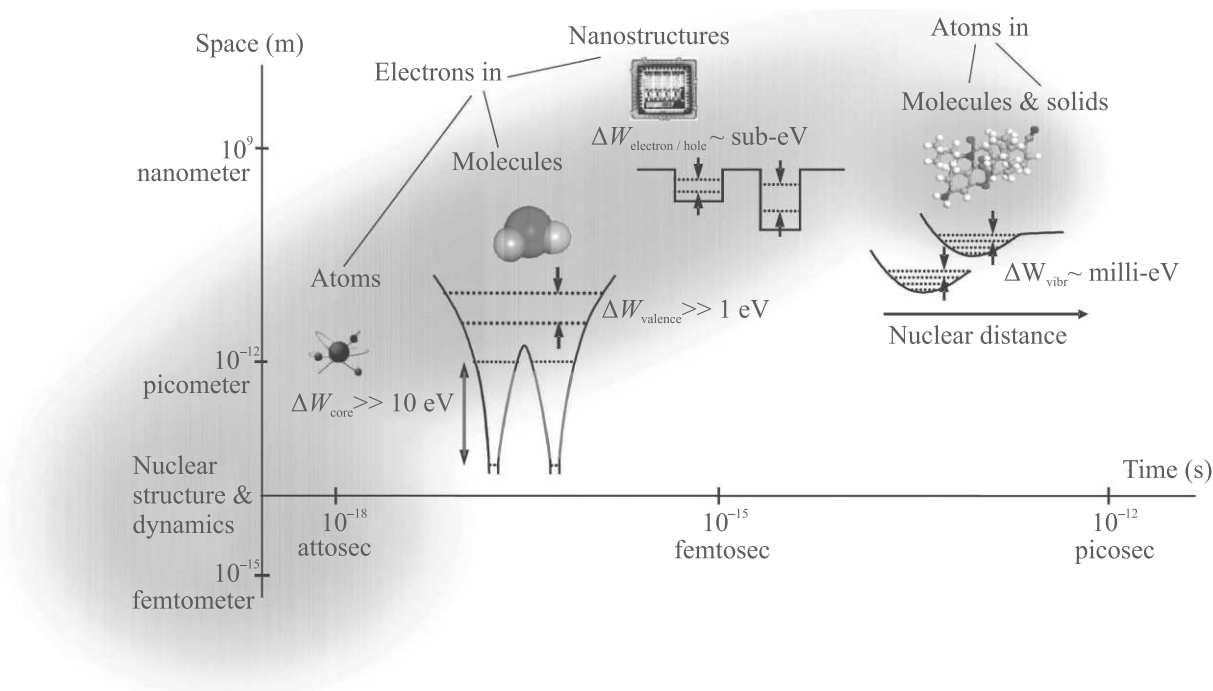


Рис. 1. (Цветной онлайн) Характерная длина a и временные масштабы τ_a структуры и динамики в микромире соответственно: электронов в атомах $a \sim (1-10)$ пм, $\tau_a \sim (1-10)$ ас; электронов в молекулах $a \sim (10-100)$ пм, $\tau_a \sim (10-100)$ ас; электронов в наноструктурах $a \sim (1-100)$ нм, $\tau_a \sim (0.1-10)$ фс; атомов в молекулах и твердых телах $a \sim (10-100)$ пм, $\tau_a \sim (0.1-1)$ пс. Рисунок из работы [5]

танного излучения (SASE). В режиме SASE происходит группировка частиц электронного пучка в микросгустки при прохождении через ондулятор и взаимодействии в нем с излучением самого пучка. Именно такие FELs в настоящее время активно используются в PCA и имеют большие перспективы для дальнейшего усовершенствования. FELs, работающие в режиме SASE, будут рассмотрены далее.

FELs имеют самый широкий диапазон перестройки частоты и могут генерировать очень высокие пиковые и средние мощности лазерного излучения. В настоящее время сообщается о формировании аттосекундных рентгеновских импульсов на XFELs [20–22]. Сообщается о возможности создания зептосекундных импульсов [23]. Используя FELs, можно получать не только рентгеновские УКИ, но и длинноимпульсный спектр излучения в других частотных диапазонах [24]. Чрезвычайно высокая мощность вместе с превосходной поперечной когерентностью таких XFELs обеспечивают резкое увеличение пиковой яркости (примерно в 10^9-10^{10} раз) по сравнению с тем, что обеспечивают современные источники синхротронного излучения на основе электронных накопительных колец.

С появлением XFELs наступила новая эра в рентгеновских исследованиях и PCA. В последние 15 лет

было построено большое количество таких лазеров. FLACH – это первая установка XFEL для фотонов с энергией в области экстремального ультрафиолета, которая была построена в 2005 г. в DESY, в Гамбурге [25]. LCLS – это FEL с жестким рентгеновским излучением, который был построен в 2009 г. в национальной ускорительной лаборатории SLAC, в США [26]. Установка SACLA в Японии [27] и установка FERMI в Триесте [28] представляют собой первое поколение источников XFELs, которые продемонстрировали огромный научный потенциал и возможность применения в широких областях науки. Установки XFEL в настоящее время расширяются по всему миру: PAL-XFEL – в Южной Корее [29], SwissFEL – в Швейцарии [30], европейский XFEL (EuXFEL) – в Германии [31] и др.

В таблице 1 показаны характеристики введенных в эксплуатацию и планируемых к введению установок XFELs.

В настоящее время деятельность по развитию FELs привела к разработке новых режимов работы XFELs и улучшению их возможностей. Новые направления совершенствования включают в себя: генерацию аттосекундных рентгеновских импульсов, контроль временной когерентности, а также универсальные режимы работы, такие как двухцветная ра-

Таблица 1. Характеристики введенных в эксплуатацию и планируемых к введению установок XFELs. Использованы данные из [13]

Страна	Наименование установки	Энергия электрона (ГэВ)	Энергия фотона (кэВ)	Энергия рентгеновского импульса (мДж)	Длительность рентгеновского импульса (фс)	Частота повторений (Гц)	Начало работы
Япония	SACLA BL2,3	6–8	4–20	0.1–1	2–10	60	2011
	SACLA BL1	0.8	0.04–0.15	0.1	60	60	2015
Италия	FERMI-FEL-1	0.9–1.5	0.01–0.06	0.08–0.2	40–90	10 (50)	2010
	FERMI-FEL-2	0.9–1.5	0.06–0.3	0.01–0.2	20–50	10 (50)	2012
Германия	FLASH1	0.4–1.25	0.02–0.3	0.01–0.5	30–200	$(1–800) \cdot 10$	2005
	FLASH2	0.5–1.25	0.01–0.3	0.01–1	10–200	$(1–800) \cdot 10$	2016
Южная Корея	PAL-XFEL	4–11	2.15–15	0.8–1.5	5–50	60	2016
		3	0.25–12	0.2	5–50	60	2016
Швейцария	SwissFEL	2–5.8	1.8–12.4	1	10–70	100	2017
		3	0.2–2	1	10–70	100	2021
Европа	XFEL-SASE1.2	8.5–17.5	3–25	2	10–100	$2700 \cdot 10$	2017
	XFEL-SASE3	8.5–17.5	0.2–3	2	10–100	$2700 \cdot 10$	2017
США	LCLS	3–15	0.3–12	2–4	2–500	120	2009
	LCLS-II	3–15	1–25	2–4	10–100	120	2021
	LCLS-II	4	0.2–5	0.02–1	10–200	106	2021
	LCLS-II-HE	4–8	0.2–13	0.02–1	10–200	120	2026

бота, генерацию многоимпульсных последовательностей и возможности использования большей когерентной полосы пропускания.

2.2 Лазерно-плазменные рентгеновские источники УКИ. Лазерно-плазменные источники генерации УКИ являются важной альтернативой крупномасштабным установкам, таким как XFELs, для генерации УКИ в жестком рентгеновском диапазоне. Когда лазерный импульс длительностью менее 100 фс с пиковой интенсивностью $\sim (10^{15} - 10^{16})$ Вт/см² падает на твердотельную мишень, поверхностные атомы ионизируются и создается тонкий плазменный слой. Далее электрическое поле одного лазерного цикла отрывает электроны от мишени в вакуум, а затем ускоряет их обратно в мишень с приростом энергии: этот эффект называется вакуумным нагревом или эффектом Брунеля. При этом если частота лазера совпадает с плазменной частотой, то может произойти образование горячих электронов. Горячие электроны со средней кинетической энергией несколько десятков кэВ проникают в мишень, возбуждая электроны К-оболочки атомов. Вакансии К-оболочки заполняются путем рекомбинации электронов с более высоких оболочек, испускающих характерные линии рентгеновского излучения. Рентгеновская вспышка, генерируемая таким образом, является короткой, потому что электроны ускоряются только в присутствии ведущего фемтосекундного лазерного импульса. В настоящее время такие источники УКИ могут генерировать жесткие рентгеновские

импульсы порядка 100 фс (некогерентные во времени и пространстве) с частотой следования порядка килогерц с незначительным временным дрожанием относительно оптических импульсов от лазера [32]. Общий генерируемый поток рентгеновского излучения может составлять порядка 10^{10} фотонов в секунду (с энергией фотонов порядка 10 кэВ). Такие источники нашли свое применение в фемтосекундных рентгеноструктурных исследованиях фотоиндуцированной структурной динамики монокристаллов и поликристаллических порошков [33–35]. Конечно, такие источники не могут конкурировать с XFELs с большими потоками когерентного рентгеновского излучения. Несмотря на это, в настоящее время идет усовершенствование таких установок. Это привело, в частности, к разработке новых методов, основанных на оптических драйверах на более длинных волнах, т.е. среднего инфракрасного диапазона, для обеспечения более сильных оптических ускоряющих полей [32].

2.3. Методы на основе синхротронов. Рентгеновские УКИ, получаемые на основе синхротронов, использующих электронные накопительные кольца, открывают большие научные возможности РСА с временным разрешением, с высоким спектральным разрешением и высокой стабильностью. Максимальная частота следования таких рентгеновских импульсов высока и может составлять сотни МГц. Несмотря на это, принципиальная схема синхротрона ограничивает достижимую длительность пучка электронов

и ограничивает временное разрешение экспериментов с рентгеновскими УКИ. Современные синхротронные установки третьего поколения предназначены для максимального увеличения как средней яркости излучения, так и времени жизни электронного пучка [36]. В таких установках можно получить длительности импульсов от нескольких десятков пс до нескольких сотен пс. Используя такие импульсы, можно проводить исследования с высоким временным разрешением в химии [37], структурные [38] и магнитные [39] исследования динамики в субнаносекундном масштабе времени.

В настоящее время разработан метод, который позволяет создавать импульсы с фемтосекундной длительностью, обладающий всеми свойствами синхротронного излучения. Этот метод основан на лазерной манипуляции электронными пучками и впервые был предложен в 1996 г. [40]. Метод заключается в том, что с помощью фемтосекундного лазерного импульса можно модулировать энергию фемтосекундного среза релятивистского пучка электронов в накопительном кольце. Такие электроны затем используются для генерации фемтосекундных рентгеновских импульсов, которые могут быть отделены от длинноимпульсного фона. Все это привело к тому, что на синхротронных накопителях реализованы фемтосекундные жесткие и мягкие рентгеновские пучки, работающие в режиме нескольких килogerц, в том числе Advanced Light Source [41], BESSY II [42] и др.

2.4. УКИ при генерации высших гармоник (ННГ). Ультракороткие импульсы, возникающие при ННГ, являются важной лабораторной альтернативой крупномасштабным рентгеновским установкам для сверхбыстрых импульсов в диапазоне от EUV до мягкого рентгеновского излучения. Процесс ННГ когерентно преобразует длинноволновые импульсы от сверхбыстрого лазера в гораздо более короткие длины волн, распространяясь на режим мягкого рентгеновского излучения. Важно, что ННГ сочетает в себе пространственную и временную когерентность. Для генерации ННГ интенсивный лазерный импульс фокусируется в газ (и не только газ, см. [43]), где процесс ионизации сильным полем преобразует (небольшую) часть падающего света в излучение с гораздо более короткими длинами волн. ННГ можно объяснить, используя как простую полуклассическую модель [44], так и квантово-механическое описание [45, 46]. Для РСА интерес представляют длины волн, начиная от мягкого рентгеновского излучения. Если мягкое рентгеновское излучение в настоящее время научились получать

методом ННГ, то более короткие длины волн получить достаточно сложно. Поэтому получаемые УКИ за счет ННГ в настоящее время представляют больший интерес не для РСА, а для многих других областей сверхбыстрой физики [5, 6, 9, 47–49]. Тем не менее, поскольку и в РСА этот метод в ближайшее время будет активно использоваться [50–52], поэтому мы его приводим в нашей систематизации.

2.5. УКИ на основе обратного комптоновского рассеяния (ICS). В таких источниках рентгеновских УКИ используется принцип обратного комптоновского рассеяния лазерных фотонов на пучке релятивистских электронов (обычно на встречном пучке) в малых циклических или линейных ускорителях [14]. При этом излучение инфракрасных и оптических фотонов преобразуется в рентгеновские и гамма-кванты. Такой источник импульсов более компактен по сравнению с XFELs, работающими в режиме SASE. Наиболее известная и в настоящее время перспективная схема таких источников УКИ основана на использовании обращенного лазера на свободных электронах (IFEL). В IFEL ускоряются релятивистские электроны за счет получения энергии от лазерного импульса, когда электронный луч и лазерный импульс распространяются вместе в периодическом магнитном поле, создаваемом ондуляторным магнитом [53–55]. Используя такие источники, в настоящее время получают фемтосекундные и субфемтосекундные импульсы с яркостью $\sim 10^{22}$ photons $\text{с}^{-1} \text{мм}^{-2} \text{мрад}^{-2}$. Данный метод имеет большие перспективы для дальнейшего развития и использования в РСА.

3. Методы РСА для рентгеновских УКИ.

Для того, чтобы узнать распределение электронной плотности в пространстве и времени $\rho(\mathbf{r}, t)$, см. (2), проводят экспериментальные измерения интенсивности рассеянных рентгеновских УКИ. После этого восстанавливают $\rho(\mathbf{r}, t)$, используя преобразование Фурье и экспериментальную зависимость интенсивности рассеянных рентгеновских импульсов. Эти основы РСА известны давно и широко применяются для источников рентгеновского излучения, работающих как в непрерывном режиме [10, 11], так и для рентгеновских импульсов [1, 7]. В целом считается, что интенсивность рассеянного рентгеновского излучения (энергия, рассеянная за единицу времени в единичный телесный угол в единичный интервал частот)

$$I = I_{\text{coh}} + I_{\text{incoh}}, \quad I_{\text{coh}} = \frac{d\sigma_T}{d\Omega} I_{0\omega} |F(\mathbf{p})|^2 A(\mathbf{p}),$$

$$I_{\text{incoh}} = \frac{d\sigma_T}{d\Omega} I_{0\omega} N_Q S(\mathbf{p}), \quad (3)$$

где I_{coh} и I_{incoh} – это интенсивности когерентного и некогерентного рассеяния, соответственно, $I_{0\omega}$ – спектральная плотность интенсивности падающего излучения (интенсивность на единичный интервал частот), $\frac{d\sigma_T}{ds}$ – дифференциальное сечение рассеяния свободного электрона (как для линейной, так и для случайной поляризации), $F(\mathbf{p}) = \int \rho(\mathbf{r}, t) e^{i\mathbf{p}\mathbf{r}} d^3r$ – это фактор, который отвечает за дифракцию рентгеновского излучения, $S(\mathbf{p}) \in (0, 1)$ – фактор, отвечающий за вклад некогерентной части спектра в рассеяние (если $S(\mathbf{p}) = 1$, то рассеяние идет некогерентно, если $S(\mathbf{p}) = 0$ – когерентно), N_Q – это число электронов в изучаемой системе, $A(\mathbf{p}) \in (0, 1)$ – фактор, учитывающий не дифракционные потери (например, поглощение и тепловые колебания атомов). Нахождение зависимостей для факторов $A(\mathbf{p})$ и $S(\mathbf{p})$ – это задача не тривиальная, особенно для сложных систем, и в настоящее время это достаточно актуальная тема для исследований [1, 3, 4]. Следует добавить, что $|F(\mathbf{p})|^2 \propto S_F$, где S_F – это структурный фактор, который используется в теории РСА. Выражение (3) можно представить и через S_F , что часто делают [14], но в дальнейшем это будет не очень удобно. Выражение для I_{coh} достаточно просто можно получить из (2), рассмотрев интенсивность рассеянного излучения, а не вероятность, см. (2). За когерентность отвечает фактор $|F(\mathbf{p})|^2$ и в случае своего максимального значения $(|F(\mathbf{p})|^2)_{\text{max}} \propto N_Q^2$ (пики Брэгга). Если атомов в изучаемой системе достаточно много, то когерентный член в случае своего максимума $I_{\text{coh}} \propto N_Q^2$ и в рентгеновском диапазоне частот будет доминировать над некогерентным членом $I_{\text{incoh}} \propto N_Q$, а значит, достаточно изучить I_{coh} , чтобы провести рентгеноструктурный анализ вещества. В общем случае выражения в (3) описывают рассеяние рентгеновского излучения как на единичном атоме, так и на многоатомной структуре. В экспериментах преобладание когерентного члена над некогерентным определяется дифракционной картиной, где явно видны максимумы интенсивности рассеянного излучения. Следует добавить, что коэффициент $A(\mathbf{p})$, конечно, влияет на рассеяние, но это влияние не может качественно изменить максимумы дифракционной картины. Например, известно, что в случае тепловых колебаний атомов в твердых телах дифракционная картина меняется в соответствии с фактором Дебая–Валлера (Debye–Waller) [56]. Этот фактор W определяется в виде $I = I'_0 e^{-W}$ (иногда представляют как $I = I'_0 e^{-2W}$), где I' – это интенсивность рассеяния для жесткой решетки. В случае упругого рассеяния на электронах в атомах вещества коэффициент $A(\mathbf{p}) = e^{-W}$. Качественно изменить

дифракционную картину этот фактор не может, хотя его также можно учитывать для лучшего восстановления $\rho(\mathbf{r}, t)$.

3.1. Определение $\rho(\mathbf{r}, t)$ и фазовая проблема. Поставим задачу найти $\rho(\mathbf{r}, t)$ по известной из эксперимента зависимости I_{coh} . Это можно сделать, если увидеть, что информация о $\rho(\mathbf{r}, t)$ содержится только в $F(\mathbf{p})$, но при этом экспериментальная информация содержится в $|F(\mathbf{p})|^2$, поскольку $|F(\mathbf{p})|^2 \propto I_{\text{coh}}$. Если бы $F(\mathbf{p})$ была бы всегда действительной функцией, то $F(\mathbf{p}) \propto \sqrt{I_{\text{coh}}}$ и, совершив обратное преобразование Фурье от функции $F(\mathbf{p})$, можно было бы получить $\rho(\mathbf{r}, t)$ в виде

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int F(\mathbf{p}) e^{-i\mathbf{p}\mathbf{r}} d^3p. \quad (4)$$

На самом деле $F(\mathbf{p}) = |F(\mathbf{p})| e^{i\phi(\mathbf{p})}$ является комплексной функцией и нахождение $\rho(\mathbf{r}, t)$ не такая тривиальная задача. Интенсивность при рассеянии, наблюдаемая при дифракции рентгеновских лучей, дает нам величина модуля $|F(\mathbf{p})| \propto \sqrt{I_{\text{coh}}}$, но не фазы $\phi(\mathbf{p})$. Для того, чтобы определить $\rho(\mathbf{r}, t)$, нужно найти $\phi(\mathbf{p})$, и это является фазовой проблемой. В настоящее время разработано достаточно много методов решения фазовой проблемы [12, 57, 58].

Один из прямых методов определения фазы заключается в том, что если $\rho(\mathbf{r}, t)$ должна быть вещественной величиной, то мнимая часть выражения (4) будет равна нулю для всех значений $\mathbf{r}$. Этот подход оказывается полезным для молекул малых и средних размеров, где атомы обычно хорошо упорядочены, и в результате структурные факторы (т.е. $|F(\mathbf{p})|^2$) могут быть измерены до очень больших углов дифракции. Фазовые отношения, на которых основывается такой метод, зависят от наложения ограничений на плотность электронов в элементарной ячейке: например, полагается, что она везде положительна, или что она сгруппирована в отдельные атомные пики. Прямые методы плохо работают для крупных структур, таких как молекулы белков, которые менее жесткие, чем молекулы меньшего размера, и, следовательно, даже в кристалле между элементарными ячейками будет значительный беспорядок. Достаточно известен метод Паттеросона для нахождения $\rho(\mathbf{r}, t)$ без поиска фазы [59]. Этот подход становится непригодным для конструкций более чем 20–50 атомов.

Можно выделить несколько основных методов решения фазовой проблемы – прямые методы и изоморфная замена [60]. Также часто применяют методы: молекулярной замены [61], аномального рассеяния, модификация плотности (модель фазово-

го улучшения) [62], многоволновой аномальной дифракции (MAD) [63], одноволновой аномальной дифракции SAD [64]. В целом методов решения фазовой проблемы много [12], и они постоянно улучшаются. В настоящее время существует также достаточно много программ, предназначенных для решения фазовой проблемы различными представленными здесь методами и в целом на определение структуры вещества [57, 58].

3.2. PCA с временным разрешением (TR-XRD).

Один из самых распространенных подходов, с помощью которого можно наблюдать за объектом в четырех измерениях x, y, z, t , – это временно-зависимая фемтосекундная кристаллография (TR-SFX). Здесь нас будут интересовать процессы, происходящие в фемто- и аттосекундном масштабе времени. Измерение временной динамики таких процессов включает 2 этапа. Первый – это запуск изучаемого динамического процесса и второй – это сбор дифракционных картин с различными временными задержками посредством облучения УКИ изучаемой системы. Для изучения таких процессов используют УКИ большой яркости, поскольку для изучения динамических процессов с характерными временами τ_T требуется импульс еще меньшей длительности τ , т.е. должно выполняться условие $\tau \ll \tau_T$. Очень яркий источник УКИ необходим для того, чтобы за малое время τ взаимодействия импульса с изучаемой системой рассеялось достаточное количество квантов, чтобы его можно было детектировать. При реализации такой концепции возникают трудности в связи с разрушением исследуемого образца из-за большой яркости УКИ. Несмотря на это, в 2000 г. Янош Хайду и его коллеги показали, как можно преодолеть эту трудность [65–67]. Они подсчитали, что молекула, подвергнутая воздействию рентгеновского импульса, начинает взрываться на масштабе времени около 10 фемтосекунд. Таким образом, более короткие световые импульсы могут проходить через молекулу, захватывая информацию о практически невозмущенной структуре. Тогда достаточно яркие импульсы дадут начало непрерывным дифракционным картинкам, достаточно сильным, чтобы их можно было измерить. Демонстрация доказательства принципа на небиологическом образце была проведена на FLASH soft-X-ray FEL в Гамбурге в 2006 г. [68]. Данная концепция “дифракция перед разрушением” представлена на рис. 2.

Первый этап можно реализовать несколькими способами. Самый распространенный способ – это так называемый *pump-probe*, т.е. “накачки-зондирования” (употребляются также термины

“накачка-зонд”, “возбуждение-измерение”, “накачка-зондаж”). Этот метод, пригодный для изучения количественно воспроизводимой динамики, основан на создании запаздывающей по времени последовательности из двух коротких импульсов: импульс “накачки” (обычно импульс оптического лазера или первый импульс XFEL) выводит вещество из равновесия, а “зондирующий” импульс рентгеновского излучения используется для создания или получения “снимков” структуры вещества в определенный момент времени во время динамического отклика вещества. Можно также проследить структурную реакцию системы как функцию времени, многократно применяя эти два импульса к веществу с различными относительными задержками. Однако визуализация изучаемых процессов в образцах требует новых технологий доставки образцов. Такими технологиями в настоящее время являются методы впрыска аэрозольных образцов, разработанные для отдельных частиц и биомолекул, и струи жидкости для получения непрерывных потоков нанокристаллов [67, 70], см. рис. 3. Это также потребовало новых алгоритмов обработки, чтобы собрать воедино дифракционные картины всех случайно ориентированных молекул и получить полное изображение. Для получения результата число дифракционных картин может быть очень велико, обычно более 10000. Чтобы восстановить трехмерную структуру из отдельных дифракционных картин, они должны быть ориентированы, масштабированы и объединены для получения списка интенсивностей. Эти интенсивности затем могут быть переданы в стандартные кристаллографические программы. В 2011 году этот подход был реализован [67], чтобы получить трехмерное изображение фотосистемы I – одного из самых больших мембранных белковых комплексов. Затем последовало множество других демонстраций этого метода. Особенно актуален этот метод для изучения белков и наносистем.

4. Новые подходы в теории рассеяния рентгеновских УКИ. Выражение (3) получить достаточно просто (без фактора $A(\mathbf{p})$) как в классической физике [71], так и в КЭД [11]. Результат в классической физике будет идентичен квантовому рассмотрению, если классическую электронную плотность $\rho(\mathbf{r})$ представить через электронную плотность в атомах, путем усреднения по всем квантовым состояниям электронов в атомах вещества. Следует добавить, что расчет в КЭД предполагает использование первого порядка теории возмущений по взаимодействию рассеянного (рожденного) фотона с электронами в атомах вещества. Это в свою очередь дает ограниче-

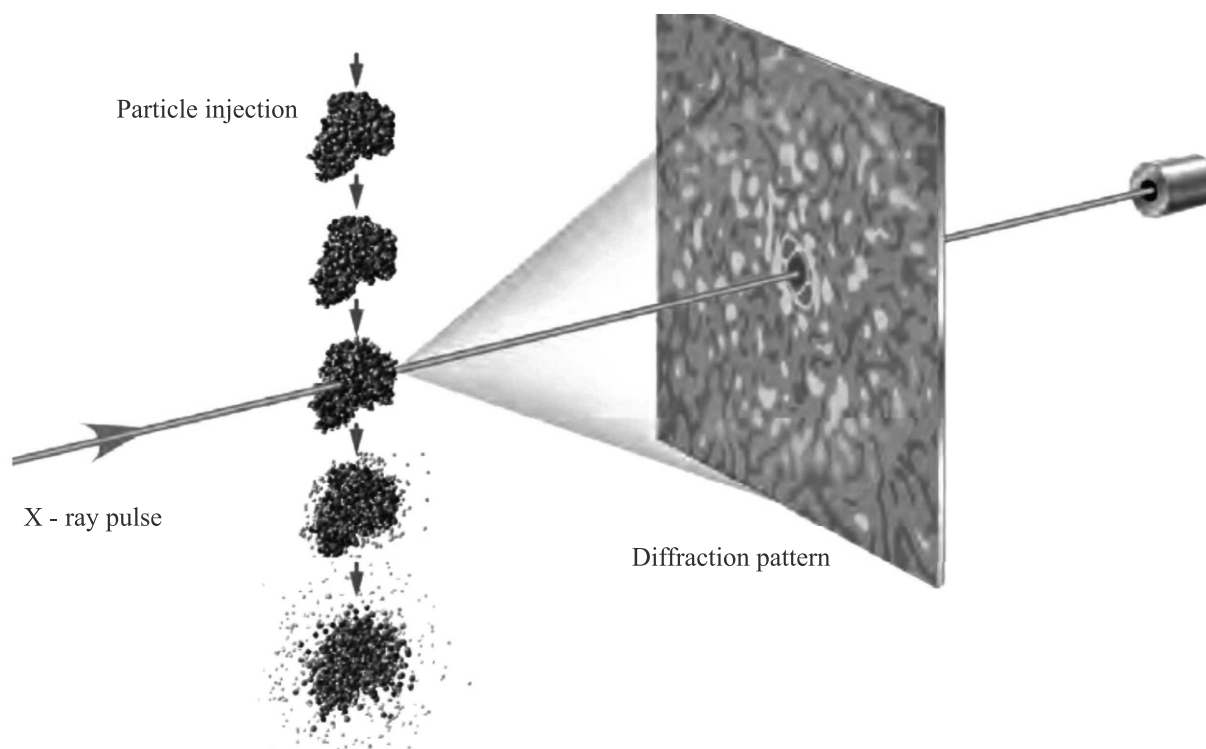


Рис. 2. (Цветной онлайн) Представлена концепция “дифракция перед разрушением”. Рисунок из работы [69]

ния на число электронов в веществе, где применим первый порядок теории возмущений. В классической физике нет таких ограничений. Более того, хорошо известно, что результаты квантовой физики будут переходить в классическую, если число рассеянных фотонов будет стремиться к бесконечности. Факт того, что результаты в КЭД и классической физике одинаковы (конечно, с учетом замены классической на квантовую электронную плотность), позволяет проводить расчеты элементарных процессов на небольшом числе атомов с использованием КЭД и распространять результаты этих расчетов на большую (макроскопическую) систему. Такими расчетами могут быть изучение эволюции электронной плотности (точнее квантовых состояний) в атомах, молекулах, биомолекулах, наносистемах и т.д. [7]. Если изучаемое число электронов в многоатомной системе таково, что не применим первый порядок теории возмущений, т.е. рождается более 1 фотона с высокой вероятностью, но при этом число рожденных фотонов не настолько велико, чтобы пользоваться классической физикой, то в этом случае необходима новая теория рассеяния, описывающая такие многоатомные системы. Это достаточно важное уточнение, с учетом того, что сложные наносистемы и биомолекулы могут состоять как раз из такого количества электронов [72]. Кроме того, считается, что в случае рас-

сеяния рентгеновских УКИ формула (3) тоже применима, хотя в ней нет информации о характеристиках импульса. Существует еще проблема, связанная с тем, что в динамических процессах квантовой системы рассеяние рентгеновских импульсов не всегда возможно представить через электронную плотность $\rho(\mathbf{r}, t)$, хотя только через такую плотность представлено выражение (3), см. [7]. Таким образом, нужны не только новые теории, решающие эти проблемы, но и четкие критерии использования выражения (3) в РСА, иначе это может привести к некорректному определению структуры вещества. Эти и другие проблемы, а также теории, изучающие эти вопросы, рассмотрены в данной главе.

4.1. Волновая функция атомного электрона в поле УКИ. Для того, чтобы получить спектры рассеяния УКИ на каких-либо структурах с использованием квантовой физики, независимо от предлагаемой теории, необходимо сначала найти волновую функцию атомного электрона в поле импульса. Проблема поиска такой волновой функции фундаментальна и существует не только в теории рассеяния [73–79], но и во многих других областях физики, например, теории ионизации в мощных УКИ [80]. В рентгеновском диапазоне частот УКИ являются пространственно-неоднородными, что ведет к сложности теоретического описания, поскольку не применим дипольный

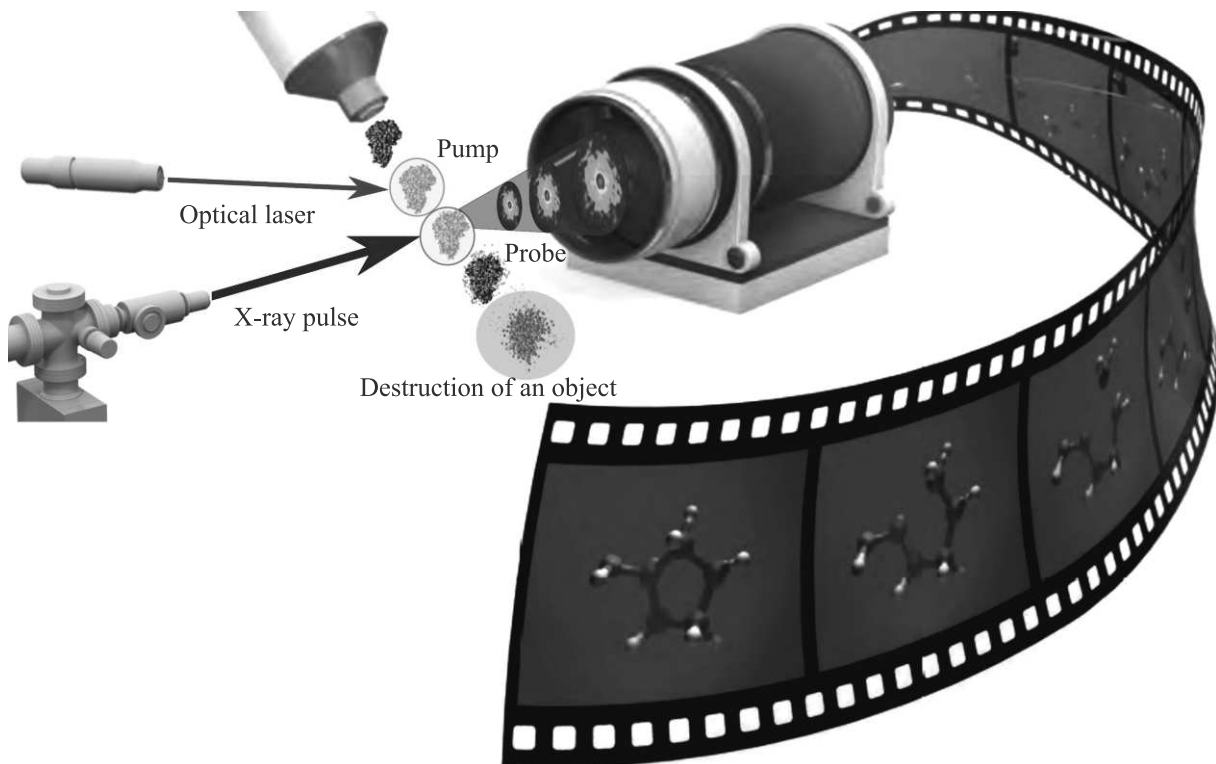


Рис. 3. (Цветной онлайн) Схема работы методики TR-SFX. Вместо оптического лазера (Pump) может быть рентгеновский импульс (первый импульс – Pump, а второй – Probe)

подход. Задача еще более усложняется, если считать поля импульсов настолько сильными, что необходимо учитывать релятивистские эффекты [81]. Обычно такую проблему пытаются решить различными модельными приближениями или численными расчетами. Если бы была получена волновая функция атомного или молекулярного электрона в таких полях в аналитическом виде, то существовала бы возможность для более фундаментального исследования взаимодействия таких полей с веществом. Здесь более подробно рассмотрим решение, которое было получено в работе [79] (см. также [82]). Эта волновая функция имеет аналитический вид и применима для рентгеновских УКИ практически любой интенсивности. Далее для удобства будем использовать атомную систему единиц: $\hbar = 1$, $|e| = 1$, $m = 1$, $c \approx 137$.

Решение было найдено в так называемом приближении RFI (релятивистское уравнение в приближении быстрого взаимодействия) при рассмотрении уравнения Дирака для электрона в поле $U(\mathbf{r})$, на который действует поле пространственно-неоднородного импульса с напряженностью $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$. Следует добавить, что приближение RFI работает, когда $E/(\omega c) \ll 1$ и $\omega \ll c^2$, где ω – это частота УКИ, E – амплитуда напряженности падающего на

систему импульса. Можно увидеть, что это приближение будет работать при напряженностях в поле импульса $E \ll \omega c$. Это очень большое предельное значение E и даже больше того, что на сегодняшний день могут предоставить самые мощные источники УКИ $E \sim 1000$ (в а.е.). Например, при использовании XFELs можно создавать интенсивность $I \approx 10^{21}$ Вт/см² [83] и даже более этого. По последним данным самый мощный источник УКИ в Южной Корее (CoReLS) может создавать оптические импульсы с интенсивностью $I \approx 10^{23}$ Вт/см² [84]. Заметим, что атомная напряженность (в а.е.) $E_a \sim 1$ ($E_a = m^2 e^5 / \hbar^4 = 5.14 \times 10^9$ В/см, $I_a = c E_a^2 / (8\pi) = 3.51 \times 10^{16}$ Вт/см²). В итоге при использовании приближения RFI и приближения внезапных возмущений [85, 86] была получена волновая функция [79]

$$\Psi(t) = \varphi_0 \left(x, y, z + \int_{-\infty}^t \frac{\mathbf{E}\mathbf{r}}{m^* c} \frac{1}{1 + \frac{\mathbf{E}\mathbf{r}}{m^* c^2}} dt \right) \times e^{\left\{ -i \int_{-\infty}^t \frac{(m^* - 1)c^2 + \mathbf{E}\mathbf{r}}{1 + \frac{\mathbf{E}\mathbf{r}}{m^* c^2}} dt \right\}} \times \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\mathbf{E}\mathbf{r}}{m^* c^2}}}, \quad (5)$$

где $m^* = \sqrt{1 + \left(\frac{\mathbf{E}\mathbf{r}}{c^2}\right)^2}$, а $\varphi_0(\mathbf{r})$ – это электронная волновая функция начального состояния изучаемой си-

стемы. Выражение (5) учитывает магнитную составляющую падающего импульса, что не учитывается в стандартной теории рассеяния, т.е. в выражении (3), а также релятивистские поля УКИ. Если не учитывать магнитное поле импульса, что эквивалентно $E \ll c^2$, получается

$$\Psi(t) = \varphi_0(\mathbf{r}) e^{-i \int_{-\infty}^t \mathbf{E} \mathbf{r} dt}. \quad (6)$$

Волновая функция (6) – это хорошо известное решение уравнения Шредингера в приближении внезапных возмущений, которая использовалась во многих теоретических работах, например, [82, 87–94].

Конечно, одно из самых известных решений, которое также можно использовать в теории рассеяния – это волковская волновая функция [95]. Это релятивистское решение для свободного электрона, находящегося в поле плоской монохроматической электромагнитной волны. Чаще всего нужен нерелятивистский вариант этого решения [80]

$$\psi_V(t) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\mathbf{v}(t)\mathbf{r}} e^{-\frac{i}{2} \int_0^t \mathbf{v}^2(t') dt'}, \quad (7)$$

где $\mathbf{v}(t) = \mathbf{p} + \frac{1}{c} \mathbf{A}(t)$ ($\mathbf{p}$ – это импульс электрона до взаимодействия, $\mathbf{A}(t) = -c \int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t) dt$). По сути два выражения (6) и (7) близки друг к другу для рентгеновских частот, поскольку в (7) можно не учитывать вторую экспоненту из-за того, что $\int_0^t \mathbf{v}^2(t') dt' \sim \mathbf{v}^2/\omega \ll 1$, т.е. координатное смещение электрона небольшое из-за его быстрых осцилляций. Для рентгеновских УКИ в случае $E \ll c^2$ выражение (6) предпочтительнее, из-за того, что там учтено начальное связанное состояние электрона.

В настоящее время существуют адаптированные решения для УКИ на основе волковской волновой функции и теории фотоионизации Келдыша [80, 96, 97, 98], которые также можно использовать в теории рассеяния.

4.2. Рассеяние рентгеновских УКИ на атомах и молекулах. Обычно в теории рассеяния рентгеновских лучей пользуются приближением, в котором электрон считается свободным. Такое предположение вполне приемлемое, поскольку частота рентгеновского излучения, во много раз больше атомных частот. В итоге получается, что мы рассматриваем томсоновское рассеяние. Если мы рассматриваем взаимодействие излучения с системой электронов, то необходимо учесть их пространственное расположение, но основной характеристикой рассеяния будет также рассеяние Томсона [71]. Итогом такого рассмотрения является формула (3), конечно, если учесть тепловые колебания атомов. Этот вопрос подробно изучен в различной литературе [1, 56, 71, 11] и

современные результаты в этом подходе обычно изучают подробно факторы $A(\mathbf{p})$ и $S(\mathbf{p})$ в (3). Рассмотрим здесь рассеяние рентгеновских УКИ на атоме, используя более точный подход, – приближение внезапных возмущений, учитывающее связанное состояние электрона. В этом приближении в случае полей практически любой интенсивности была получена формула (5) для волновой функции электрона в поле импульса. Далее используя эту функцию и учтя, что мы рассматриваем не сверхсильные поля УКИ, т.е. $E/c^2 \ll 1$, в первом порядке теории возмущений по взаимодействию рассеянного излучения с атомами вещества можно получить вероятность W рассеяния излучения частоты ω в единичный телесный угол $d\Omega_{\mathbf{k}}$ (далее спектр) [99]

$$\frac{d^2 W}{d\Omega_{\mathbf{k}} d\omega} = \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{1}{c^3 \omega} \langle \varphi_0 | \sum_{a,a'} e^{-i\mathbf{k}(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_{a'})} \times \\ \times \mathbf{f}(\mathbf{r}_a) \mathbf{f}^*(\mathbf{r}_{a'}) | \varphi_0 \rangle, \quad \mathbf{f}(\mathbf{r}_a) = [\tilde{\mathbf{E}}(\omega) \mathbf{n}], \quad (8)$$

$$\tilde{\mathbf{E}}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\mathbf{E}(\mathbf{r}_a, t) - \frac{1}{2} \nabla \left(\frac{\mathbf{E}(\mathbf{r}_a, t) \mathbf{r}_a}{c} \right)^2 \right) e^{i\omega t} dt. \quad (9)$$

Спектр представлен в виде среднего по основному состоянию атома или молекулы. Для вычисления среднего в выражении (8) необходимо знание волновой функции многоэлектронной системы и проведение многомерного интегрирования. Каким образом можно будет решить эту проблему, рассматривается в следующем разделе. Тем не менее можно для простых случаев провести расчет выражения (8) напрямую, например, водородоподобный атом [99]. В этом случае присутствует рассеяние не только на частоте вблизи ω_0 , но и $2\omega_0$, где ω_0 – это несущая частота УКИ, входящая в $\mathbf{E}(\mathbf{r}_a, t)$. Следует отметить, что выражение (8) перейдет в известное рассеяние Томсона, если рассмотреть одноэлектронную систему, также не учитывать магнитную составляющую УКИ и если τ длительность УКИ (входящую в $\mathbf{E}(\mathbf{r}_a, t)$ независимо от формы импульса) сделать большой (достаточно считать импульс многоцикловой, т.е. $\tau\omega_0 \gg 1$).

4.3. Рассеяние рентгеновских УКИ на многоатомных системах. Выражение (8) получено при использовании первого порядка теории возмущений по полю излучения, поэтому подходит только для небольшого числа атомов или молекул. Это количество атомов или молекул легко оценить, если воспользоваться, например, выражением (8). Учтя только когерентную часть рассеяния, получим вероятность рассеяния рентгеновского УКИ за время τ при

его взаимодействия с многоатомной системой в виде $W \sim \frac{E_0^2 N_Q^2}{c^3 \omega \alpha}$, где $\alpha = 1/\tau$ – это спектральная ширина импульса, N_Q – это число электронов в многоатомной системе. Выбрав поля достаточно сильные, $E_0 \sim 10$ (которые реализуются на XFELs), рентгеновскую область частот $\omega \sim 100$ и субфемтосекундную длительность УКИ $\alpha \sim 1$, получим $W \sim 10^{-6} N_Q^2$. Таким образом, $W \sim 1$ будет уже при $N_Q \sim 1000$, что соответствует небольшой группе атомов вещества, например, биомолекулам, наносистемам и т.д. Поэтому, конечно, нужен подход, рассматривающий рассеяние не одного фотона, а многофотонное рассеяние, где могут рождаться произвольное число фотонов при рассеянии УКИ на многоатомной системе [72]. Отметим, что такой проблемы нет в случае рассеяния излучения небольшой интенсивности, где $E \ll 1$, поскольку при $E \ll 1$ и $W \sim 1$, электронов будет настолько много, что их количество будет соответствовать макроскопической системе вещества. Такая проблема была рассмотрена и решена в [72]. Выпишем основные результаты, полученные в этой работе.

Полная вероятность P_n рождения n фотонов в заданном интервале частот и с усредненной поляризацией для произвольной многоатомной системы будет

$$P_n = \left\langle \psi \left| \frac{Z^n}{n!} e^{-Z} \right| \psi \right\rangle, \quad (10)$$

где

$$Z = \int \frac{\omega d\Omega d\omega}{(2\pi)^2 c^3} \left| \sum_a \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{r}_a)} [\mathbf{n} \times \mathbf{P}(t, \mathbf{r}_a)] \right|^2, \quad (11)$$

где $\mathbf{P}(t, \mathbf{r}_a) = \psi^{-1}(t, \mathbf{r}_a) (\hat{\mathbf{p}}_a - \mathbf{n}_0 \frac{\mathbf{E}\mathbf{r}_a}{c}) \psi(t, \mathbf{r}_a)$, $\mathbf{n} = \mathbf{k}/k$ – это направление рассеянного импульса, $\psi(t, \mathbf{r}_a)$ – волновая функция электрона с номером a в поле УКИ (например, (5)), $\psi = \psi(t \rightarrow \infty, \mathbf{r}_a)$, суммирование $\sum_a$ ведется по всем электронам многоатомной системы.

Помимо вероятности P_n рождения n фотонов, не менее важной характеристикой рассеяния является полная энергия рассеяния n фотонов по всем направлениям и частотам

$$\frac{d^2 E_n}{d\Omega d\omega} = \left\langle \psi \left| Z_D \frac{Z^{n-1}}{(n-1)!} e^{-Z} \right| \psi \right\rangle, \quad (12)$$

где

$$Z_D = \frac{\omega^2}{(2\pi)^2 c^3} \left| \sum_a \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{r}_a)} [\mathbf{n} \times \mathbf{P}(t, \mathbf{r}_a)] dt \right|^2. \quad (13)$$

При проведении эксперимента в РСА нас интересует полная интенсивность рассеянного излучения,

тогда для полной энергии получим $\bar{E} = \langle \psi | Z_\omega | \psi \rangle$, а для $\frac{d^2 \bar{E}}{d\Omega d\omega} = \langle \psi | Z_D | \psi \rangle$. Также можно выписать и полное число рожденных фотонов при рассеянии УКИ $\bar{n} = \langle \psi | Z | \psi \rangle$. Примечательным является то, что $\bar{n}$ совпадает с выражением (8) при использовании $\psi(t, \mathbf{r}_a) = \phi(\mathbf{r}) e^{iRe[s(\mathbf{r}, t)]}$ ($\phi(\mathbf{r})$ и $s(\mathbf{r}, t)$ – это произвольные функции), например, выражения (5) при $E/c^2 \ll 1$. Более того, полученные выражения (10), и (12), как было показано в [72], описывают практически все предельные случаи в теории рассеяния – это рассеяние Томсона, рассеяние Рэлея, генерация высших гармоник, классическое рассеяние и даже вероятность излучения квантованного электромагнитного поля, взаимодействующего с классическим источником, с током $j(\mathbf{r}, t)$ [100]. Таким образом, используя представленные здесь выражения, можно проводить расчеты спектров рассеяния рентгеновских УКИ, не беспокоясь о числе электронов (рассеивателей) N_Q в изучаемой системе.

Интересная теория, где можно найти $\frac{d^2 \bar{n}}{d\Omega d\omega_{\mathbf{k}}}$, не используя многофотонное рассеяние, представлена в [101], см. также ее модификации, например, [7]. Рассеяние было найдено с использованием выражения $\frac{d^2 \bar{n}}{d\Omega d\omega_{\mathbf{k}}} = \rho(\omega_{\mathbf{k}}) \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \Psi^1(t) | \Psi^1(t) \rangle$, где $\rho(\omega_{\mathbf{k}}) = \frac{\omega_{\mathbf{k}}^2 V}{(2\pi)^3 c^3}$ – это частотная плотность рассеянных состояний, а $\Psi^1(t)$ – возмущение волновой функции изучаемой системы $\Psi(t)$ в поле УКИ (1-й порядок теории возмущений). Учтя, что поле импульса можно представить в виде $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_{\mathbf{k}_0} h(\mathbf{r}, t) e^{-i(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \mathbf{r})}$, где $h(\mathbf{r}, t)$ задает форму импульса, можно получить выражение

$$\frac{d^2 \bar{n}}{d\Omega d\omega_{\mathbf{k}}} = \frac{\omega_{\mathbf{k}}}{\pi^2 c^3 \omega_{\mathbf{k}_0}^2} P^2 \int_0^\infty d\tau I_p(\tau) \int_{-\infty}^\infty d\delta C_p(\delta) \times \\ \times e^{-i\omega_{\mathbf{k}} \delta} \left\langle \Psi(\tau) \left| e^{i\hat{H}_M \delta/2} \hat{L}^\dagger e^{-i\hat{H}_M \delta/2} \hat{L} \right| \Psi(\tau) \right\rangle, \quad (14)$$

где $I(\tau)$ – интенсивность падающего УКИ, $C_p(\delta) = h^2(\delta) e^{i\omega_{\mathbf{k}_0} \delta}$, $P = \epsilon_v \epsilon_u$ – поляризационный фактор (ϵ_v и ϵ_u – поляризации), $\Psi(\tau)$ – волновая функция изучаемой системы в момент времени τ , $\hat{L} = \sum_j \frac{q_j^2}{2m_j} e^{i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) \mathbf{r}_j}$ (для электронов в атомной системе единиц $q_j = m_j = 1$), $\hat{H}_M$ – гамильтониан невозмущенной материальной системы. Если мы учтем, что длительность УКИ во много раз меньше характерных времен изучаемой системы, то в (14) интенсивность будет похожа на дельта-функцию Дирака, где все значение сосредоточено вблизи времени T , тогда в (14) $\tau \rightarrow T$. В этом случае мы можем отслеживать по спектрам рассеяния динамику изучаемой системы в момент времени T с волновой функцией $\Psi(T)$. Учтя это, а также воспользовавшись прибли-

жением внезапных возмущений ($\dot{H}_M \delta \ll 1$), в (14) выражение $e^{i\dot{H}_M \delta/2} \rightarrow 1$, тогда мы получим выражение (8) (конечно, если не учитывать в нем магнитную составляющую УКИ).

4.3.1. *Рассеяние рентгеновских УКИ на наносистемах.* В этом разделе рассмотрим рассеяние рентгеновских УКИ на сложных наносистемах [99, 102, 103]. Волновую функцию многоатомной системы выберем в виде (5), но с учетом, что E/c^2 мало, тогда

$$\Psi(t) = \varphi_0(\{\mathbf{r}_a\}) e^{-\sum_a i \int_{-\infty}^t \left(\mathbf{E}(t') \mathbf{r}_a - \frac{1}{2} \left(\frac{\mathbf{E}(t') \mathbf{r}_a}{c} \right)^2 \right) dt'}, \quad (15)$$

где $\sum_a$ – это суммирование по всем электронам многоатомной системы, $\varphi_0(\{\mathbf{r}_a\})$ – начальная волновая функция всех электронов в многоатомной системе. С учетом волновой функции (15) получается, что выражение для спектра (8) совпадает с $\bar{n} = \langle \psi | Z | \psi \rangle$. Поэтому далее будем пользоваться выражением (8) с учетом того, что суммирование будет идти по всем электронам многоатомной системы. Было показано [91, 102], что можно представить $\varphi_0(\{\mathbf{r}_a\})$ через электронную плотность атома $\rho(\mathbf{r})$, где в итоге было получено выражение для спектра рассеяния [102, 103]

$$\frac{d^2 W}{d\omega d\Omega_{\mathbf{k}}} = \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{1}{c^3 \omega} \left(N_a N_e S(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0) + \delta_N(\mathbf{p}) N_e^2 F(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0) \right). \quad (16)$$

Здесь $S(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0) = G(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0) - F(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0)$, N_a – это общее число атомов в системе, N_e – число электронов в атоме, а функции $G(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0)$ и $F(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0)$ можно выразить через электронную плотность в атоме в виде

$$G(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0) = \frac{1}{N_e} \int \rho(\mathbf{r}) |\mathbf{f}(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r},$$

$$F(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0) = \frac{1}{N_e^2} \left| \int \rho(\mathbf{r}) \mathbf{f}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} d\mathbf{r} \right|^2, \quad (17)$$

где $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ определяется выражением (9), а фактор $\delta_N(\mathbf{p})$ определяет геометрическое расположение атомов в системе и равен

$$\delta_N(\mathbf{p}) = \sum_{a,b} e^{i\mathbf{p}(\mathbf{R}_a - \mathbf{R}_b)} = \left| \sum_a e^{i\mathbf{p}\mathbf{R}_a} \right|^2. \quad (18)$$

Суммирование в (18) идет по всем атомам, составляющим изучаемую систему. Следует добавить, что выражение (16) представляет многоатомную систему, состоящую из одного сорта атомов вещества.

Каждое из выражений $G(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0)$ и $F(\omega, \mathbf{n}, \mathbf{n}_0)$ можно получить в аналитической форме, используя модель Дирака–Хартри–Фока [104] независимо от формы УКИ, но в достаточно громоздком виде [102, 103]. В итоге выражение (16) является полностью рассчитываемым в аналитическом виде; в нем есть когерентная и некогерентная часть в спектре рассеяния, учитывается магнитная составляющая и зависимость от характеристик УКИ, а также нет ограничений на число электронов (рассеивателей) в системе. Как было показано в [103], выражение (16) перейдет в известное выражение для РСА, если не учитывать магнитную составляющую УКИ, и если длительность импульса τ сделать большой (достаточно считать импульс многоцикловым, т.е. $\tau\omega_0 \gg 1$, где ω_0 – это несущая частота УКИ).

Представим для примера расчет спектров рассеяния для гауссовского импульса при $\omega_0 \tau \gg 1$. Аналогично предыдущему разделу рассеяние будет идти на основной ω_0 и на второй $2\omega_0$ гармонике, как было показано в [103], и это можно использовать в РСА для более точного изучения структуры вещества. Например, для графена был рассчитан в аналитическом виде фактор $\delta_N(\mathbf{p})$ [103, 105] и представлены спектры рассеяния, см. рис. 4

$$\delta_N(\mathbf{p}) = \frac{4 \sin^2 \left(\frac{\sqrt{3}}{2} L \mathbf{p} \mathbf{j} d \right)}{\sin^2 \left(\frac{\mathbf{p} \mathbf{i} d}{2} \right) \sin^2 \left(\frac{\sqrt{3}}{2} \mathbf{p} \mathbf{j} d \right)} \left\{ \cos \left(\frac{\mathbf{p} \mathbf{j} d}{\sqrt{3}} \right) \times \right.$$

$$\left. \times \sin \left(\frac{\mathbf{p} \mathbf{i} d N}{2} \right) + \cos \left(\frac{\mathbf{p} \mathbf{j} d}{2\sqrt{3}} \right) \sin \left(\frac{\mathbf{p} \mathbf{i} d (N+1)}{2} \right) \right\}^2, \quad (19)$$

где L – это количество графеновых лент, N – количество ячеек в графеновой ленте, d – расстояние между атомами вдоль оси x , а $\mathbf{i}$ и $\mathbf{j}$ – единичные векторы вдоль осей x и y соответственно. Расчеты, в том числе и фактора $\delta_N(\mathbf{p})$, для этой и других структур можно найти в работе [103]. Изучая спектры рассеяния, можно получить две дифракционные картины на основной и второй гармониках. Дифракционных максимумов на второй гармонике больше, чем на основной, что дает больше информации о структуре изучаемой системы. В результате дифракционный анализ можно проводить, изучая сразу две дифрактограммы, что позволяет получить более подробную информацию об объекте исследования и может в будущем стать мощным методом изучения структуры вещества.

4.3.2. *Рассеяние рентгеновских УКИ на многоатомных системах с дефектами.* Ранее мы рассмотрели рассеяние УКИ произвольными многоатомными наносистемами. Каждая из наносистем не может

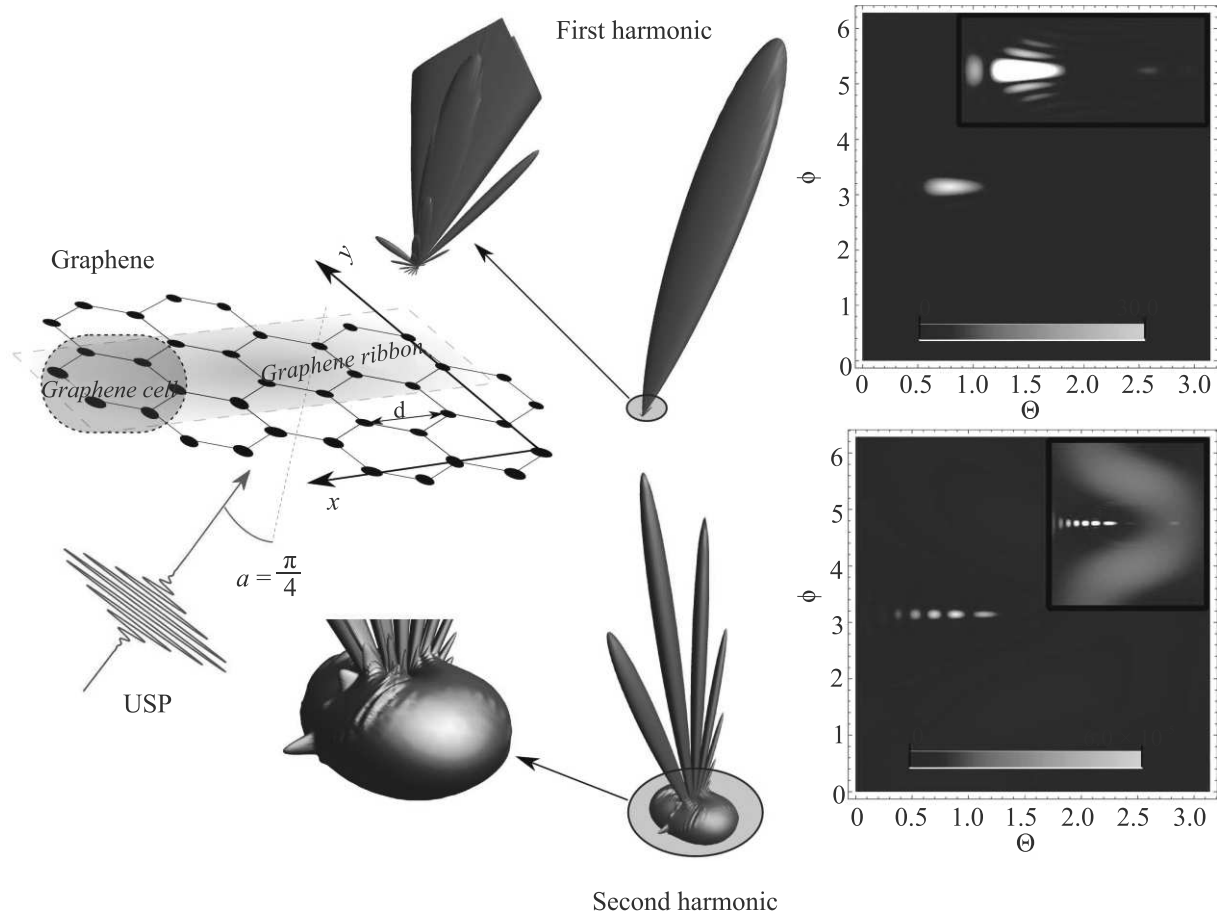


Рис. 4. (Цветной онлайн) 3D диаграмма направленности спектров рассеяния УКИ и контурный график для спектров, где θ и ϕ – углы (в радианах) в сферической системе координат. Вставки в контурные графики показывают увеличенный (более контрастный) спектр рассеяния УКИ с частотой $\omega_0 = 100$ а.е., длительностью импульса τ , соответствующей 43 ас, и амплитудой $E_0 = 1000$ а.е. Количество графеновых лент и ячеек $L = 10$, $N = 10$ соответственно. Угол падения α между $\mathbf{n}_0$ и осью z был выбран как $\alpha = \pi/4$

быть идеальной, она будет всегда содержать дефекты типа вакансий (в том числе – разрывы) и – изменения геометрии наносистемы (например, изгибы). Поэтому необходимо показать, что по дифракционной картине можно судить о дефектах в наносистемах. Основой будет являться формула (16). Важно, что в формуле (18) лишь множитель $\delta_N(\mathbf{p})$ зависит от взаимного пространственного расположения атомов системы, а функции G , F зависят лишь от характеристик изолированных атомов независимо от их места расположения. Поэтому необходимо исследовать изменения фактора $\delta_N(\mathbf{p})$ с учетом дефекта в сравнении с его значениями без дефекта. Будем считать, что дефектную наноструктуру можно представить в виде нескольких регулярных подсистем, геометрически расположенных произвольным образом относительно друг друга. К такого рода дефектам можно отнести, например, разрывы и изги-

бы, либо их различные комбинации. Рассмотрим для простоты расчет фактора $\delta_N(\mathbf{p})$ в случаях, когда наноструктура (мишень) состоит из двух регулярных подсистем, расположенных произвольным образом относительно друг друга [90]. В формуле (16) проводится суммирование по всем атомам наносистемы. Можно показать [90], что фактора $\delta_N(\mathbf{p})$ для системы с дефектами (типа вакансии)

$$\delta_N(\mathbf{p}) = \delta_{N+N_D}(\mathbf{p}) - \Delta\delta_N(\mathbf{p}),$$

$$\Delta\delta_N(\mathbf{p}) = \sum_{a_D, b_D} e^{i\mathbf{p}(\mathbf{R}_{a_D} - \mathbf{R}_{b_D})} + \sum_{a, a_D} e^{i\mathbf{p}(\mathbf{R}_a - \mathbf{R}_{a_D})}, \quad (20)$$

где a_D и b_D – номера атомов, фиктивно вставленных в вакансии, а a – номера атомов исходной дефектной системы.

С учетом этого можно получить выражения для поправки $\Delta\delta_N(\mathbf{p})$ для различных систем с дефектами [90]. Фактор $\Delta\delta_N(\mathbf{p})$ чувствителен к дефектам,

даже небольшим, а это значит, что по спектрам рассеяния можно судить о дефектах. Изучение других систем и обобщение на сложные структуры можно найти в работе [90].

4.3.3. Рассеяние рентгеновских УКИ на многоатомных системах с учетом тепловых колебаний атомов. Учет тепловых колебаний обычно определяется фактором Дебая–Валлера e^{-W} [56], описанным в гл. 3. Современная научная деятельность направлена на изучение этого фактора для сложных многоатомных систем. Основная проблема состоит в том, что для расчета W необходимо знание закона дисперсии в изучаемом веществе, т.е. $\omega_{\mathbf{k}}$ в зависимости от волнового вектора $\mathbf{k}$. В простейшем случае линейной цепочки из одинаковых атомов этот закон хорошо известен: $\omega_k = 2\sqrt{\gamma/M} \sin(ka/2)$, где γ – коэффициент жесткости между атомами в цепочке, M – масса атома, k – волновой вектор, a – межатомное расстояние. Фактор Дебая–Валлера находят теоретически, с определенными допущениями, например, не учитывая многофононные эффекты. Это связано с тем, что в общем виде изучаемый фактор W достаточно сложен, в нем учитывается и время взаимодействия электромагнитного поля с системой атомов. В случае УКИ результаты можно упростить, если считать, что время взаимодействия УКИ с многоатомной системой во много раз меньше характерных времен тепловых колебаний. Соответственно можно получить более точное выражение для учета тепловых колебаний. Этот вопрос был рассмотрен в [89] и показано, что для линейной цепочки можно получить точное выражение, учитывающее тепловые колебания атомов. Эти результаты были также обобщены на случай сложных многоатомных систем. Было показано, что тепловые колебания влияют только на фактор $\delta_N(\mathbf{p})$ (в работе [89] использовалось обозначение $g_N(\mathbf{p}) = \delta_N(\mathbf{p}) - N$), который для цепочки одинаковых атомов имеет вид

$$\langle g_N(\mathbf{p}) \rangle_T = 2 \sum_{m=1}^N (N-m) \cos(\mathbf{p} \cdot \mathbf{d} m) e^{-\frac{(\mathbf{p} \cdot \mathbf{i})^2}{M} J(m)}, \quad (21)$$

где величина $J(m)$ представляется в виде интеграла

$$J(m) = \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{N \omega_{\mathbf{k}}} \frac{1 + \exp(-\omega_{\mathbf{k}}/T)}{1 - \exp(-\omega_{\mathbf{k}}/T)} \sin^2\left(\frac{k m}{2}\right), \quad (22)$$

где T – это температура, $\mathbf{i}$ – единичный вектор, направленный вдоль цепочки. Выражение (22) при большом числе атомов в системе $N \gg 1$ можно представить через интеграл, заменив $\sum_{\mathbf{k}} \frac{2}{N} \rightarrow \int_0^\pi dk$. Хорошо известный фактор Дебая–Валлера для линейной цепочки получится, если заменить в выражении

(22) $\sin^2(\frac{k m}{2}) \rightarrow 1/2$. Также получится случай жесткой цепочки, если $\gamma \rightarrow \infty$. Интересным фактом являются различия в (21) при $T = 0$ и $\gamma \rightarrow \infty$, что хорошо известно как “нулевые колебания”. Представим обобщение полученных результатов для УКИ на случай сложных многоатомных систем [89]

$$\langle \delta_N(\mathbf{p}) \rangle_T = \sum_{\mathbf{R}_a^0, \mathbf{R}_b^0} e^{-i\mathbf{p}(\mathbf{R}_a^0 - \mathbf{R}_b^0)} \times e^{-\sum_s \frac{(\mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_s)^2}{NM\omega_s} (2\langle n^s \rangle_T + 1) \sin^2[\mathbf{k}(\mathbf{R}_a^0 - \mathbf{R}_b^0)/2]}, \quad (23)$$

где $\langle n^s \rangle_T = (e^{\omega_s/T} - 1)^{-1}$, N – это общее число атомов в рассматриваемой системе, $\mathbf{R}_a^0$ – радиус-вектор равновесного положения атома с номером a в мишени, s – индекс моды нормальных колебаний, $\mathbf{e}_s$ – единичные векторы поляризации, перпендикулярные волновому вектору $\mathbf{k}$, суммирование $\sum_s$ производится по всем значениям $\mathbf{k}$ и по всем ветвям спектра колебаний.

Основной вывод состоит в том, что влияние тепловых колебаний при взаимодействии УКИ с многоатомной системой такой же, как при использовании фактора Дебая–Валлера. Дифракционные пики уменьшаются, а ширина спектральных линий увеличивается (для 1-, 2- и 3-мерных систем есть свои особенности). Представленный здесь фактор (23) в отличие от фактора Дебая–Валлера учитывает многофононные эффекты. Заменив в (23) $\sin^2[\mathbf{k}(\mathbf{R}_a^0 - \mathbf{R}_b^0)/2] \rightarrow 1/2$, мы получим хорошо известное выражение $\langle \delta_N(\mathbf{p}) \rangle_T = e^{-W} \sum_{\mathbf{R}_a^0, \mathbf{R}_b^0} e^{-i\mathbf{p}(\mathbf{R}_a^0 - \mathbf{R}_b^0)}$, где e^{-W} – это фактор Дебая–Валлера. Важно отметить, что если число атомов в системе велико, $N \gg 1$, то основной вклад в сумму $\sum_{\mathbf{R}_a^0, \mathbf{R}_b^0}$ в (23) вносят члены при $(\mathbf{R}_a^0 - \mathbf{R}_b^0) \gg 1$, что приводит к замене $\sin^2[\mathbf{k}(\mathbf{R}_a^0 - \mathbf{R}_b^0)/2] \rightarrow 1/2$. Это в свою очередь приводит к тому, что при $N \gg 1$ выражение (23) можно заменить на $e^{-W} \sum_{\mathbf{R}_a^0, \mathbf{R}_b^0} e^{-i\mathbf{p}(\mathbf{R}_a^0 - \mathbf{R}_b^0)}$. При $N \sim 1$ необходимо пользоваться выражением (23).

4.4. Рассеяние рентгеновских УКИ на динамических системах. На первый взгляд кажется, что использование выражения (2) для описания процессов в реальном времени (TRI) оправдано в случае применения методики преобразования Фурье, аналогично стационарным системам. Это вполне корректное предложение, если принять, что длительность рентгеновского импульса меньше временной шкалы, на которой разворачивается движение электронного волнового пакета в изучаемой системе [7, 106, 107]. Более тщательное рассмотрение физики, лежащей

в основе процесса рассеяния с временным разрешением, быстро выявляет неточности в простой логике, лежащей в основе выражения (2), см. [7]. Такой вопрос был подробно изучен с использованием последовательного КЭД описания света и вещества в [101, 108, 109], где было показано, что дифференциальная вероятность рассеяния может быть представлена в виде

$$\frac{dP}{d\Omega} = \frac{dP_e}{d\Omega} \int d^3r \int d^3r' \left\langle \hat{n}(\mathbf{r}') C(\hat{\mathcal{H}}) \hat{n}(\mathbf{r}) \right\rangle_T e^{i\mathbf{p}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')} ,$$

$$C(\hat{\mathcal{H}}) = \frac{\tau \Delta E}{\sqrt{8\pi \ln 2}} \exp \left\{ -\frac{\tau^2}{8\pi \ln 2} \left(\hat{\mathcal{H}} - \langle \hat{\mathcal{H}} \rangle_T \right)^2 \right\} . \quad (24)$$

Здесь $\langle \dots \rangle_T$ – это среднее значение по отношению к электронному волновому пакету за время задержки T , $\hat{\mathcal{H}}$ – электронный гамильтониан, τ – длительность импульса, ΔE – диапазон энергии фотонов, принимаемых детектором, $\langle \hat{\mathcal{H}} \rangle_T$ – средняя энергия волнового пакета, $\hat{n}(\mathbf{r})$ – оператор электронной плотности. Среднее значение $\langle \hat{n}(\mathbf{r}) \rangle_T = \rho(\mathbf{r}, T)$. Можно видеть, что при $C(\hat{\mathcal{H}}) = 1$ выражение (24) перейдет в (2). Отпечаток электронных переходов в конечной спектральной полосе рентгеновского импульса кодируется в $C(\hat{\mathcal{H}})$, который описывает корреляции рассеяния фотона в разные моменты времени в течение длительности импульса. Следует добавить, что в выражениях (2) и (24) предполагается, что поперечная и продольная длины когерентности падающего рентгеновского излучения больше, чем размер объекта. Интересно отметить, что выражение (24) можно получить непосредственно из (14), см. [7]. Нахождение общего критерия для случая $C(\hat{\mathcal{H}}) = 1$, когда необходимо пользоваться выражением (24) является сложной задачей, но для частного случая (вполне общего для XFELs) это можно сделать. Рассмотрим напряженность поля УКИ, во много раз сильнее атомного, т.е. при $E \gg E_a = 5.14 \times 10^9$ В/см или в единицах интенсивности $I \gg I_a = 3.51 \times 10^{16}$ Вт/см². В этом случае для грубой оценки можно воспользоваться приближением Крамера–Хеннебергера [110], тогда волновая функция начального состояния $\phi_0(\mathbf{r}, T)$ системы будет смещена по координате на величину $\mathbf{a}(t)$, т.е. $\phi_0(\mathbf{r} + \mathbf{a}(t), T)$. Координатное смещение $\mathbf{a}(t)$ можно оценить из классического пути, пройденного частицей в поле УКИ, тогда $\mathbf{a}(t) = \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t'} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t'') dt'' dt'$. В поле многоциклового УКИ это смещение будет $\mathbf{a}(t) \sim \mathbf{E}_0/\omega_0^2$ ($\mathbf{E}_0$ – это амплитуда импульса, а ω_0 – центральная частота). Для немногочисленного импульса оценку надо делать непосредственно из $\mathbf{a}(t)$. Фотон может быть излучен в любой момент времени во время действия УКИ на систему, соответствен-

но, если даже время действия импульса во много раз меньше характерных времен изучаемой системы, то излучение фотона в момент времени t “застает” систему в состоянии $\phi_0(\mathbf{r} + \mathbf{a}(t), T)$. Детектируется излучение, усредненное по времени, поэтому мы не можем при излучении обнаружить систему в состоянии $\phi_0(\mathbf{r}, T)$. Это возможно только когда $\mathbf{a}(t)$ мало в сравнении с размерами атома $a_B \sim 1$, т.е. при $\mathbf{a}(t) \ll 1$. В случае многоциклового УКИ это означает $E_0/\omega_0^2 \ll 1$.

Проиллюстрируем разницу между выражениями (2) и (24). Представим результаты рассеяния в распределениях $p_x - p_z$ ($p_y = 0$) и электронных зарядов волнового пакета, соответствующие когерентной суперпозиции собственных состояний $3d$ и $4f$ атомарного водорода. Электронный волновой пакет готовится импульсом лазерной накачки в виде когерентной суперпозиции с равной заселенностью $3d$ и $4f$ и собственные состояния атомарного водорода с проекцией орбитального углового момента, равного нулю. Направление поляризации генерируемого волнового пакета совпадает с осью z . Электронная динамика волнового пакета зондируется ультракоротким рентгеновским импульсом, распространяющимся вдоль направления y . Серия диаграмм рассеяния, полученных путем изменения временной задержки накачки-зонда, служит для изображения электронного движения с высоким пространственным и временным разрешением, см. рис. 5. Такая разница между картинками рассеяния (а) и (с) возникает из-за того, что вероятность рассеяния не просто связана с преобразованием Фурье мгновенной электронной плотности, а связана с электронным волновым пакетом через выражение (24). Очевидно, что картина рассеяния на рис. 5с менее разнообразна, чем корректно рассчитанная картина на рис. 5а. Картинки рассеяния от электронных волновых пакетов, соответствующих когерентным суперпозициям различных наборов собственных состояний (кроме $3d$ и $4f$), показывают столь же резкие различия между уравнениями (2) и (24). Таким образом, рис. 5а представляет собой необычайно яркое отражение квантовой природы света [7] и это необходимо учитывать в экспериментах [106, 111]. Иллюстративный пример, используемый здесь, лежит в интересующем временном и энергетическом диапазоне для РСА, соответствующем динамике валентных электронов в более сложных молекулярных и биологических системах.

Следует добавить, что здесь приведен расчет для простейшей системы – атома водорода. Для более сложных систем (молекулы, наносистемы, биомолекулы и т.д.) эта задача крайне сложная, поэтому

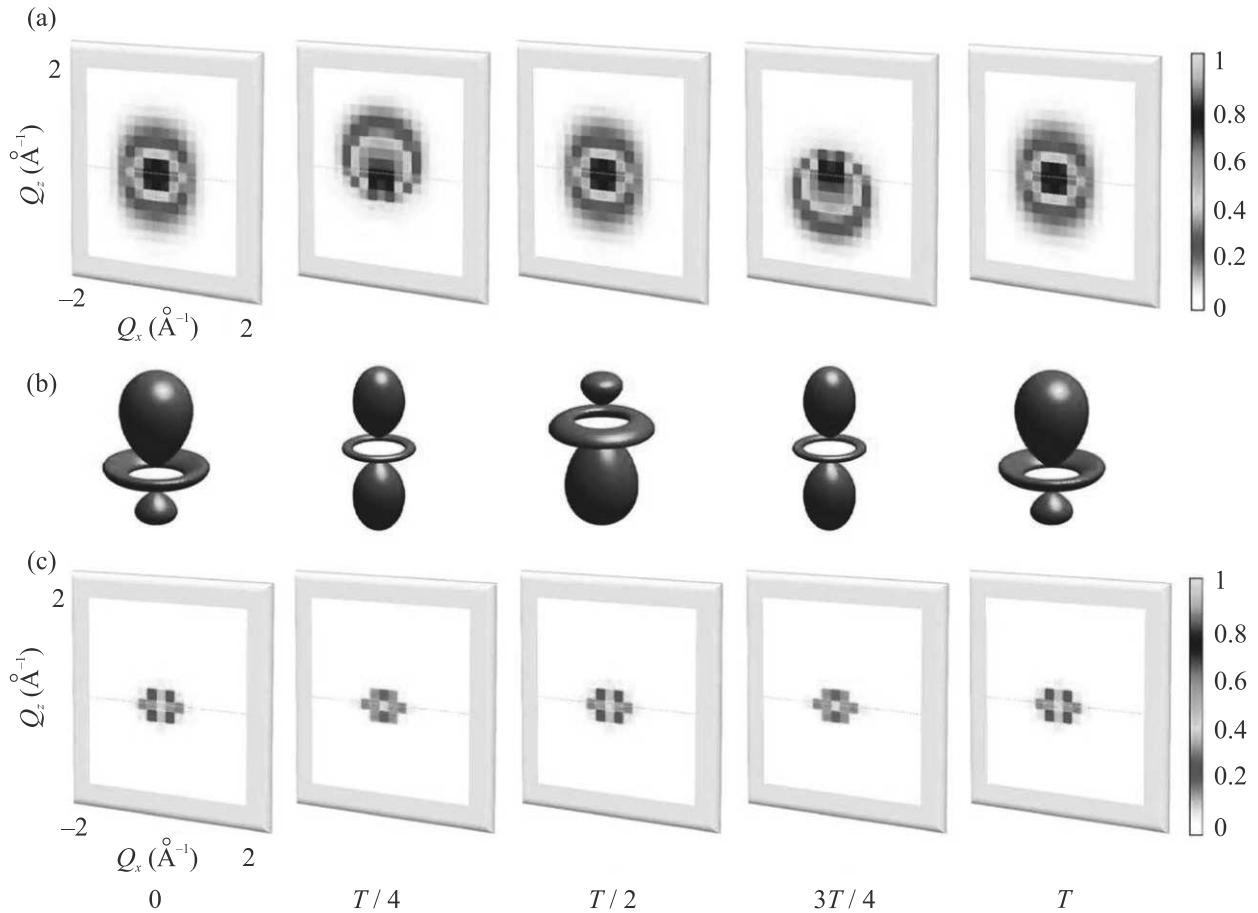


Рис. 5. (Цветной онлайн) (a) – Картина рассеяния, полученная с помощью выражения (24), (b) – распределения электронного заряда и (c) – картины рассеяния, полученные с помощью выражения (2), при временах задержки накачки-зонда $0, T/4, T/2, 3T/4$ и T , где период колебаний электронного волнового пакета составляет $T = 6.25$ фс. Изоповерхность в (b) охватывает $\sim 26\%$ полной вероятности и имеет длину $(14\text{--}17)$ $\text{\AA}$ по оси z и $(7.5\text{--}9)$ $\text{\AA}$ по осям x и y . На волновой пакет воздействуют рентгеновским импульсом длительностью 1 фс с фотонами 4 кэВ. Рисунок из работы [7]

необходимы теоретические подходы, позволяющие решать такие задачи. Одним из таких подходов может быть приближение внезапных возмущений, см., например, [112] или другие подходы [107].

4.5. Критерии применимости и неприменимости выражения (3) в РСА. Обобщим результаты данной главы и в целом критерии использования в РСА основной формулы (3). Данная формула и подходы, основанные на преобразовании Фурье, не применимы или несут в себе существенные погрешности в следующих случаях:

Критерий 1. Напряженности поля УКИ $E \gtrsim c^2$ (а.е.), что соответствует $E \gtrsim 10^{14}$ В/см или интенсивности $I \gtrsim 10^{25}$ Вт/см 2 .

- Это следует из того, что при $E \gtrsim c^2$ вклад магнитной составляющей УКИ становится большим и происходит рассеяние не только на цен-

тральной частоте ω_0 , но и генерируются высшие гармоники $2\omega_0, 3\omega_0, \dots$. При $E \ll c^2$ вклад этих гармоник мал по сравнению со вкладом на центральной частоте ω_0 . Механизм генерации высших гармоник – это влияние магнитного поля импульса на рассеяние.

Критерий 2. Рентгеновские УКИ являются малоцикловыми, т.е. $\tau\omega_0 \sim 1$ (τ – это длительность УКИ, ω_0 – несущая (центральная) частота УКИ).

- При $\tau\omega_0 \sim 1$ рассеяние происходит в широком спектральном диапазоне частот в интервале $\Delta\omega \sim 1/\tau$. При $\tau \rightarrow \infty$ этот интервал сужается и рассеяние происходит преимущественно на центральной частоте падающего УКИ ω_0 (в действительности, достаточно считать $\tau\omega_0 \gg \gg 1$). Выражение (3) получено в предположе-

нии непрерывного воздействия излучения на многоатомную структуру, т.е. $\tau \rightarrow \infty$.

Критерий 3. Фактор Дебая–Валлера некорректен при небольшом числе атомов в системе $N \sim 1$ и необходимо пользоваться выражением (23).

- Данное условие не является строгим, из-за которого нельзя применять формулу (3) при $N \sim 1$, поскольку тепловые колебания не изменяют положение дифракционных пиков, а уменьшают высоту пиков и могут уширять спектральные линии при рассеянии. Для более точного изучения структур, где число атомов $N \sim 1$, лучше пользоваться выражением (23), но для оценок и вполне приемлемых результатов можно использовать фактор Дебая–Валлера.

Критерий 4. Необходимо учитывать рассеяние фотона в различные моменты времени в течение длительности УКИ, т.е. когда $C(\hat{H})$ в выражении (24) существенно отличается от единицы. Например, коэффициент $C(\hat{H}) = 1$ при $E \gg E_a$ и $\mathbf{a}(t) \ll 1$, где $\mathbf{a}(t) = \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t'} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t'') dt'' dt'$. В случае многоциклового импульса смещение $\mathbf{a}(t) \sim \mathbf{E}_0/\omega_0^2$, где $\mathbf{E}_0$ – это амплитуда импульса, а ω_0 – центральная частота.

- Количественных оценок этого условия нет в общем виде. Только конкретный расчет для заданной динамической структуры может дать ответ на корректность использования в РСА формулы (2) (то же самое, что и (3)). Использование формулы (24) и ее модификаций в РСА затруднительно из-за сложности расчетов в случае $C(\hat{H})$, отличного от единицы.

Следует также добавить, что в выражении (3) тоже есть параметры, которые необходимо изучать для сложных многоатомных структур и развивать новые теоретические подходы. Такими параметрами являются $A(\mathbf{p})$ и $S(\mathbf{p})$. Более того, для систем, состоящих из небольшого числа атомов, при восстановлении $\rho(\mathbf{r}, t)$ с использованием метода Фурье, необходимо проводить оценку вклада некогерентного члена I_{incoh} в спектры рассеяния по формуле (3).

5. Актуальные эксперименты с использованием рентгеновских УКИ. Рентгеновские источники УКИ позволяют генерировать импульсы с энергией в достаточно широком диапазоне энергий от нескольких долей до нескольких десятков кэВ, см. табл. 1. Как указывалось выше, генерация УКИ может осуществляться разными методами. Области использования УКИ можно разделить на исследование временной динамики в различных системах,

идентификацию структур с высоким временным и пространственным разрешением, модификацию различных объектов, перевод их в экстремальные состояния и как элемент более сложного эксперимента. Использование УКИ дает мощный инструмент в различных экспериментах, которых в настоящее время множество. Они приведены как во многих оригинальных статьях, так и обзорах [9, 113–115]. Даже если ограничиться использованием только рентгеновских импульсов, количество таких работ будет слишком большим, чтобы перечислять их в данном обзоре. Поэтому выделим актуальные работы, в которых представлена типичная схема постановки экспериментов. Так как значительный прогресс сейчас в экспериментальных исследованиях достигается на установках XFELs, то многие из этих работ сделаны с использованием этого источника УКИ.

5.1. Динамика атомов и молекул. Показательной работой является эксперимент по визуализации молекулярного движения с использованием фемтосекундного рентгеновского рассеяния электроциклической химической реакции [116]. Данная работа стала основой целого ряда исследований в этой области. В ней были получены данные ядерных движений с помощью фемтосекундных рентгеновских импульсов на источнике XFEL на установке SLAC. Была построена в реальном пространстве эволюционирующая динамика во времени хорошо известной электроциклической реакции, где кольцевой 1,3-циклогексадиен (CHD) образует линейный 1,3,5-гексатриен (HT). Была представлена серия отсортированных во времени структурных снимков, полученных сверхбыстрым рассеянием жесткого рентгеновского излучения с временным разрешением. Эксперимент проводился с использованием метода *pump-probe*, см. рис. 3. Молекулы CHD подавались в газовой фазе при давлении 3–4 Торр, а реакция инициировалась оптическим лазером (*pump*) с длиной волны 267 нм. Структурная эволюция CHD к HT наблюдалась от рентгеновского УКИ с энергией фотона 8.3 кэВ, длительностью 30 фс, 10^{12} фотонов в импульсе, при фокусировке на площади 30×30 мкм. Сигнал от когерентного рассеяния был выбран в модели независимых атомов. Далее были рассчитаны дифракционные картины для всех возможных траекторий, которые сравнивались с экспериментальными картинками. Используя математический инструмент, известный как нелинейная оптимизация наименьших квадратов, было обнаружено, что для соответствия экспериментальным результатам требуется всего несколько траекторий. Затем были выведены атомные структуры из смоделированных траек-

торий, которые лучше всего соответствовали экспериментальным данным. После этого появилась возможность создать “видеофильм” молекулярной реакции и определить, что реакция протекала внутри молекулы.

Не только процессы образования химической связи, но и множество других в настоящее время активно исследуются, например, вращение молекул [117] (см. “Supplementary Movie” там же), прямое наблюдение ядерной реорганизации, обусловленной сверхбыстрыми спиновыми переходами [118], и наблюдение быстрых химических процессов при радиоллизе воды [119] и др.

5.2. Наноструктурированные материалы и конденсированные среды С помощью рентгеновских источников УКИ возможен также анализ наноструктур конденсированного вещества с высоким временным разрешением. Когерентная дифракционная визуализация с помощью XFELs делает структуры и процесс их сборки видимыми, что делает этот метод уникальным. Одним из недавних примеров эксперимента на EuXFEL [120], направленного на определение наноразмерных структур, является исследование погруженных в гелий наноструктур. В этой работе было получено изображение нанокластеров гелия с крошечными кластерами и микроструктурами, которые растут внутри них. Капельки гелия находятся в сверхтекучем состоянии, поэтому внедренные атомы могут двигаться без какого-либо трения внутри капель и собираться особым образом, образуя наноструктуры, которые не могут быть созданы в другом месте.

Изучение таких структур охватывает широкий спектр методов и научных областей, например, для визуализации деформации внутри наноструктурированных материалов. Во многих случаях цель состоит в том, чтобы получить трехмерное представление исследуемой структуры [121], т.е. найти $\rho(\mathbf{r})$. Многие задачи материаловедения решаются с применением инструментов XFELs [122]. Отдельным направлением является управление и контроль за состоянием различных элементов микро- и наноэлектроники. Например, это исследование сверхбыстрых процессов намагничивания в наномасштабе. В работе [123] подобное исследование проводилось с использованием магнитооптического эффекта Керра. Авторы сравнили пороговую чувствительность эффекта Керра со спиновой динамикой, измеренной с помощью фотоэмиссии для тонкой пленки Fe/W (110).

5.3. Биологические объекты. С помощью TR-SFX могут наблюдаться в реальном времени с атомным или околоатомным пространственным разрешением

реакции, важные в биологии, биомедицине и фармакологии. Предложено множество различных экспериментальных схем и методов с использованием рентгеновских УКИ [113, 124–127]. XFELs в жестком рентгеновском диапазоне частот существенно изменили способ проведения экспериментов с помощью последовательной фемтосекундной кристаллографии с временным разрешением (TR-SFX) [128] для биологических объектов. Независимо от подходов к исследованию биологических объектов в кристаллографии белка с помощью XFEL существует четыре основных этапа [129]: 1) порционная подготовка образцов микрокристаллов; 2) доставка образцов и манипулирование ими; 3) работа XFEL и прибора для сбора дифракционных данных; и 4) анализ данных и интерпретация моделей. Одна из активно используемых методик – это рентгеновское рассеяние с временным разрешением в растворах (TR-XSS) [130]. Например, один из наиболее хорошо исследованных и интересных процессов – это фотоцикл РРР. Это вещество является бактериальным фотосенсором, в котором свет запускает реакцию с несколькими промежуточными звеньями. Такой процесс был подробно исследован на EuXFEL в 2020 г. с использованием методики TR-SFX и показано [113], что можно получить высококачественные карты данных, содержащих химически значимые положительные и отрицательные признаки изучаемого процесса. Для определения схемы было усреднено 519 336 дифракционных картин. Помимо этого изучаются процессы фолдинга белка [130], фотосинтеза [131] и др.

Когерентная дифракционная визуализация (CDI) появилась как многообещающий метод получения трехмерных изображений живых клеток [132, 133]. Это альтернатива просвечивающей электронной микроскопии, где образец находится при криогенных температурах, а также специальным образом подготовлен. Другой важный пример новых экспериментов по визуализации, возможных с помощью XFELs, – это исследования мембранных белков, которые не могут быть кристаллизованы в обычные трехмерные кристаллические структуры. Впервые стали возможны дифракционные эксперименты на одиночных двумерных решетках белков; расчеты показывают, что эффектов радиационного повреждения можно избежать в однократных экспериментах, даже на незамороженных решетках в их естественной влажной среде. Кристаллография белка с использованием XFELs показала обнадеживающие результаты: до настоящего времени более 150 структур были найдены с использованием этого источника УКИ.

5.4. *Экстремальное состояние вещества.* Жесткое рентгеновское излучение дает возможность переводить вещество в экстремальное состояние (давления, температуры, электрические и магнитные поля) [134]. С его помощью можно моделировать процессы, происходящие в ядрах звезд, планет, получать плазму и даже производить рождение пар частица-античастица и др. Например, интересные исследования переходов кремния при давлениях выше 14 ГПа представлены в работе [135]. В работе объединили новую геометрию дифракции рентгеновских лучей на основе FEL с управляемым сжатием лазером, чтобы прояснить детали возникновения фазовых переходов в кремнии. Было отмечено снижение гидростатической границы раздела фаз в кремнии при высоких давлениях и определено начало плавления выше 14 ГПа. В этой работе образцы поликристаллического кремния с полиимидными абляторами толщиной 50 мкм подвергались ударному сжатию путем облучения с помощью импульсной наносекундной лазерной системы на неодимовом стекле. Во время прохождения ударной волны через образец Si рентгеновский луч XFEL высокой яркости источника LCLS использовался для определения структуры материала посредством дифракции рентгеновских лучей в геометрии Дебая–Шеррера.

Методики изучения экстремального состояния вещества с использованием XFELs могут быть различными, например, быстрые эксперименты по сжатию, проведенные с использованием динамических алмазных наковален, дают возможность изучить явления, зависящие от скорости сжатия. В работе [136] описана экспериментальная установка, позволяющая выполнять дифракцию рентгеновских лучей с временным разрешением с использованием рентгеновских УКИ при быстром сжатии материалов. При использовании рентгеновских импульсов с энергией 25.6 кэВ достигнута скорость сжатия до 160 ТПа/с для золота. Возможность применения тонко настроенных профилей давления открывает возможности для будущих исследований, таких как использование колебаний пьезоактуатора для имитации распространения сейсмических волн в Земле и др.

6. Заключение. Таким образом, мы последовательно рассмотрели в этом обзоре источники, методы, новые теории и актуальные эксперименты по использованию рентгеновских УКИ в стационарных и временно-зависимых задачах РСА. Были определены 4 критерия использования хорошо известных в РСА формул (2) и (3). Формулы (2) и (3) некорректны, если выполняются критерии 1–4 (см. подраздел

4.5). Таким образом, по критериям использования формул (2) и (3) в РСА можно сделать выводы:

1. В настоящее время первый критерий для большинства экспериментальных установок, используемых в РСА, можно не учитывать, поскольку интенсивности $I \gtrsim 10^{25}$ Вт/см² пока что не используют в РСА. Тем не менее в ближайшем будущем такие интенсивности могут быть использованы в РСА и необходимо учитывать рассеяние не только на основной гармонике, но и на высших гармониках.

2. Рентгеновские УКИ, используемые в настоящее время в РСА, являются многоцикловыми, поэтому второй критерий можно не учитывать. Несмотря на это, необходимо понимать, что при использовании малоцикловых (субцикловых) УКИ в РСА формулы (2) и (3) не корректны. Рассеяние на субцикловых импульсах является интересным направлением и в будущем может быть также использовано в РСА.

3. Третий критерий не является строгим, но может повысить точность расшифровки многоатомных структур с небольшим числом атомов $N \sim 1$. Для атомов с $N \gg 1$ можно использовать фактор Дебая–Валлера.

4. Четвертый критерий является сложно оцениваемым и необходимо предварительно проводить расчеты для оценки корректности использования формул (2) и (3) в РСА.

Следует добавить, что в этих критериях нет случая, учитывающего поправки на вклад внутренних электронов тяжелых элементов в рассеяние рентгеновского излучения. Энергия электронов на таких внутренних оболочках может достигать кэВ и использование приближения свободного электрона и внезапных возмущений становится некорректно, поскольку энергия электронов на таких оболочках сравнима с энергией рентгеновского фотона. Несмотря на это, хорошо известно (см., например, [11]), что такие поправки не настолько велики, чтобы их учитывать в рассеянии рентгеновского излучения от всех электронов тяжелого атома. Это вполне понятно, поскольку электронов на внутренних оболочках тяжелых атомов мало по сравнению с числом электронов на других оболочках, где приближения свободного электрона и внезапных возмущений хорошо работают. Таким образом, формулы (1), (2) и (3) имеют широкую область применения, что обуславливает их использование в РСА уже многие десятилетия.

Методы РСА с использованием рентгеновских импульсов в настоящее время бурно развиваются и совершенствуются. Для использования всех возможностей современных источников УКИ необходимы не только экспериментальные исследования, но и теоре-

тические, дающие фундамент в понимании и интерпретации полученных результатов. Уже сейчас сделано множество открытий с использованием рентгеновских источников УКИ. Без сомнений, эта область исследования в будущем сможет дать множество ответов не только в таких областях наук как физика, биология, химия, медицина, материаловедение и др., но и на стыке этих областей.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (# 20-12-50310); гранта Президента РФ (# МД-4260.2021.1.2); государственного задания РФ (# 0793-2020-0005).

1. C. Suryanarayana and N. M. Grant, *X-Ray Diffraction: A Practical Approach*, Plenum Press, N.Y., London (1998).
2. N. Jones, *Nature* **505**, 602 (2014).
3. U. Pietsch, V. Holy, and T. Baumbach, *High-Resolution X-Ray Scattering*, Springer Science+Business Media, N.Y. (2004).
4. A. Benediktovich, I. Feranchuk, and A. Ulyanenko, *Theoretical Concepts of X-Ray Nanoscale Analysis*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2014).
5. F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).
6. F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, and M. Nisoli, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49**, 062001 (2016).
7. G. Dixit, O. Vendrell, and R. Santra, *PNAS* **109**, 11636 (2012).
8. P. Peng, C. Marceau, and D.M. Villeneuve, *Nature Reviews Physics* **1**, 144 (2019).
9. P. M. Kraus, M. Zurch, S. K. Cushing, D. M. Neumark, and S. R. Leone, *Nature Reviews Chemistry* **2** 82 (2018).
10. N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics*, Saunders College, N.Y. (1979).
11. R. W. James, *The Optical Principles of the Diffraction of X-rays (Ox Bow)*, Woodbridge, Connecticut (1982).
12. H. A. Hauptman, *Rep. Prog. Phys.* **54**, 1427 (1991).
13. R. Schoenlein, T. Elsaesser, K. Holldack, Z. Huang, H. Kapteyn, M. Murnane and M. Woerner, *Philos. Trans. R. Soc. A* **377**, 20180384 (2019).
14. Г.В. Фетисов, *УФН* **190**, 2 (2020) [G.V. Fetisov, *Phys. Usp.* **63**, 2 (2020)].
15. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, А.А. Шимко, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **110**, 9 (2019) [R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, A.A. Shimko, A.V. Pakhomov, and N.N. Rozanov, *JETP Lett.* **110**, 15 (2019)].
16. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, А.В. Пахомов, М.О. Жукова, А.Н. Цыпкин, Н.Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 237 (2021) [R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, A.V. Pakhomov, M.O. Zhukova, A.N. Tsypkin, and N.N. Rozanov, *JETP Lett.* **113**, 242 (2021)].
17. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, И. Бабушкин, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **128**, 541 (2020) [R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, I. Babushkin, A.V. Pakhomov, N.N. Rozanov, *Optics and Spectroscopy* **128**, 529 (2020)].
18. J. M. J. Madey, *J. Appl. Phys.* **42**, 1906 (1971).
19. D. A. G. Deacon, L. R. Elias, J. M. J. Madey, G. J. Ramian, H. A. Schwettman, and T. I. Smith, *Phys. Rev. Lett.* **38**, 892 (1977).
20. J. Duris, S. Li, T. Driver et al. (Collaboration), *Nature Photon.* **14**, 30 (2020).
21. P. K. Maraju, C. Grazioli, M. Di Fraia et al. (Collaboration), *Nature* **578**, 386 (2020).
22. A. Mak, G. Shamuilov, P. Salen, D. Dunning, J. Hebling, Y. Kida, R. Kinjo, B. W. J. McNeil, T. Tanaka, N. Thompson, Z. Tibai, G. Toth, and V. Goryashko, *Rep. Prog. Phys.* **82**, 025901 (2019).
23. D. Dunning, B. W. J. McNeil, and N. R. Thompson, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 104801 (2013).
24. Н.С. Гинзбург, Е.Р. Кочаровская, А.С. Сергеев, С.Е. Фильченков, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 655 (2021).
25. V. Ayvazyan, N. Baboi, J. Bahr, et al. (Collaboration), *Eur. Phys. J. D* **37**, 297 (2006).
26. LSLS <https://lcls.slac.stanford.edu/>.
27. T. Ishikawa, H. Aoyagi, T. Asaka et al. (Collaboration), *Nat. Photon.* **6**, 540 (2012).
28. E. Allaria, L. Badano, S. Bassanese et al. (Collaboration), *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 485 (2015).
29. I. S. Ko, H.-S. Kang, H. Heo et al. (Collaboration), *Appl. Sci.* **7**, 479 (2017).
30. C. J. Milne, T. Schietinger, M. Aiba et al. (Collaboration), *Appl. Sci.* **7**, 720 (2017).
31. M. Altarelli, *The european X-ray free-electron laser technical design report*, DESY, Hamburg, Germany (2006); <https://www.xfel.eu/>.
32. J. Weisshaupt, V. Juve, S. Ku, M. Woerner, T. Elsaesser, S. Alisauskas, A. Pugzlys, and A. Baltuska, *Nat. Photon.* **8**, 927 (2014).
33. M. Braun, K. Schmising, M. Kiel, N. Zhavoronkov, J. Dreyer, M. Bargheer, T. Elsaesser, C. Root, T. E. Schrader, P. Gilch, W. Zinth, and M. Woerner, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 248301 (2007).
34. M. Holtz, C. Hauf, A.-A. H. Salvador, R. Costard, M. Woerner, and T. Elsaesser, *Phys. Rev. B* **94**, 104302 (2016).
35. F. Zamponi, P. Rothhardt, J. Stingl, M. Woerner, and T. Elsaesser, *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **109**, 5207 (2012).

36. H. Wiedemann, *Particle accelerator physics II: nonlinear and higher-order beam dynamics*, Springer, Berlin, Germany (1999).
37. J. Kim, K. H. Kim, K. Y. Oang, J. H. Lee, K. Hong, H. Cho, N. Huse, R. W. Schoenlein, T. K. Kim, and H. Ihee, *Chem. Commun.* **52**, 3734 (2016).
38. D. Schick, M. Herzog, A. Bojahr, W. Leitenberger, A. Hertwig, R. Shayduk, and M. Bargeer, *Struct. Dyn.* **1**, 064501 (2014).
39. S. Wintz, V. Tiberkevich, M. Weigand, J. Raabe, J. Lindner, A. Erbe, A. Slavin, and J. Fassbender, *Nat. Nanotechnol.* **11**, 948 (2016).
40. A. A. Zholents and M. S. Zolotarev, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 912 (1996).
41. R. W. Schoenlein, *Science* **287**, 2237 (2000).
42. K. Holldack, J. Bahrdt, A. Balzer et al. (Collaboration), *J. Synchrotron Radiat.* **21**, 1090 (2014).
43. P. A. Ганеев, *УФН* **183**, 815 (2013) [R. A. Ganeev, *Phys. Usp.* **56**, 772 (2013)].
44. P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
45. M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
46. W. Becker, S. Long, and J. K. McIver, *Phys. Rev. A* **50**, 1540 (1994).
47. B. Li, K. Wang, X. Tang, Y. Chen, C. D. Lin, and C. Jin, *New J. Phys.* **23** 073051 (2021).
48. J. Biegert, F. Calegari, N. Dudovich, F. Quere, and M. Vrakking, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54**, 070201 (2021).
49. A. М. Желтиков, *УФН* **191**, 386 (2021) [A. M. Zheltikov, *Phys. Usp.* **64**, 370 (2021)].
50. J. P. Marangos, *Philos. Trans. A Math. Phys. Eng. Sci.* **377**(2145), 20170481 (2019).
51. K. M. Hoogeboom-Pot, J. N. Hernandez-Charpak, X. Gu, T. D. Frazer, E. H. Anderson, W. Chao, R. W. Falcone, R. Yang, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and D. Nardi, *PNAS* **112**(16), 4846 (2015).
52. D. Rupp, N. Monserud, B. Langbehn et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **8**, 493 (2017).
53. J. T. Moody, A. Tremaine, and P. Musumeci, *Phys. Rev. Accel. Beams* **19**, 021305 (2016).
54. J. Duris, P. Musumeci, M. Babzien et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **5**, 4928 (2014).
55. I. Gadjev, N. Sudar, M. Babzien et al. (Collaboration), *Sci. Rep.* **9**, 532 (2019).
56. Ч. Киттель, *Квантовая теория твердых тел*, Наука, М. (1967), 492 с. [Ch. Kittel, *Quantum theory of solids*, Wiley, N.Y. (1963)].
57. G. Taylor, *Acta Crystallogr. D* **59**, 1881 (2003).
58. G. Taylor, *Acta Crystallogr. D* **66**, 325 (2010).
59. A. L. Patterson, *Zeitschrift fur Kristallographie* **90**, 517 (1935).
60. D. W. Green, V. M. Ingram, and M. F. Perutz, *Proceedings of the Royal Society of London A* **225**, 287 (1954).
61. M. G. Rossmann and D. M. Blow, *Acta Crystallogr.* **15**, 24 (1962).
62. B.-Ch. Wang, *Methods Enzymol.* **115**, 90 (1985).
63. B. N. Wardleworth, *EMBO J.* **21**, 4654 (2002).
64. E. Dodson, *Acta Crystallographica Section D* **59**, 1958 (2003).
65. R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert, and J. Hajdu, *Nature* **406**, 752 (2000).
66. Z. Jurek, G. Oszlanyi, and G. Faigel, *Europhys. Lett.* **65**, 491 (2004).
67. H. N. Chapman, P. Fromme, A. Barty et al. (Collaboration), *Nature* **470**, 73 (2011).
68. H. N. Chapman, A. Barty, M. J. Bogan et al. (Collaboration), *Nat. Phys.* **2**, 839 (2006).
69. EuXFEL <https://www.xfel.eu/>.
70. S. Boutet, L. Lomb, G. J. Williams et al. (Collaboration), *Science* **337**, 362 (2012).
71. Л. М. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Теория поля*, 7-е изд., испр. Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., М. (1988), 512 с.
72. D. N. Makarov *Opt. Express* **27**, 31989 (2019).
73. В. А. Астапенко, *ЖЭТФ* **139**, 228 (2011) [V. A. Astapenko, *JETP* **112**, 193 (2011)].
74. V. A. Astapenko and E. V. Sakhno, *Appl. Phys. B* **126**, 23 (2020).
75. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, V. S. Lisitsa, X. Li, and E. S. Khramov, *Contrib. Plasma Phys.* **59**, 189 (2019).
76. В. А. Астапенко, *ЖЭТФ* **157**, 67 (2020) [V. A. Astapenko, *JETP* **130**, 56 (2020)].
77. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and E. S. Khramov, *Matter and Radiation at Extremes* **6**, 034001 (2021).
78. V. A. Astapenko, F. B. Rosmej, and E. S. Khramov, *Atoms* **8**, 41 (2020).
79. D. N. Makarov, M. K. Eseev, and K. A. Makarova, *Opt. Lett.* **44**, 3042 (2019).
80. Б. М. Карнаков, В. Д. Мур, С. В. Попруженко, В. С. Попов, *УФН* **185**, 3 (2015) [B. M. Karnakov, V. D. Mur, S. V. Popruzenko and V. S. Popov, *Phys.-Uspekhi* **58**, 3 (2015)].
81. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and V. S. Lisitsa, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50**, 235601 (2017).
82. Д. Н. Макаров, В. И. Матвеев, *Письма в ЖЭТФ* **103**, 464 (2016) [D. N. Makarov and V. I. Matveev, *JETP Lett.* **103**, 415 (2016)].
83. S. Matsuyama, T. Inoue, J. Yamada et al. (Collaboration), *Sci. Rep.* **8**, 1 (2018).
84. CoReLS https://www.ibs.re.kr/eng/sub02_03_05.do.
85. А. М. Дыхне, Г. Л. Юдин, *УФН* **125**, 377 (1978) [A. M. Dykhne and G. L. Yudin, *Sov. Phys.-Uspekhi* **21**, 549 (1978)].

86. S. Blanes, F. Casas, J. A. Oteo and J. Ros, *Phys. Rep.* **470**, 151 (2009).
87. В.И. Матвеев, *ЖЭТФ* **124**, 1023 (2003) [V.I. Matveev, *JETP* **97**, 915 (2003)].
88. Д.Н. Макаров, В.И. Матвеев, *ЖЭТФ* **144**, 905 (2013) [D.N. Makarov and V.I. Matveev, *JETP* **117**, 784 (2013)].
89. Д.Н. Макаров, В.И. Матвеев, *Письма в ЖЭТФ* **101**, 677 (2015) [D.N. Makarov and V.I. Matveev, *JETP Lett.* **101**, 603 (2015)].
90. В.И. Матвеев, Д.Н. Макаров, *Письма в ЖЭТФ* **103**, 314 (2016) [V.I. Matveev and D.N. Makarov, *JETP Lett.* **103**, 286 (2016)].
91. Д.Н. Макаров, В.И. Матвеев, *ЖЭТФ* **152**, 227 (2017) [D.N. Makarov and V.I. Matveev, *JETP* **125**, 189 (2017)].
92. D. Dmitrovski, E. A. Solovov, and J. S. Briggs, *Phys. Rev. A* **72**, 043411 (2005).
93. Н.Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **124**, 75 (2018) [N. N. Rosanov, *Optics and Spectroscopy* **124**, 72 (2018)].
94. R. M. Arkhipov, A. V. Pakhomov, M. V. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N. N. Rosanov, *Opt. Lett.* **44**, 1202 (2019).
95. В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский, *Квантовая электродинамика*, 3-е изд., испр., Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., М. (1989), 728 с.
96. А.М. Желтиков, *УФН* **187**, 1169 (2017) [A. M. Zheltikov, *Phys.-Uspekhi* **60**, 1087 (2017)].
97. M. Pardy, *Int. J. Theor. Phys.* **42**, 99 (2003).
98. C. H. R. Ooi, W. L. Ho, and A. D. Bandrauk, *Sci. Rep.* **7**, 6739 (2017).
99. Д.Н. Макаров, В.И. Матвеев, *Письма в ЖЭТФ* **103**, 851 (2016) [D.N. Makarov and V.I. Matveev, *JETP Lett.* **103**, 756 (2016)].
100. C. Itzykson and J. B. Zuber, *Quantum Field Theory*, McGraw-Hill, N.Y. (1980).
101. N. E. Henriksen and K. B. Moller, *J. Phys. Chem. B* **112**, 558 (2008).
102. M. K. Eseev, A. A. Goshev, and D. N. Makarov, *Nanomaterials* **10**, 1355 (2020).
103. M. K. Eseev, A. A. Goshev, K. A. Makarova, and D. N. Makarov, *Sci. Rep.* **11**, 3571 (2021).
104. F. Salvat, J. D. Martinez, R. Mayol, and J. Parellada, *Phys. Rev. A* **36**, 467 (1987).
105. D. N. Makarov, V. I. Matveev, and K. A. Makarova, *Russ. Phys. J.* **61**, 19 (2018).
106. S. R. Leone, C. W. McCurdy, J. Burgdorfer et al. (Collaboration), *Nature Photon.* **8**, 162 (2014).
107. K. Bennett, M. Kowalewski, J. R. Rouxel, and S. Mukamel, *PNAS* **115**, 6538 (2018).
108. K. B. Moller and N. E. Henriksen, *Struc. Bond.* **142**, 185 (2012).
109. S. Tanaka, V. Chernyak, and S. Mukamel, *Phys. Rev. A* **63**, 63405 (2001).
110. F. Morales, M. Richter, S. Patchkovskii, and O. Smirnova, *PNAS* **108**, 16906 (2011).
111. G. Dixit, J. M. Slowik, and R. Santra, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 137403 (2013).
112. В.И. Матвеев, Д.Н. Макаров, *Письма в ЖЭТФ* **99**, 299 (2014) [D.N. Makarov and V.I. Matveev, *JETP Lett.* **99**, 258 (2014)].
113. S. Pandey, R. Bean, T. Sato et al. (Collaboration), *Nat. Methods* **17**, 73 (2020).
114. E. Mizohata, T. Nakane, Y. Fukuda, E. Nango, and S. Iwata, *Biophysical Reviews* **10**, 209 (2018).
115. C. Sanchez-Cano, R. A. Alvarez-Puebla, J. M. Abendroth et al. (Collaboration), *ACS Nano* **15**, 3754 (2021).
116. M. Minitti, J. Budarz, A. Kirrander et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **114**, 255501 (2015).
117. E. T. Karamatskos, S. Raabe, T. Mullins, A. Trabattori, P. Stammer, G. Goldsztejn, R. R. Johansen, K. Dlugolecki, H. Stapelfeldt, M. J. J. Vrakking, S. Trippel, A. Rouzee, and J. Kupper, *Nat. Commun.* **10**, 3364 (2019).
118. Y. Jiang, L. C. Liu, and A. Sarracini, *Nat. Commun.* **11**, 1530 (2020).
119. Z.-H. Loh, G. Doumy, C. Arnold et al. (Collaboration), *Science* **367**, 179 (2020).
120. B. Langbehn, K. Sander, Ye. Ovcharenko et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **121**, 255301 (2018).
121. I. Barke, H. Hartmann, D. Rupp, L. Fluckiger, M. Sauppe, M. Adolph, S. Schorb, C. Bostedt, R. Treusch, C. Peltz, S. Bartling, T. Fennel, K.-H. Meiwes-Broer, and T. Möller, *Nat. Commun.* **6**, 6187 (2015).
122. A. Madsen, J. Hallmann, G. Ansaldi et al. (Collaboration), *J. Synchrotron Radiat.* **28**, 637 (2021).
123. R. Gort, K. Buhlmann, G. Saerens, S. Daster, A. Vaterlaus, and Y. Acremann, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 112404 (2020).
124. G. Mills, R. Bean, and A. P. Mancuso, *Appl. Sci.* **10**, 3642 (2020).
125. K. Pande, C. D. M. Hutchison, G. Groenhof et al. (Collaboration), *Science* **352**, 725 (2016).
126. T. R. M. Barends, L. Foucar, A. Ardevol et al. (Collaboration), *Science* **350**, 445 (2015).
127. M. Schmidt, *Int. J. Mol. Sci.* **20**, 1401 (2019).
128. J. Tenboer, S. Basu, N. Zatsepin et al. (Collaboration), *Science* **346**, 1242 (2014).
129. H. Liu and W. Lee, *Int. J. Mol. Sci.* **20**, 3421 (2019).
130. T. W. Kim, S. J. Lee, J. Jo, J. G. Kim, H. Ki, C. W. Kim, K. H. Cho, J. Choi, J. H. Lee, M. Wulff, Y. M. Rhee, and H. Ihee, *PNAS* **117**, 14996 (2020).

-
131. C. Gisriel, J. Coe, R. Letrun et al. (Collaboration), Nat. Commun. **10**, 5021 (2019).
132. J.N. Clark, L. Beitra, G. Xiong et al. (Collaboration), Science **341**, 56 (2013).
133. J. Miao, T. Ishikawa, I.K. Robinson, and M.M. Murnane, Science **348**, 530 (2015).
134. M.I. McMahon, J. Phys. Condens. Matter (2021); DOI:10.1088/1361-648x/abef26.
135. E.E. McBride, A. Krygier, A. Ehnes et al. (Collaboration), Nat. Phys. **15**, 89 (2018).
136. Zs. Jenei, H.-P. Liermann, R. Husband et al. (Collaboration), Rev. Sci. Instrum. **90**, 065114 (2019).

Об идентификации искаженных кристаллических кластеров

Б. А. Клумов¹⁾

Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 августа 2021 г.

После переработки 30 августа 2021 г.

Принята к публикации 31 августа 2021 г.

Модифицированный метод вращательных инвариантов используется для идентификации искаженных кристаллических кластеров в неупорядоченных средах. Предлагается новый способ определения таких кластеров, включая трудно определяемые обычными методами искаженные ОЦК (bcc) кристаллиты. Особенностью таких кластеров является вторая оболочка из 6 частиц, которая может при тепловом искажении объединяться с первой оболочкой, что сильно усложняет идентификацию подобных кристаллитов, однако, как показано в настоящей работе, комбинированное использование вращательных инвариантов второго рода q_4 и q_6 и третьего рода w_4 и w_6 позволяет достаточно просто решить эту проблему.

DOI: 10.31857/S1234567821190046

Идентификация кристаллических кластеров в веществе — одна из важных проблем физики конденсированного состояния. Начиная с недавней пионерской работы [1], доступны методы экспериментального определения положений отдельных атомов в аморфных веществах (металлических стеклах). И если в [1] число наблюдаемых кластеров из атомов исчислялось десятками, то на сегодняшний день определить пространственное положение атомов стало возможным для нескольких десятков тысяч частиц [2], т.е. твердые аморфные вещества уже сегодня можно изучать на самом детальном уровне — на уровне отдельных атомов. То же самое наблюдается и в вычислительном эксперименте, значение которого в изучении свойств конденсированного вещества неуклонно растет. Важную роль в определении связи между структурой твердого вещества и его физическими свойствами играют свойства ближнего и среднего ориентационных порядков, которые дают наиболее полное описание пространственного расположения атомов и их окружения. Целью настоящей работы является создание метода надежного выявления различных кристаллических фаз в неупорядоченных системах с учетом возможного искажения кристаллических кластеров, которое может быть довольно значительным как при нагреве твердого тела, так и при его образовании в процессе кристаллизации из расплава.

Здесь основным инструментом получения конфигураций атомов является метод классической моле-

кулярной динамики, реализованный для канонического ансамбля (NVT) с термостатом Нозе–Хувера (Nose–Hoover) и периодическими граничными условиями [3]. Типичное число частиц в исследуемых системах $N \sim 10^5$. При изучении структурных свойств искаженных плотноупакованных кластеров ГЦК (fcc) и ГПУ (hcp) парное взаимодействие частиц описывалось потенциалом Леннарда–Джонса (который в безразмерном виде имеет вид $U_{LJ}(r) = 4(1/r^{12} - 1/r^6)$). При исследовании структуры ОЦК (bcc) кристаллитов использовался потенциал Дебая–Хюккеля (Юкавы) ($U(r) = (Q/r) \exp(-r/\lambda)$), где Q — заряд частицы, а λ — длина экранирования). Известно, что для малых значений параметра экранировки $\kappa \sim 1$ твердотельной фазе системы Юкавы соответствует bcc решетка [4]. Здесь $\kappa \equiv D/\lambda$, а D — среднее межчастичное расстояние в системе.

Особое внимание здесь уделяется поиску ОЦК-подобных (bcc-like) кластеров. Это связано с тем, что идентификация таких кластеров в веществе часто бывает затруднена вследствие тепловой деформации второй координационной оболочки и ее объединения с первой. Вторая оболочка bcc кристалла состоит из 6 атомов (в первой — находится 8 атомов) и она находится рядом (на расстоянии $\sqrt{4/3}D \simeq 1.15D$) с первой координационной оболочкой. При нагреве и/или кристаллизации обе оболочки часто объединяются и становятся неразличимы; такое искажение bcc решетки требует специальных методов для ее идентификации.

Для описания ближнего ориентационного порядка и определения типа различных кристаллических

¹⁾e-mail: klumov@ihed.ras.ru

кластеров будем использовать метод вращательных инвариантов (часто еще называемый методом ВООР (Bond Orientational Order Parameter)). Этот метод был предложен в работах [5–8] и широко используется для количественного описания ближнего и среднего ориентационных порядков в самых разных системах, таких как система Леннарда–Джонса [9–11], твердые сферы [12–15], коллоидная [16–18] и комплексная (пылевая) плазма [19–24], металлические стекла [1, 25–29], гранулированные системы [30, 31], жидкости с аномальными свойствами [32, 33] и др. На сегодняшний день это один из самых используемых методов для описания ближнего ориентационного порядка. Это, в частности, связано с тем, что он очень чувствителен к наличию угловых корреляций среди ближайших соседей.

В рамках этого метода для каждой i -й частицы сначала определяется число $n_{nn}(i)$ ближайших соседей. Вектора $\mathbf{r}_{ij}$, соединяющие i -частицу с ближайшими соседями ($j = 1, n_{nn}$), позволяют определить локальный ориентационный параметр $q_{lm}(i)$ для каждого атома или частицы согласно:

$$q_{lm}(i) = \frac{1}{N_b(i)} \sum_{j=1}^{N_b(i)} Y_{lm}(\theta_j, \phi_j), \quad (1)$$

где $Y_{lm}(\theta, \phi)$ – сферические гармоники, θ, ϕ – угловые координаты j -й частицы, определяемые вектором $\mathbf{r}_{ij}$.

Отметим, что определяемый таким образом локальный ориентационный порядок зависит только от двух параметров – углового распределения ближайших соседей θ_i и ϕ_i , а расстояние до ближайших соседей входит только неявно при их определении. Обычно ближайшими соседями считаются частицы, которые находятся в первой координационной сфере данного атома. Для каждой частицы, используя $q_{lm}(i)$, можно вычислить вращательные инварианты второго $q_l(i)$ и третьего $w_l(i)$ рода:

$$q_l(i) = \left(\frac{4\pi}{(2l+1)} \sum_{m=-l}^{m=l} |q_{lm}(i)|^2 \right)^{1/2}, \quad (2)$$

$$w_l(i) = \sum_{\substack{m_1, m_2, m_3 \\ m_1 + m_2 + m_3 = 0}} \begin{pmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} \times q_{lm_1}(i) q_{lm_2}(i) q_{lm_3}(i), \quad (3)$$

где $\begin{pmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}$ – Вигнеровские $3j$ -символы; в последнем уравнении суммирование производится по

всем индексам $m_i = -l, \dots, l$, которые удовлетворяют условию: $(m_1 + m_2 + m_3) = 0$. Определенные таким образом вращательные инварианты и являются численной характеристикой ближнего ориентационного порядка. Отметим, что при таком определении каждый тип кристаллической решетки имеет свой уникальный набор вращательных инвариантов q_l и w_l . Это и дает возможность определить наблюдаемую в эксперименте или численном моделировании упорядоченную структуру, сравнивая значения q_l, w_l , вычисленные для каждой частицы с величинами $q_l^{\text{id}}, w_l^{\text{id}}$ для идеальных решеток. Для идентификации кристаллической структуры в простых системах обычно достаточно использовать вращательные инварианты второго рода q_4, q_6 , инварианты третьего рода w_4, w_6 используются в литературе значительно реже. Для совершенных кристаллических решеток вращательные инварианты q_l и w_l могут быть достаточно легко вычислены. Они приводятся в табл. 1 для ряда идеальных кристаллических решеток.

Если рассматривать кристаллические кластеры с плотной упаковкой (NN = 12), то самые высокие значения $q_6 \simeq 0.66$ у икосаэдра – важного структурного элемента квазикристаллической фазы в металлических стеклах [1, 25, 34] и переохлажденных жидкостях. Величину q_6 часто используют для описания степени порядка в системе частиц, поскольку для полностью неупорядоченной системы (газовая фаза) среднее значение $q_6 \simeq 0.29$ (для NN = 12), а все значения параметра q_6 для твердотельных кластеров заметно больше.

В случае бсс решетки, учитывая ее важность и упомянутую выше сложность идентификации, в табл. 1 приводятся вращательные инварианты не только для первой координационной сферы (NN = 8) и для первых двух (NN = 14), но также и для случая, когда число ближайших соседей NN = 12. Довольно часто встречаются системы, в которых одновременно сосуществуют несколько твердотельных фаз (например, фсс, hcp, бсс). Такое наблюдается, например, в экспериментах с плазменными кристаллами [21] и коллоидной плазмой [18]. В плотной системе твердых сфер вблизи предела Бернала одновременно сосуществуют фсс и hcp кластеры [14] и т.д. В таких случаях, удобно с практической точки зрения определять твердотельные кластеры в системе, вычисляя вращательные инварианты с фиксированным числом ближайших соседей, характерным для плотной упаковки атомов (NN = 12).

Как легко можно показать, этому случаю для идеальной решетки бсс соответствуют только два

Таблица 1. Вращательные инварианты q_l и w_l ($l = 4, 6$) ряда идеальных кристаллических структур, вычисленные для фиксированного числа ближайших соседей (NN), которые указаны для каждого типа симметрии. Представлены значения q_4 , q_6 , w_4 , w_6 для следующих решеток: гексагональная плотная упаковка (ГПУ, hcp), гранецентрированная кубическая (ГЦК, fcc), икосаэдрическая (ico), объемноцентрированная кубическая (ОЦК, bcc)

тип кристаллической решетки	q_4	q_6	w_4	w_6
ГПУ (hcp) (NN = 12)	0.097	0.485	0.134	-0.012
ГЦК (fcc) (NN = 12)	0.19	0.575	-0.159	-0.013
Икосаэдрическая (ico) (NN = 12)	1.4×10^{-4}	0.663	-0.159	-0.169
ОЦК (bcc) (NN = 8)	0.5	0.628	-0.159	0.013
ОЦК (bcc) (NN = 14)	0.036	0.51	0.159	0.013
ОЦК (bccVoronoi) (14 NN)	0.224	0.567	-0.159	0.013
ОЦК (bcc ₁) (NN = 12)	0.137	0.559	-0.138	0.0043
ОЦК (bcc ₂) (NN = 12)	0.1	0.542	-0.089	0.01

набора вращательных инвариантов, в которые выражаются пятнадцать возможных комбинаций положений 6-ти атомов второй оболочки. Как можно показать, вращательные инварианты с величиной $q_6 \approx 0.137$ присутствуют только в 3 из 15 комбинаций – им соответствует конфигурация атомов из 12 частиц, в которой отсутствуют две частицы из второй оболочки, расположенные друг напротив друга (см. вставку на рис. 1а, где показаны ближайшие две координационные сферы у кластера bcc). Вращательные инварианты с $q_6 \approx 0.1$ – соответственно, присутствуют в 12 комбинациях и, как будет показано ниже, они при нагреве (и кристаллизации) bcc решетки доминируют. Этот красивый эффект является следствием симметрии bcc решетки и сильно упрощает поиск даже искаженных bcc-подобных кристаллитов в исследуемой системе.

На рисунке 1 показаны двумерные распределения частиц на плоскости вращательных инвариантов второго (q_4 – q_6) (панель (а)) и третьего рода (w_4 – w_6) (панель (б)), полученные для нагретых кристаллов: bcc, hcp и fcc. Все инварианты вычислены с фиксированным числом ближайших соседей $n_{nn} \equiv 12$. Вращательные инварианты для идеальных решеток fcc, hcp, bcc также показаны для сравнения с искаженными решетками. Отсутствие заметных пересечений данных распределений позволяет надежно идентифицировать каждый тип искаженной кристаллической решетки, несмотря на значительный тепловой разброс каждого из распределений. На этом примере хорошо видно, что двумерные распределения (и особенно, комбинация двух распределений – на плоскостях (q_4 – q_6) и (w_4 – w_6)) гораздо точнее, чем одномерные, определяют тип кристаллита, образовавшегося в исследуемой системе. Таким образом, используя вращательные инварианты, вычисленные с $n_{nn} = 12$ и указанные двумерные рас-

пределения (например, для кристаллизующегося вещества) можно сразу определить какой из типов кристаллической решетки характерен для рассматриваемой системы.

В работе [35] был предложен изящный способ обойти трудности, связанные с влиянием числа ближайших соседей n_{nn} на свойства вычисляемого с помощью метода вращательных инвариантов, ближнего ориентационного порядка. Для вычисления инвариантов q_l было предложено использовать метод многогранников Вороного (МВ или VT (Voronoi Tessellation)) [36] при поиске ближайших соседей. Метод VT не содержит никаких параметров, и поэтому проблема определения n_{nn} снимается – число ближайших соседей у заданного атома просто равно числу граней МВ, построенного методом VT. При этом, при вычислении инвариантов q_{lm} каждая частица j из ближайших соседей согласно [35] входит с весом δ_j , определяемым площадью грани многогранника Вороного s_j , на которую она опирается (см. в качестве примера вставку на рис. 1а, где показан многогранник Вороного для идеальной bcc решетки с $n_{nn} = 14$):

$$q_{lm}(i) = \frac{1}{N_b(i)} \sum_{j=1}^{N_b(i)} \delta_j Y_{lm}(\theta_j, \phi_j). \quad (4)$$

Удобно определить $\delta_j = n_{nn}s_j/S_{tot}$, где S_{tot} – площадь всех граней данного многогранника, так что $\sum_{k=1}^{n_{nn}} \delta_k \equiv n_{nn}$. При этом значения q_l и w_l не меняются для идеальных решеток fcc, hcp, ico, поскольку в этих решетках все 12 граней соответствующего многогранника Вороного имеют одинаковые площади. Для идеальной решетки bcc это не так (6-ти частицам из второй оболочки соответствуют меньшие площади МВ и, соответственно, меньший вклад в ве-

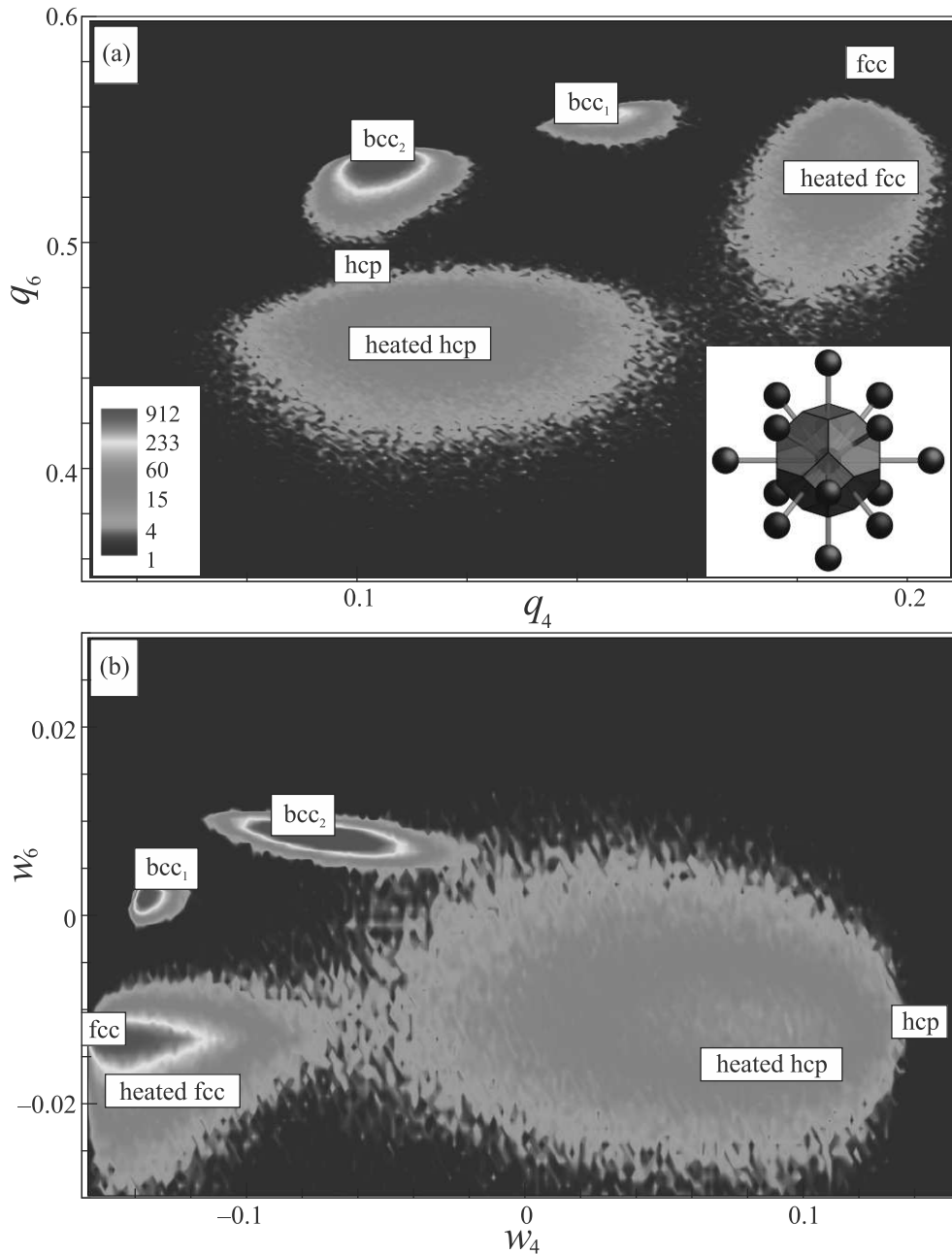


Рис. 1. (Цветной онлайн). Двумерные распределения частиц на плоскости вращательных инвариантов второго ($q_4 - q_6$) (панель (a)) и третьего рода ($w_4 - w_6$) (панель (b)) для ряда нагретых кристаллов: ОЦК (bcc), ГПУ (hcp) и ГЦК (fcc). Все инварианты вычислены с фиксированным числом ближайших соседей $n_{nn} \equiv 12$. Вращательные инварианты для идеальных решеток fcc, hcp, bcc также приведены для сравнения с соответствующими искаженными решетками. В случае bcc (см. обсуждение в тексте) набор из 15-ти возможных комбинаций четырех атомов второй оболочки bcc решетки вырождается в два набора инвариантов (bcc_1 и bcc_2) разной интенсивности, что хорошо видно на представленных графиках. Отсутствие заметных пересечений данных распределений позволяет надежно идентифицировать каждый тип искаженной кристаллической решетки, несмотря на довольно значительное тепловое уширение указанных распределений. Вставка на панели (a) показывает пространственное распределение ближайших атомов в идеальной bcc решетке: 8 атомов из первой оболочки (выделены синим цветом) и 6 атомов из второй оболочки (красный цвет). Дополнительно для кластера bcc построен многогранник Вороного (см. обсуждение в тексте)

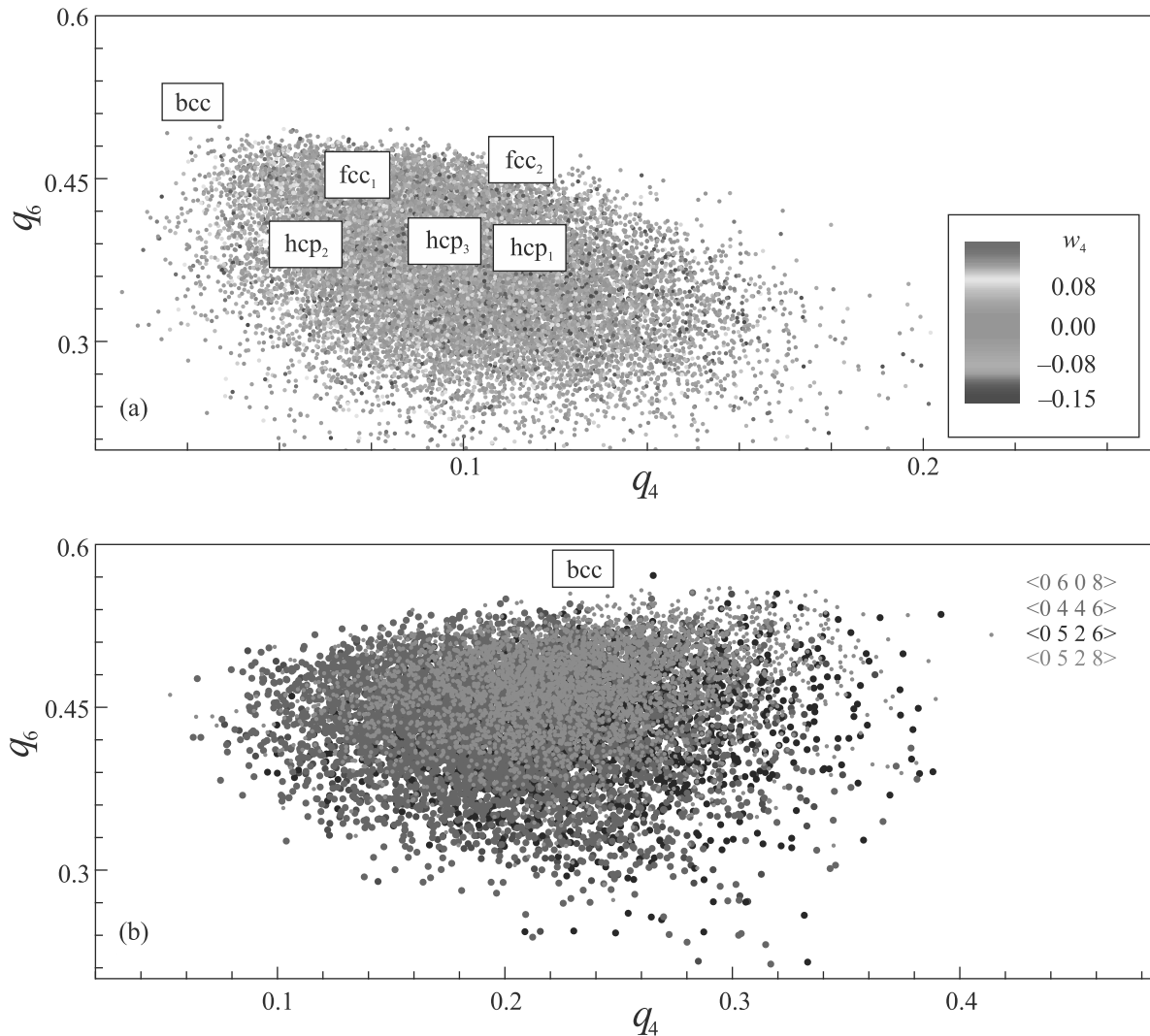


Рис. 2. (Цветной онлайн) Распределения $P_{2D}(q_i, q_j)$ на плоскости вращательных инвариантов q_4 – q_6 для нагретой ОЦК (bcc) решетки. Панель (a) соответствует случаю, когда вращательные инварианты q_4 и q_6 вычислялись с фиксированным $n_{nn} = 14$. Цвет частиц определяется значением вращательного инварианта w_4 . На панели (b) использовались те же конфигурации, но инварианты вычислялись по ближайшим соседям, определяемым методом Вороного. Дополнительно, на верхней панели показаны значения q_4 и q_6 для идеальных решеток fcc и hcp, вычисленные по $n_{nn} = 14$. Для fcc решетки это дает два набора инвариантов, а для hcp – три – они указаны на рисунке. Для нижней панели представлены данные для наиболее распространенных кластеров в такой системе (с индексами Вороного $\langle 0, 6, 0, 8 \rangle$ (зеленый цвет), $\langle 0, 4, 4, 6 \rangle$ (красный), $\langle 0, 5, 2, 6 \rangle$ (черный) и $\langle 0, 5, 2, 8 \rangle$ (синий цвет)). Хорошо виден заметный и сопоставимый разброс у обоих распределений, что не дает возможности определить тип кристаллитов в рассмотренной системе указанными методами

личину q_{lm}). Такие значения q_l и w_l представлены в табл. 1 с индексом – Voronoi.

Как меняются распределения частиц по их значениям q_4 и q_6 при использовании данного подхода? На рисунке 2, в качестве примера, приведены двумерные распределения $P_{2D}(q_i, q_j)$ частиц на плоскости (q_4 – q_6) у нагретого bcc кристалла. Конфигурации атомов были получены при нагреве системы Юкавы с параметром экранировки $\kappa = 1$, кристаллическая

фаза которой имеет тип симметрии bcc. Температура системы $T \simeq 0.3T_m$, где T_m – температура плавления. На рисунке 2а используется стандартный подход, с фиксированным числом ближайших соседей: $n_{nn} = 14$. Дополнительно к bcc, показаны значения q_4 и q_6 для идеальных решеток fcc и hcp, вычисленные по $n_{nn} = 14$. Для fcc решетки это дает два набора инвариантов, а для hcp – три и они указаны на рис. 2. Видно, что все типы рассмотренных ре-

шетонок присутствуют в показанном распределении и это не дает возможности, используя только эти данные, идентифицировать тип кристаллита в рассмотренной системе.

Рисунок 2b соответствует случаю, когда ближайшие соседи для каждого атома определялись методом Вороного, а q_{lm} вычислялись по формуле (4) с учетом площадей граней, соответствующих каждой соседней частице. Использовались те же конфигурации частиц, как и для рис. 2a. На рисунке 2b указанные распределения приведены для четырех наиболее распространенных в такой системе типов кластеров, топология которых характеризуется индексами Вороного: $\langle n_3, n_4, n_5, n_6 \rangle$. Здесь n_i равно числу граней в многограннике Вороного с числом сторон 3, 4, 5 и 6 соответственно. Распределения для каждого топологического типа кластеров показаны разным цветом, который указан на рис. 2. Видно, что даже топологические кластеры с индексами такими же, как и для идеальной бсс решетки: $\langle 0, 6, 0, 8 \rangle$, будучи искаженными в результате теплового движения атомов, дают сильный разброс в величинах q_4 и q_6 . Для остальных кластеров разброс еще больше, что по-видимому делает данный метод не очень удобным для практического использования. В [35] в качестве примера работы указанного метода использовалась система твердых сфер при высоких плотностях упаковки ϕ_{HS} , выше предела Бернала ($\phi_{HS} \geq 0.65$). Но в этом случае все кристаллиты (которыми являются кластеры fcc и hcp) легко определяются стандартным методом вращательных инвариантов с $n_{nn} = 12$ [14, 15].

Выше были рассмотрены однокомпонентные ансамбли частиц, но если в рассматриваемой системе присутствуют атомы разного сорта, метод VT, вообще говоря, необходимо модифицировать с учетом размера частиц (в mVT). Это сильно усложняет метод [35]. В [37, 38] при моделировании методом EAM (Embedded Atom Method) затвердевания многокомпонентных расплавов NiZr и CuZrAl были использованы стандартный метод ВООР и оба метода Вороного VT и mVT. В частности, было показано, что при идентификации икосаэдрических (ico-like) кластеров оба подхода VT и mVT дают близкие результаты, но завышают их число по сравнению с ВООР. Это объясняется тем, что в методе VT такими кластерами считаются все частицы с индексом Вороного $\langle 0, 0, 12, 0 \rangle$ (five-fold атомы) и среди них довольно много сильно искаженных ico-like кластеров, которые не проходят фильтр ВООР [39].

В настоящей работе предложен новый метод идентификации различных искаженных нанокристаллитов, включая трудно определяемые ОЦК-

подобные (bcc-like) кластеры. Метод использует вращательные инварианты второго и третьего рода, определяемые с фиксированным числом ближайших соседей $n_{nn} \equiv 12$. Использование распределений частиц по их значениям q_l и w_l в двумерных пространствах $(q_4 - q_6)$ и $(w_4 - w_6)$ позволяет надежно определить тип искаженной кристаллической решетки. Определение бсс-подобных кластеров основано на свойствах симметрии решетки бсс: использование 12 ближайших соседей при вычислении вращательных инвариантов вырождается только в два набора инвариантов (из возможных 15-ти комбинаций), которые заметно отличаются от плотно упакованных кластеров. При таком подходе дополнительно и сравнительно легко определяются и искаженные кластеры с плотной упаковкой (fcc-like, hcp-like, ico-like), что делает предлагаемый метод очень удобным при анализе ближнего и среднего ориентационного порядка у систем, где наблюдается сосуществование различных типов кристаллической решетки.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН #075-15-2020-785 от 23 сентября 2020 г.).

1. A. Hirata, L. J. Kang, T. Fujita, B. Klumov, K. Matsue, M. Kotani, A. R. Yavari, and M. W. Chen, *Science* **341**, 376 (2013).
2. Y. Yang, J. Zhou, F. Zhu et al. (Collaboration), *Nature* **592**, 1 (2021).
3. S. Plimpton, *J. Comput. Phys.* **117**(1), 1 (1995).
4. S. Hamaguchi, R. T. Farouki, and D. H. E. Dubin, *J. Chem. Phys.* **105**, 7641 (1996).
5. P. J. Steinhardt, D. Nelson, and M. Ronchetti, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1297 (1981).
6. P. J. Steinhardt, D. R. Nelson, and M. Ronchetti, *Phys. Rev. B* **28**, 784 (1983).
7. A. C. Mitus and A. Z. Patashinskii, *Phys. Lett. A* **87**, 179 (1982).
8. A. C. Mitus and A. Z. Patashinskii, *Phys. Lett. A* **88**, 31 (1983).
9. P. R. ten Wolde, R. J. Ruiz-Montero, and D. Frenkel, *J. Chem. Phys.* **104**, 9932 (1996).
10. J. R. Errington and P. G. Debenedetti, *J. Chem. Phys.* **118**, 2256 (2003).
11. B. A. Klumov, *JETP Lett.* **98** 259 (2013).
12. S. Torquato, T. M. Truskett, and P. G. Debenedetti, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2064 (2000).
13. Y. Jin and H. A. Makse, *Physica A* **98**, 5362 (2010).
14. B. A. Klumov, S. A. Khrapak, and G. E. Morfill, *Phys. Rev. B* **83**, 184105 (2011).

15. B. A. Klumov, Y. Jin, and H. A. Makse, *J. Phys. Chem. B* **118**, 10761 (2014).
16. A. Blaaderen and P. Wiltzius, *Science* **270**, 1177 (1995).
17. U. Gasser, E. R. Weeks, A. Schofield, P. N. Pusey, and D. A. Weitz, *Science* **292**, 5515 (2001).
18. O. A. Vasilyev, B. A. Klumov, and A. V. Tkachenko, *Phys. Rev. E* **88**(1), 012302 (2013).
19. G. E. Morfill, S. A. Khrapak, A. V. Ivlev, B. A. Klumov, M. Rubin-Zuzic, and H. M. Thomas, *Phys. Scr.* **T107**, 59 (2004).
20. G. E. Morfill, A. V. Ivlev, S. A. Khrapak, B. A. Klumov, M. Rubin-Zuzic, U. Konopka, and H. M. Thomas, *Contrib. Plasma Phys.* **44**(5–6), 450 (2004).
21. B. A. Klumov, *Phys.-Uspekhi* **53**, 1053 (2010) [*Usp. Fiz. Nauk* **180**, 1095 (2010)].
22. B. A. Klumov and G. Morfill, *JETP Lett.* **90**(6), 444 (2009).
23. D. I. Zhukhovitskii, V. N. Naumkin, A. I. Khusnulgatin, V. I. Molotkov, and A. M. Lipaev, *JETP* **130**, 616 (2020).
24. V. V. Reshetnyak, O. B. Reshetnyak, and A. V. Filippov, *JETP* **132**, 277 (2021).
25. A. Hirata, P. Guan, T. Fujita, Y. Hirotsu, A. Inoue, A. R. Yavari, T. Sakurai, and M. Chen, *Nat. Mater.* **10**, 28 (2010).
26. R. Xu, C. Chen, L. Wu, M. C. Scott, W. Theis, C. Ophus, M. Bartels, Y. Yang, H. Ramezani-Dakhel, M. R. Sawaya, H. Heinz, L. D. Marks, P. Ercius, and J. Miao, *Nat. Mater.* **14**, 1099 (2015).
27. Y. Yang, C. Chen, M. C. Scott et al. (Collaboration), *Nature* **542**, 75 (2017).
28. R. E. Ryltsev, B. A. Klumov, N. M. Chtchelkatchev, and K. Yu. Shunyaev, *J. Chem. Phys.* **145**, 034506 (2016).
29. H. W. Sheng, W. K. Luo, F. M. Alamgir, J. M. Bai, E. Ma, *Nature* **439**, 419 (2006).
30. A. Baule, F. Morone, H. J. Herrmann, and H. A. Makse, *Rev. Mod. Phys.* **90**(1), 015006 (2018).
31. M. Hanifpour, N. Francois, S. M. V. Allaei, T. Senden, and M. Saadatfar, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 148001 (2014).
32. Yu. Fomin, V. N. Ryzhov, B. A. Klumov, and E. N. Tsiok, *J. Chem. Phys.* **141**, 034508 (2014).
33. R. M. Khusnutdinoff and A. V. Mokshin, *JETP Lett.* **110**(8), 557 (2019).
34. R. Ryltsev, B. Klumov, and N. Chtchelkatchev, *Soft Matter* **11**(35), 6991 (2015).
35. W. Mickel, S. C. Kapfer, G. E. Schroder-Turk, and K. Mecke, *J. Chem. Phys.* **138**(4), 044501 (2013).
36. G. I. Voronoi, *Reine Angew. Math.* **134**, 198 (1908).
37. B. A. Klumov, R. E. Ryltsev, and N. M. Chtchelkatchev, *J. Chem. Phys.* **149**(13), 134501 (2018).
38. R. E. Ryltsev, B. A. Klumov, N. M. Chtchelkatchev, and K. Yu. Shunyaev, *J. Chem. Phys.* **149**(16), 164502 (2018).
39. B. A. Klumov, R. E. Ryltsev, and N. M. Chtchelkatchev, *JETP Lett.* **104**(8), 546 (2016).

Резонансное отражение света в лафлиновском состоянии $1/3$

А. С. Журавлев⁺, Л. В. Кулик^{+,*}, Л. И. Мусина^{+,1)}, Е. И. Белозеров^{+,*}, А. А. Загитова⁺, И. В. Кукушкин⁺

⁺ Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черногловка, Россия

^{*} Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 141700 Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 августа 2021 г.

После переработки 1 сентября 2021 г.

Принята к публикации 2 сентября 2021 г.

Экспериментально исследованы температурные зависимости спектров резонансного отражения света от лафлиновской жидкости в дробном состоянии $1/3$. Показано, что линии резонансного отражения света в условиях формирования дробного состояния имеют коллективную природу, а их энергии не подчиняются требованиям “скрытой симметрии”. Из спектров резонансного отражения измерены энергии спиновых возбуждений в лафлиновской жидкости и результаты эксперимента сравнивались с результатами решения уравнения Шредингера для нескольких частиц.

DOI: 10.31857/S1234567821190058

Двумерные электронные системы в режиме дробного квантового эффекта Холла в последнее время являются объектом научного интереса в связи с тем, что сразу несколько исследовательских групп сообщили о прямом наблюдении в дробном состоянии $1/3$ анионов – частиц с не бозевской и не фермиевской статистикой [1, 2]. Экспериментальные проявления анионной статистики были продемонстрированы в условиях холловского изолятора, когда объемные квазичастицы, для которых предсказываются нетривиальные статистические свойства, не вносят вклад в проводимость. При этом доказательство связи между транспортными свойствами дробных краевых состояний и объемных квазичастиц само по себе не является тривиальной задачей [3]. Тем не менее, несмотря на все возможные недостатки, именно магнитотранспортные эксперименты стали прорывом в исследовании квазичастиц, физика которых обсуждалась до сих пор только гипотетически [4].

Проблема с изучением нейтральных возбуждений в объеме дробных квантовых холловских изоляторов (анионных комплексов) более сложна. Такие возбуждения не активны в магнитотранспортных экспериментах, поэтому единственный способ исследования их физических свойств – оптические методы. Однако на пути экспериментаторов встают столь значительные трудности, что оказывается необходимым полностью пересмотреть современные подходы к исследованию нейтральных возбуждений в двумерных системах [5]. Связано это с тем, что в дробных состояниях оптические переходы с рождением нейтраль-

ных возбуждений (за исключением спинового экситона) являются дипольно запрещенными. Исследование же спинового экситона (SE) с помощью стандартных ЭПР методик является малоинформативным из-за теоремы Лармора (рождение спинового экситона с нулевым импульсом не приводит к изменению кулоновской энергии электронной системы).

Наиболее интересными с экспериментальной точки зрения нейтральными возбуждениями являются магнитогравитоны (MG) [6]. По существу, никаких других нейтральных возбуждений при нулевом обобщенном импульсе не предсказывается ни аналитически, ни путем точного решения уравнения Шредингера для системы из нескольких электронов. Вероятно, магнитогравитон – одно из наиболее сложно устроенных в современной физике возбуждений, аналитическое описание которого было получено совсем недавно [6]. Рождение магнитогравитона не может быть представлено в стандартных терминах формирования двухчастичных электрон-дырочных комплексов, состоящих из возбужденного квазиэлектрона над уровнем Ферми и квазидырки под уровнем Ферми. Их принято описывать на языке возмущений некоторой специальной “метрики”, введенной для системы черн-саймоновских композитных бозонов [6]. Упрощенно, можно представить магнитогравитоны, как попарно связанные “магниторотоны” с нулевым суммарным обобщенным импульсом и полным моментом вращения 2. Естественно, что с помощью дипольно разрешенных оптических переходов создать подобные возбуждения невозможно. Однако, используя сложные промежуточные состояния в валентной зоне AlGaAs/GaAs гетероструктур, авторам статьи

¹⁾ e-mail: musina.li@phystech.edu

удалось не только сформировать макроскопический ансамбль нейтральных возбуждений (предположительно магнитогравионов со спином 1 (SMG)), но и исследовать его статистические свойства с помощью фотоиндуцированного резонансного отражения [7].

В представленной работе мы исследуем особенности низкотемпературного (> 0.1 K) резонансного отражения в AlGaAs/GaAs гетероструктурах и показываем, что основные линии резонансного отражения в дробном состоянии $1/3$ соответствуют не одночастичным оптическим переходам, а коллективным переходам с рождением и уничтожением нейтральных возбуждений в электронной системе. Фактически, резонансное отражение в этом случае следует рассматривать аналогично двухчастичному рамановскому процессу с сохранением энергии и импульса возбуждающего и рассеиваемого фотонов.

Для исследований была использована узкая высококачественная гетероструктура с одиночной квантовой ямой GaAs/AlGaAs шириной 19 нм, с концентрацией электронов в двумерном канале $0.84 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$ и подвижностью более $3.5 \cdot 10^7 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$, транспортные и оптические свойства которой были подробно исследованы в статье [8]. Гетероструктура помещалась в криостат растворения со сверхпроводящим соленоидом. Оптические измерения проводились в диапазоне температур 0.1–1.5 K и магнитных полей 0–14 Тл с использованием двухсветоводной методики. Один световод служил для резонансного и нерезонансного возбуждения двумерной системы, а второй – для сбора сигналов резонансного отражения и фотолюминесценции от образца и их передачи на входную щель решетчатого спектрометра, оборудованного охлаждаемой ПЗС камерой. Факторы заполнения электронов в условиях стационарного фотовозбуждения контролировалась с помощью упрощенного варианта методики фотолюминесценции, предложенной для исследования дробных состояний КЭХ [8].

Известно, что низкотемпературные спектры нерезонансной фотолюминесценции с энергией лазерного возбуждения выше энергии оптических переходов с первого уровня Ландау электронов в валентную зону квантовой ямы связаны с рекомбинацией трехчастичных комплексов, состоящих из неравновесных электронов на нижайшем по энергии спиновом подуровне первого уровня Ландау электронов и двух дырок, одна из которых находится в валентной зоне, а вторая – под уровнем Ферми электронов [9, 10]. Чем выше магнитное поле, тем медленнее релаксация фотовозбужденных электронов, и тем больше наблюдается вкладов в спектры нерезо-

нансной фотолюминесценции от трехчастичных состояний. Именно по этой причине нерезонансная низкотемпературная фотолюминесценция не применима для определения дробных факторов заполнения электронной системы. Однако можно использовать несколько упрощенный по сравнению с резонансной фотолюминесценцией (довольно трудоемкой методикой) экспериментальный метод определения фактора заполнения $1/3$. Оказывается, что температура разрушения дробного состояния $1/3$ в диапазоне магнитных полей 8–12 Тл составляет порядка 1 K, а температура, при которой исчезает фотолюминесценция трехчастичных комплексов лежит в диапазоне до 0.8 K. Поэтому при температуре в диапазоне от 0.8 до 1.0 K нерезонансная фотолюминесценция не отличается от резонансной и может, таким образом, служить оптическим индикатором дробного состояния $1/3$ (рис. 1).

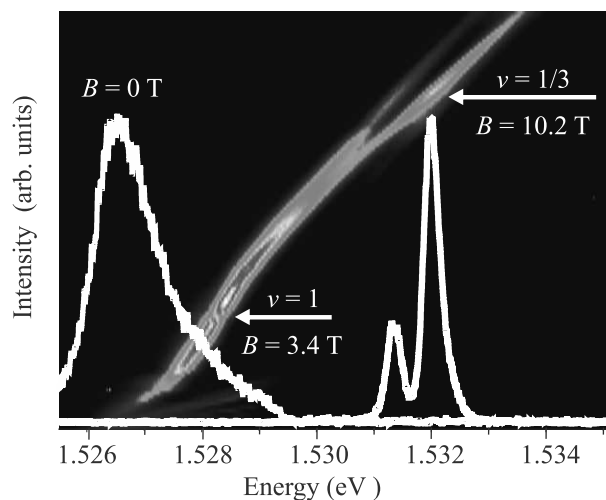


Рис. 1. (Цветной онлайн) Динамика спектров нерезонансной фотолюминесценции двумерной электронной системы от магнитного поля в диапазоне магнитных полей 0–12 Тл, измеренная при температуре 0.8 K (амплитуда линий фотолюминесценции показана псевдоцветом). Стрелками указаны факторы заполнения, определенные из спектров фотолюминесценции. Белыми сплошными линиями показаны примеры спектров фотолюминесценции электронной системы при 0 и 10.2 Тл (лафлиновское состояние $1/3$)

Основным экспериментальным результатом работы является температурная зависимость спектра резонансного отражения света на факторе заполнения $1/3$. Суть оптической методики резонансного отражения заключается в упругом рассеянии назад фотонов, полученных от перестраиваемого по длине волны лазерного источника излучения. Изменяя длину

волны излучения источника фотонов и регистрируя амплитуду рассеянного излучения, можно изучать эффективность различных каналов упругого рассеяния света от двумерной электронной системы в зависимости от энергии рассеиваемых фотонов. В работе [11] впервые сообщалось о наблюдении в гетероструктуре AlGaAs/GaAs с двумерной электронной системой в дробном состоянии $1/3$ линии резонансного отражения, энергия которой не соответствовала особенностям в двухчастичной плотности состояний возбужденной электрон-дырочной системы, состоящим из дырки в валентной зоне и возбужденному электрону в зоне проводимости гетероструктуры. Причем новая линия наблюдалась только при формировании дробного состояния $1/3$. Учитывая выполнение практически всех условий “скрытой симметрии” [12, 13] для исследуемой квантовой ямы, появление новой линии не находило разумного, подтвержденного теорией, объяснения.

Из представленной в данной работе температурной зависимости спектров резонансного отражения света вытекает, что появление аномальных линий при формировании лафлиновской жидкости $1/3$ – общая тенденция. В противоречие с существующими теориями оптических переходов в квантовом пределе (в том числе и с утверждениями, следующими из требований “скрытой симметрии” [13]) двухчастичные (экситонные) оптические переходы из валентной зоны гетероструктур AlGaAs/GaAs в зону проводимости с нулевым импульсом отдачи оказываются подавлены по сравнению с коллективными переходами, включающими в себя рождение и уничтожение промежуточных нейтральных возбуждений. Причем, как только состояние $1/3$ разрушается температурными флуктуациями, в спектре отражения начинают доминировать именно двухчастичные переходы (рис. 2, 3). Следует отметить, что подавляются двухчастичные переходы только в спектрах резонансного отражения. Если каким-то образом удастся создать дырку на нулевом уровне Ландау тяжелых дырок, то электроны из основного состояния $1/3$ рекомбинируют с этой дыркой, и требование “скрытой симметрии” удовлетворяется (энергии линий фотолюминесценции с нулевого уровня Ландау электронов на нулевой уровень Ландау тяжелых дырок не изменяются с формированием или разрушением дробного состояния $1/3$) (рис. 2). Таким образом, резонансное отражение является методикой прямого измерения энергий возбуждений с нулевым обобщенным импульсом в дробном состоянии $1/3$. Величина энергии определенного возбуждения может быть найдена из разности энергий линий резонансного от-

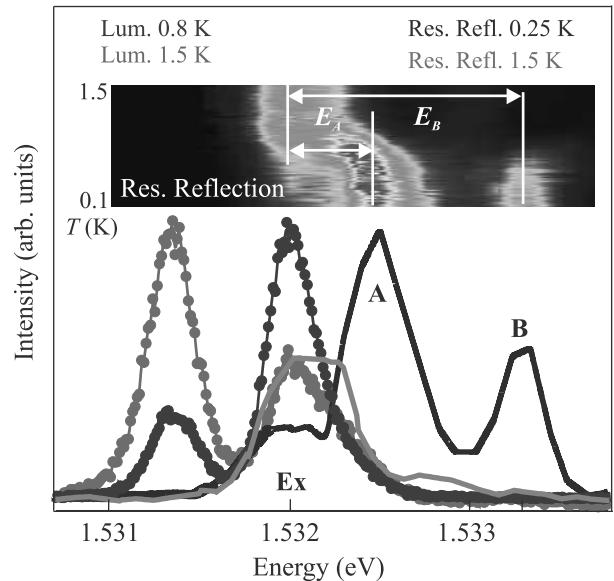


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры резонансного отражения света (сплошные линии) и нерезонансной фотолюминесценции (точки), измеренные при двух температурах, как указано на рисунке. На вставке показана экспериментальная зависимость спектров резонансного отражения в диапазоне температур 0.1–1.5 K (шкала температур нелинейная). Шкала энергий на вставке соответствует шкале энергий основного рисунка

ражения при низкой температуре, когда сформировано состояние $1/3$, и при температуре, когда дробное состояние $1/3$ разрушено (рис. 2).

Для сравнения измеряемых энергий коллективных возбуждений с теоретическими расчетами, было проведено численное решение уравнения Шредингера для системы из 8, 9 и 10 электронов в состоянии $1/3$ на плоскости с периодическими граничными условиями (подробности расчета представлены в статьях [7, 14, 15]) (рис. 3). В силу особенностей резонансного отражения в квантовом пределе, интересными для анализа являются возбуждения с изменением полного спинового квантового числа электронной системы. Это связано с тем, что любые (коллективные или двухчастичные) оптические переходы без изменения спина электронной системы в спектре резонансного отражения не активны вплоть до температур, при которых начинается макроскопическое заполнение верхнего спинового подуровня нулевого уровня Ландау электронов. Этот результат воспроизводится в спектрах резонансного отражения не только для дробного состояния $1/3$, но и для всех нецелочисленных заполнений нулевого уровня Ландау при $\nu < 2/3$. Более того, данный результат справедлив и для резонансного рэлеевского рассеяния света (экс-

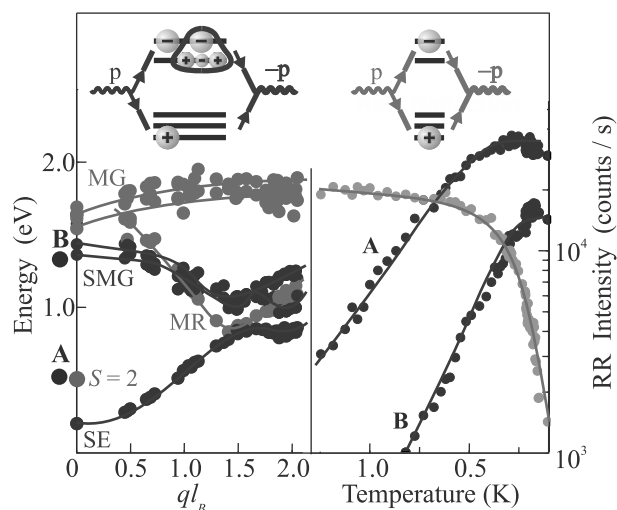


Рис. 3. (Цветной онлайн) Слева, теоретический расчет дисперсионных зависимостей трех нижайших ветвей зарядовых (спин 0 – красные точки) и спиновых (спин 1 – синие точки) возбуждений в лафлиновском состоянии 1/3 в электронной системе с параметрами ограничивающего потенциала квантовой ямы, используемой в эксперименте. Магнитное поле, как и в эксперименте, составляет 10.2 Тл. Пурпурным цветом указана энергия нижайшего спинового возбуждения со спином 2. Черные точки – эксперимент. Справа, синими точками показаны температурные зависимости интенсивностей коллективных линий резонансного отражения света (А и В), а зелеными – интенсивность двухчастичной линии (Ех). На иллюстрации схематически показаны коллективные и двухчастичные процессы резонансного отражения света. (Подробности см. в тексте статьи)

периментальной методики, наиболее близкой по физическому содержанию к резонансному отражению [16]. По видимому, при формировании дробных состояний возникают дополнительные правила отбора, которым спектры резонансного отражения и резонансного рэлеевского рассеяния света не удовлетворяют, несмотря на то, что такие правила отбора не предсказываются теоретически [17].

В спектре низкотемпературного резонансного отражения наблюдаются две основные линии, одна из которых (В), по всей видимости, связана с рождением и уничтожением спинового магнитогравитона (SMG) – связанного комплекса из двух магниторонов со спином 0 и 1 [7]. Однако природа основной линии (А) остается открытой. Ее энергия не соответствует особенностям в двухчастичной плотности электрон-дырочных (экситонных) состояний в квантовой яме, что предполагает коллективный характер процесса резонансного отражения, связанного с этой линией. В отличие от линии В, которая исче-

зает из спектра резонансного отражения при разрушении дробного состояния 1/3, энергия линии А испытывает пороговый красный сдвиг в этом случае. Подобное поведение может быть объяснено “перетеканием” спектрального веса от коллективной линии А к двухчастичной линии (Ех) в спектре резонансного отражения света при разрушении состояния 1/3. Проблема идентификации линии А состоит в том, что ее энергия не соответствует оптическим переходам с рождением возбуждений в электронной системе со спином 0 или 1, а единственным возможным кандидатом на роль коллективного возбуждения с энергией, детектируемой в эксперименте, выступает нижайшее по энергии возбуждение со спином 2 (рис. 3). Причина появления нейтральных возбуждений со спином 2 в процессе резонансного отражения света является открытым вопросом, однако экспериментальное формирование коллектива нейтральных SMG возбуждений [7] дает основание полагать, что из-за сложной валентной зоны в квантовых ямах AlGaAs/GaAs, рождение подобных нейтральных возбуждений вполне вероятно.

В заключение, были исследованы спектры низкотемпературного резонансного отражения света от двумерной электронной системы в условиях формирования дробного состояния 1/3. Показано, что основные линии в спектрах резонансного отражения света не соответствуют особенностям в двухчастичной плотности состояний возбужденной электрон-дырочной системы, а связаны с рождением и уничтожением нейтральных возбуждений в двумерной системе. Диаграмма справа рис. 3 демонстрирует стандартный (двухчастичный) процесс резонансного отражения света: i) поглощение фотона с импульсом $\mathbf{p}$, направленного вдоль направления роста квантовой ямы; ii) рождение электрон-дырочной пары, состоящей из дырки в валентной зоне и электрона на верхнем спиновом подуровне нулевого уровня Ландау зоны проводимости квантовой ямы; iii) рекомбинация фотовозбужденной электрон-дырочной пары с образованием фотона с импульсом $\mathbf{p}$ вследствие нарушения трансляционной симметрии в направлении роста квантовой ямы. Диаграмма слева рис. 3 демонстрирует нестандартный (коллективный) процесс резонансного отражения света: i) поглощение фотона с импульсом $\mathbf{p}$; ii) рождение возбуждения в двумерной электронно-дырочной системе, состоящего из фотовозбужденной электрон-дырочной пары и нейтрального возбуждения в лафлиновской жидкости; iii) рекомбинация валентной дырки с одновременным уничтожением возбуждения в электронной системе и рождение фотона с импульсом $-\mathbf{p}$.

Таким образом, резонансное отражение света в дробном состоянии $1/3$ является аналогом рамановского процесса с рождением и уничтожением нейтральных возбуждений в промежуточных состояниях рассеяния. Сравнивая результаты эксперимента с точным решением уравнения Шредингера для нескольких частиц в состоянии $1/3$, можно прийти к выводу, что наблюдаемые в эксперименте линии резонансного отражения света связаны с рождением магнитогравитона со спином 1 и нижайшего по энергии возбуждения со спином 2. Возможность рождения и уничтожения таких возбуждений в процессе резонансного отражения света необходимо доказывать теоретически, учитывая сложные промежуточные дырочные состояния на уровнях Ландау тяжелых и легких дырок. Авторы надеются, что их экспериментальная работа будет стимулировать теоретические исследования в этом направлении. Необходимо также отметить важное экспериментальное наблюдение: двухчастичные (экситонные) оптические переходы оказываются сильно подавленными по сравнению с гораздо более сложными коллективными переходами, включающими в себя рождение и уничтожение промежуточных нейтральных возбуждений. Этот факт противоречит существующей теории оптических переходов в дробном состоянии $1/3$ [14], в которой предсказано, что весь спектральный вес оптических переходов должен быть сосредоточен именно в двухчастичных (экситонных) переходах при условии того, что выполняется соотношение $\hbar/l_B < 1$, где $\hbar$ – расстояние в реальном пространстве между электроном и дыркой в направлении роста гетероструктуры, а l_B – магнитная длина в состоянии $1/3$ [14]. В нашем случае $\hbar$ на порядок величины меньше магнитной длины (из решения одномерного уравнения Шредингера для электронов и дырок в направлении роста гетероструктуры с квантовой ямой величина $\hbar$ составляет порядка 1 нм). Подавление экситонных переходов, вероятно, связано с несжимаемостью основного состояния $1/3$ (невозможно вставить нейтральный дефект, состоящий из возбужденного электрона и валентной дырки в несжимаемую лафлиновскую жидкость). Необходимо сначала перевести электронную

систему в возбужденное состояние (сделать электронную систему сжимаемой) и только после этого создавать нейтральный дефект.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, проект # 18-12-00246.

1. H. Bartolomei, M. Kumar, R. Bisognin, A. Marguerite, J.-M. Berroir, E. Bocquillon, B. Plaças, A. Cavanna, Q. Dong, U. Gennser, Y. Jin, and G. Féve, *Science* **368**, 173 (2020).
2. J. Nakamura, S. Liang, G.C. Gardner, and M. J. Manfra, *Nature Phys.* **16**, 931 (2020).
3. X. G. Wen, *Mod. Phys. Lett. B* **5**, 31 (1991).
4. A. Lerda, *Anyons: quantum mechanics of particles with fractional statistics*, Springer-Verlag, Berlin (1992).
5. I. V. Kukushkin, J. H. Smet, V. W. Scarola, V. Umansky, and K. von Klitzing, *Science* **324**, 1044 (2009).
6. F. D. M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 116801 (2011).
7. L. V. Kulik, A. S. Zhuravlev, L. Musina, E. I. Belozеров, A. B. Van'kov, O. B. Volkov, A. Zagitova, I. V. Kukushkin, and V. Umansky, DOI:10.21203/rs.3.rs-495107/v1.
8. Л. В. Кулик, А. С. Журавлев, Е. И. Белозеров, В. А. Кузнецов, И. В. Кукушкин, *Письма в ЖЭТФ* **112**, 516 (2020).
9. A. S. Zhuravlev, V. A. Kuznetsov, L. V. Kulik, V. E. Bisti, V. E. Kirpichev, I. V. Kukushkin, and S. Schmult, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 196802 (2016).
10. V. A. Kuznetsov, L. V. Kulik, M. D. Velikanov, A. S. Zhuravlev, A. V. Gorbunov, S. Schmult, and I. V. Kukushkin, *Phys. Rev. B* **98**, 205303 (2018).
11. Л. В. Кулик, А. С. Журавлев, В. Е. Бисти, В. Е. Кирпичев, М. Н. Ханнанов, И. В. Кукушкин, *Письма в ЖЭТФ* **100**, 659 (2014) [*JETP Lett.* **100**, 581 (2015)].
12. И. В. Лернер, Ю. Е. Лозовик, *ЖЭТФ* **78**, 1167 (1980) [I. V. Lerner and Y. E. Lozovik, *JETP* **51**, 588 (1980)].
13. V. M. Apalkov and E. I. Rashba, *Phys. Rev. B* **46**, 1628 (1992).
14. F. D. M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2095 (1985).
15. D. Yoshioka, *Phys. Rev. B* **29**, 6833 (1984).
16. В. Е. Бисти, Л. В. Кулик, А. С. Журавлев, А. О. Шаля, И. В. Кукушкин, *Письма в ЖЭТФ* **98**, 877 (2013) [*JETP Lett.* **98**, 778 (2014)].
17. V. M. Apalkov, F. G. Pikus, and E. I. Rashba, *Phys. Rev. B* **52**, 6111 (1995).

Когерентность магнитоэкситонного конденсата в квантово-холловском диэлектрике

А. В. Горбунов¹⁾, А. В. Ларионов, Л. В. Кулик, В. Б. Тимофеев

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 16 августа 2021 г.

После переработки 3 сентября 2021 г.

Принята к публикации 3 сентября 2021 г.

Методами сдвиговой интерферометрии исследованы когерентные свойства плотного ансамбля триплетных циклотронных магнитоэкситонов в квантово-холловском диэлектрике вблизи фактора заполнения $\nu = 2$. Обнаружено, что по сравнению с газом надконденсатных магнитоэкситонов магнитоэкситонный конденсат, формирующийся при достаточно низких температурах с помощью нерезонансного фотовозбуждения, отличается повышенной степенью когерентности: поперечная длина когерентности по порядку величины достигает ~ 10 мкм. Доля конденсата может достигать 20 % от полного числа триплетных магнитоэкситонов.

DOI: 10.31857/S123456782119006X

Интерес к магнитоэкситонам в двумерной электронной системе (2DЭС), помещенной в квантующее магнитное поле, связан с обнаружением новых когерентных конденсированных состояний, не имеющих очевидных аналогов в физике трехмерных (3D) систем. Наиболее изученными с точки зрения экспериментальных и теоретических исследований являются триплетные циклотронные магнитоэкситоны (ТЦМЭ) в квантово-холловском диэлектрике (электронный фактор заполнения $\nu = 2$), образованные электронной вакансией (ферми-дыркой) на полностью заполненном нулевом электронном уровне Ландау и возбужденным электроном на пустом первом уровне Ландау. ТЦМЭ являются долгоживущими композитными бозонами со спином $S = 1$, время жизни которых достигает сотен микросекунд [1] и даже миллисекунды [2]. При температурах $T < 1$ К и концентрациях $n_{\text{ex}} \sim (1-10)\%$ от плотности квантов магнитного потока в квантово-холловском изоляторе, т.е. в фермионной системе, образуется качественно новая фаза, названная в работе [2] *магнетофермионным конденсатом*. Это состояние является экспериментальным примером конденсации композитных бозонов в пространстве обобщенных импульсов q – величин, зависящих как от пространственных координат, так и от их градиентов [3]. Макроскопическая когерентность новой фазы приводит к тому, что ее отклик на воздействие внешнего электромагнитного поля выше на порядок, чем в разреженном экситонном газе, причем конденсат

способен растекаться из области фотовозбуждения в объем квантово-холловского изолятора на макроскопические расстояния [2]. Прямые эксперименты по визуализации растекания в высококачественных GaAs/AlGaAs гетероструктурах показали, что механизм переноса – недиффузионный: транспортная длина ТЦМЭ в конденсированном состоянии, по крайней мере, на три порядка больше, чем длина диффузии магнитоэкситонов в газовой фазе [4]. При этом скорость разбегания экситонов из пятна накачки составляет $\gtrsim 10^3$ см/с [5].

Важнейшим свойством бозе-эйнштейновского конденсата является макроскопическая когерентность: все частицы конденсированной фазы описываются единой волновой функцией. Длина пространственной когерентности ξ не только превышает дебройлевскую длину волны, но в идеальном случае совпадает с размерами области, которую этот конденсат занимает. На практике длина когерентности зависит от того, насколько неидеальна исследуемая реальная система. В случае двумерных экситонных систем, таких, как пространственно-непрямые экситоны в двойных или широких одночных квантовых ямах, она может составлять от 0.5 мкм [6] до 6–7 мкм [7]. Для внутрирезонаторных экситонных поляритонов величина ξ определяется характерным размером неоднородности структуры и достигает 20–30 мкм [8]. Настоящая работа посвящена изучению интерферометрическими методами степени пространственной когерентности ТЦМЭ в магнетофермионном (магнитоэкситонном) конденсате.

¹⁾e-mail: gorbunov@issp.ac.ru

Для экспериментальных исследований использовалась высококачественная гетероструктура, содержащая одиночную, симметрично легированную, квантовую яму GaAs/AlGaAs шириной 31 нм с концентрацией электронов в 2D канале $2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ и темновой подвижностью на уровне $1.5 \cdot 10^7 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$. Симметричное легирование необходимо для того, чтобы минимизировать проникновение волновой функции электронов проводимости в барьер, а также для уменьшения вкладов в релаксацию возбужденных электронов случайного потенциала на гетерограницах квантовых ям и барьерных примесных состояний. Образец размером $\sim 3 \times 3 \text{ мм}$ устанавливался в откачиваемую вставку с жидким ^3He , оснащенную оптическим окном для ввода и вывода излучения, которая, в свою очередь, помещалась в ^4He -криостат со сверхпроводящим соленоидом. Эксперименты проводились в диапазоне температур от 0.55 до 1.5 К в магнитном поле до 6 Тл, направленном перпендикулярно плоскости квантовой ямы.

В качестве оптического источника для формирования ансамбля неравновесных циклотронных магнитоэкситонов и возбуждения сигнала фотолуминесценции (ФЛ) использовался одномодовый лазерный диод (длина волны $\simeq 780 \text{ нм}$), а для контроля резонансного отражения – перестраиваемый непрерывный полупроводниковый лазер “Toptica DL Pro” с шириной линии 1 МГц. Внутри вставки с ^3He была установлена светосильная двухлинзовая проекционная система, с помощью которой лазерное излучение фокусировалось на поверхность исследуемого образца. Для достижения точной фокусировки образец, погруженный в жидкий ^3He , можно было плавно перемещать вдоль оптической оси с помощью специально сконструированного узла механической подачи. Минимальный размер пятна накачки на образце составлял $\simeq 5 \text{ мкм}$. С помощью той же пары линз излучение резонансного отражения и ФЛ выводилось наружу в виде параллельного пучка. Увеличенное изображение образца ($\times 30$) проецировалось длиннофокусным объективом ($f = 360 \text{ мм}$) либо на входную щель решетчатого спектрометра с охлаждаемой ПЗС-камерой, либо на вход интерферометра. Для подавления сигнала отражения от поверхности образца использовалась пара скрещенных линейных поляризаторов, помещенных вне криостата: один – на входе, в луче зондирующего лазера, а другой – на выходе, в отраженном пучке. Поскольку в магнитном поле в 2DЭС поглощается и излучается циркулярно поляризованное излучение, то через второй поляризатор сигнал резонансного отражения от 2DЭС проходит,

а сигнал нерезонансного отражения и рассеяния от поверхности образца и гетерослоев подавляется.

Основным способом обнаружения ТЦМЭ является фотоиндуцированное резонансное отражение света (ФРО) [1]. Этот метод детектирует фотовозбужденные ферми-дырки, входящие в состав циклотронных магнитоэкситонов (сами триплетные магнитоэкситоны являются “темными” квазичастицами, не взаимодействующими в дипольном приближении с электромагнитным полем). При этом ФРО не позволяет определить, какой именно обобщенный импульс q имеют магнитоэкситоны, в состав которых входят эти ферми-дырки. Между тем дисперсионная зависимость ТЦМЭ имеет минимум не при $q = 0$, а вблизи обратной магнитной длины, $q_{\min} \simeq 1/l_B$ [9]. В поле 4 Тл магнитная длина $l_B = \sqrt{\hbar/eB} \simeq \simeq 10^6 \text{ см}^{-1}$, т.е. для релаксации нужно отдать довольно большой импульс. Поэтому наряду с ФРО необходимо одновременно регистрировать спектры ФЛ 2DЭС: из них оказывается возможным определить функцию распределения магнитоэкситонов по обобщенным импульсам. При появлении в системе неравновесных возбуждений в спектрах ФЛ появляются особенности, связанные с трансляционно-инвариантными трехчастичными комплексами, построенными из темного триплетного магнитоэкситона и дополнительной ферми-дырки [10, 11] (см. рис. 1). Существуют два вида таких комплексов. Ес-

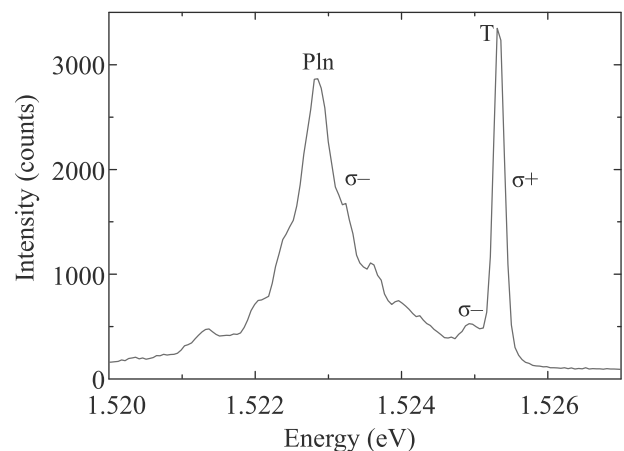


Рис. 1. (Цветной онлайн) Спектр ФЛ 2DЭС при мощностной оптической накачке $P_{\text{pump}} = 1 \text{ мкВт}$, температуре $T = 0.65\text{--}0.70 \text{ К}$ и факторе заполнения $\nu = 2.15$

ли проекции спинов обеих дырок на ось магнитного поля совпадают, то две ферми-дырки образуют спиновой триплет. Если же проекции спинов противоположны, образуется спиновой синглет. Синглетное по дыркам состояние является плазмароном (PIn),

поскольку фотовозбужденный электрон из триплетного магнитоэкситона может рекомбинировать с одной из ферми-дырок, передавая энергию и импульс новой электрон-дырочной паре (плазменное колебание). Плазмарон можно рассматривать как магнитолазмон, связанный с дополнительной ферми-дыркой. Триплетное по дыркам трехчастичное состояние является трионом (Т). Электрон, входящий в трион, не может участвовать в плазменных колебаниях. Энергия триона не несет информации об обобщенном импульсе входящего в него магнитоэкситона, что объясняется малой дисперсией магнитоэкситонов по сравнению с характерной шириной линии ФЛ триона. Фактически интенсивность линии Т учитывает полную плотность магнитоэкситонов. Спектр ФЛ плазмарона, напротив, несет информацию как о полном числе магнитоэкситонов, так и о функции распределения плазмаронов по энергиям, из которой, в свою очередь, получается функция распределения входящих в плазмарон магнитоэкситонов по обобщенным импульсам q , которые они имели к моменту формирования плазмарона. В работе [12] удалось показать, что в разреженном газе триплетных магнитоэкситонов не происходит полной термализации из-за невозможности одновременно удовлетворить условиям сохранения энергии и импульса. При оптической накачке создаются неравновесные ТЦМЭ с импульсом $q \simeq 0$, а релаксация в нижайшее энергетическое состояние становится возможной за счет экситон-экситонного рассеяния только по достижении некоторой критической экситонной плотности. Вследствие сверхдлинных времен термализации ансамбли ТЦМЭ являются существенно неравновесными, состоящими из надконденсатных магнитоэкситонов с обобщенными импульсами, близкими к нулевым, и магнитоэкситонов в энергетическом минимуме с импульсами порядка обратной магнитной длины. Доказано экспериментально [12], что быстрый перенос экситонной плотности на большие расстояния осуществляется только теми ТЦМЭ, что заполняют энергетический минимум на дисперсионной кривой вблизи обобщенных импульсов порядка обратной магнитной длины, $q_{\min} \sim 1/l_B \simeq 10^6 \text{ см}^{-1}$. Таким образом, именно появление в спектре ФЛ интенсивной плазмаронной полосы с максимумом в области $q_{\min}$ служит доказательством формирования магнитоэкситонного конденсата.

В общем случае результат интерференционного сложения двух волн с интенсивностями $I_1(\mathbf{r})$ и $I_2(\mathbf{r})$ имеет вид (см., например, [13]):

$$I_{\text{if}}(\mathbf{r}) = I_1(\mathbf{r}) + I_2(\mathbf{r}) + 2\sqrt{I_1(\mathbf{r})I_2(\mathbf{r})}g^{(1)}(\mathbf{r})\cos\Phi,$$

где $\mathbf{r}$ – пространственная координата, а $\Phi(\mathbf{r})$ – пространственное распределение разности фаз между интерферирующими волнами. Степень когерентности определяется величиной нормированного коррелятора 1-го порядка $g^{(1)}(\mathbf{r})$, изменяющегося в пределах от 0 до 1 и связанного с видностью интерференционных полос $V = (I_{\max} - I_{\min})/(I_{\max} + I_{\min})$ соотношением:

$$g^{(1)}(\mathbf{r}) = \frac{V(\mathbf{r})(I_1(\mathbf{r}) + I_2(\mathbf{r}))}{2\sqrt{I_1(\mathbf{r})I_2(\mathbf{r})}}.$$

Таким образом, при равных интенсивностях коррелятор и видность просто совпадают, но в общем случае, измеряя $I_{\text{if}}(\mathbf{r})$, $I_1(\mathbf{r})$ и $I_2(\mathbf{r})$, из эксперимента можно извлечь лишь произведение:

$$g^{(1)}(\mathbf{r})\cos\Phi(\mathbf{r}) = \frac{I_{\text{if}}(\mathbf{r}) - I_1(\mathbf{r}) - I_2(\mathbf{r})}{2\sqrt{I_1(\mathbf{r})I_2(\mathbf{r})}}$$

и $g^{(1)}(\mathbf{r})$ – это огибающая пространственного профиля интерференционных полос. Зависимость величины коррелятора 1-го порядка от координаты x в плоскости волнового фронта в общем случае можно описать функцией $\exp(-|x|/\xi)$, где ξ – поперечная длина пространственной когерентности, которая стремится к нулю для некогерентного источника и к бесконечности – для когерентного.

Используемый интерферометр – это вариант интерферометра Майкельсона с неполяризующим светоделительным кубиком и параллельными пучками, в одном из плеч которого вместо зеркала установлена 90° -призма, оборачивающая изображение. Микроскопный объектив $\times 10$ на входе в интерферометр и объектив с $f = 190 \text{ мм}$ на выходе образуют второй каскад увеличения, так что результирующее увеличение составляет $\simeq 170$. В результате, на собственной охлаждаемой ПЗС-матрице интерферометра наблюдаются два изображения образца, развернутые друг относительно друга на 180° и промодулированные слегка искривленными интерференционными полосами, параллельными ребру призмы (см. рис. 2а). Видность полос и коррелятор 1-го порядка симметрично спадают в обе стороны от линии, соответствующей нулевому сдвигу между изображениями, $\delta = 0$ (рис. 2б). Хорошо известно, что при передаче изображения проекционной оптической системой даже в случае некогерентного светового источника пространственное распределение степени когерентности не будет δ -функцией из-за дифракции на апертуре входного зрачка [13]. В нашем случае аппаратная функция связана с функцией Эйри для дифракции света на круглом отверстии и описывается выраже-

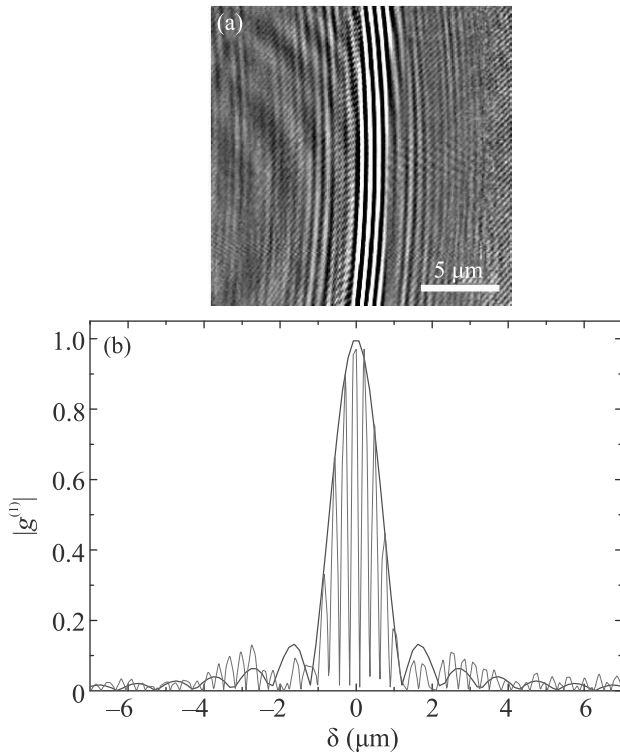


Рис. 2. (Цветной онлайн) Аппаратная функция оптической системы, измеренная в отраженном свете зондирующего лазера ($P_{\text{probe}} = 1$ мкВт) при минимальной температуре, $T = 0.55$ К, и в нулевом магнитном поле, $B = 0$. (a) – Картина интерференционных полос в плоскости выходного изображения интерферометра – $g^{(1)}(\mathbf{r}) \cos \Phi(\mathbf{r})$. (b) – Профиль интерференционных полос $|g^{(1)}(\delta) \cos \Phi(\delta)|$ (красная линия) и теоретическая кривая $|2J_1(\nu)/\nu|$, наилучшим образом описывающая центральный пик (синяя линия)

нием $g^{(1)}(\delta) = 2J_1(\nu)/\nu$, где $J_1(\nu)$ – функция Бесселя первого рода и первого порядка, $\nu = 2\pi\delta \sin \alpha/\lambda$, $\sin \alpha$ – числовая апертура оптической системы, а λ – длина волны света. Положение первого нуля функции Эйри определяет оптическое разрешение системы [13]. Апертура ближайшей к образцу короткофокусной ($f = 15$ мм) асферической линзы (Newport FSPA10) составляла $\sin \alpha \simeq 0.5$, т.е. расчетное разрешение $\simeq 1$ мкм.

Как уже было сказано, пространственное распределение коррелятора 1-го порядка можно найти путем измерения по отдельности распределений интенсивности для каждого из плеч интерферометра $I_1(\mathbf{r})$, $I_2(\mathbf{r})$, собственно интерферограммы $I_{\text{if}}(\mathbf{r})$ и построения на их основе распределения $g^{(1)}(\mathbf{r}) \cos \Phi(\mathbf{r})$. На практике для повышения точности измерений на записанной интерферограмме выбирался горизонтальный прямоугольный участок, внутри которого

полосы можно считать прямыми, проводилось суммирование интенсивности по вертикали и получался профиль интерферограммы $I_{\text{if}}(\delta)$. Аналогичным образом строились профили $I_1(\delta)$ и $I_2(\delta)$. Из этих трех кривых извлекалась знакопеременная функция $g^{(1)}(\delta) \cos \Phi(\delta)$. Точность определения интересующей нас огибающей можно повысить, если перейти к модулю $|g^{(1)}(\delta) \cos \Phi(\delta)|$. Поскольку для анализа когерентных свойств резонансно отраженного света необходимо использовать низкокогерентный (в идеале – некогерентный) источник излучения, луч зондирующего лазера фокусировался на поверхность вращающегося матового стекла в пятно, изображение которого проецировалось на поверхность образца. Размер пятна зондирования на образце составлял $\simeq 50$ мкм, при этом пятно накачки находилось в его центре. Для подавления вклада в интерферограмму от когерентного излучения лазера накачки отраженный пучок пропусклся через интерференционный светофильтр с шириной полосы 10 нм и центральной длиной волны 820 нм. На рисунке 2 приведен пример измерения аппаратной функции системы в отраженном свете зондирующего лазера при минимальной температуре, $T = 0.55$ К, и в нулевом магнитном поле, $B = 0$. Следует подчеркнуть высокую чувствительность методики измерений к точности фокусировки на поверхность образца. Только при оптимальной настройке оптики, действительно, удастся приблизиться к пространственному разрешению $\gtrsim 1$ мкм (см. рис. 2b).

При исследовании пространственной когерентности магнитоэкситонного конденсата сравнивались интерферограммы в свете резонансного отражения для оптического перехода “0–0” между состояниями нулевых уровней Ландау тяжелых дырок валентной зоны и электронов зоны проводимости, полученные без оптической накачки 2DЭС и при включенной накачке. В идеальной системе сигнал резонансного отражения от квантово-холловского изолятора при $\nu = 2.0$ не наблюдается, если фотовозбуждение 2DЭС отсутствует. Причина в том, что поглощение резонансного фотона и его последующее переизлучение (т.е. резонансное отражение) невозможно, пока на нулевом электронном уровне Ландау не появится ферми-дырка. На самом деле скрещенные поляризаторы не подавляют отражение полностью и какое-то небольшое количество света попадает в интерферометр. Включение лазерного диода накачки приводит к возникновению сигнала ФРО (в нашем случае отражение возрастало, по крайней мере, на порядок величины), что свидетельствует о появлении в 2DЭС макроскопического числа

неравновесных триплетных магнитоэкситонов. Для формирования магнитоэкситонного конденсата необходимо, чтобы ТЦМЭ начали заполнять состояния вблизи минимума дисперсионной зависимости при $q_{\min} \simeq 1/l_B$. Процесс рассеяния магнитоэкситонов в нижайшее энергетическое состояние сопровождается появлением в спектрах ФЛ линии плазмарона. Именно максимальная интенсивность плазмаронной полосы относительно линии триона служила критерием при подборе параметров эксперимента: напряженности магнитного поля B и мощности накачки P_{pump} . На рисунке 1 показан пример спектра ФЛ, полученного в таких условиях. Здесь интенсивность линии плазмарона Рln почти сравнялась с линией триона Т, а линия одночастичного перехода, наблюдаемая, как и плазмарон, в σ^- -поляризации, почти исчезла. Такая ситуация реализуется при достаточно низкой интенсивности фотовозбуждения, позволяющей не перегревать систему ($\lesssim 10 \text{ Вт/см}^2$), и при факторе заполнения, несколько большем, чем $\nu = 2.0$.

Профиль интерферограммы $|g^{(1)}(\delta) \cos \Phi(\delta)|$ в отсутствие фотовозбуждения приведен на рис. 3а, а при включенной накачке – на рис. 3б. Спектр ФЛ на рис. 1 был записан непосредственно перед регистрацией интерферограмм для рис. 3 и проконтролирован после. На обоих рисунках синим цветом показаны теоретические кривые $|2J_1(\nu)/\nu|$, наилучшим образом описывающие центральный пик при $\delta = 0$. Видно, что ширины пиков отличаются незначительно. Главное различие состоит в поведении $|g^{(1)}(\delta)|$ при больших сдвигах. На рисунке 3а величина коррелятора спадает с расстоянием приблизительно так же быстро, как и теоретическая кривая, хотя в целом интенсивность и положение боковых максимумов с теоретической зависимостью не совпадают. Следует заметить, что в этой области δ и воспроизводимость $|g^{(1)}(\delta)|$ от измерения к измерению оставляет желать лучшего: сказывается высокая чувствительность к настройке оптической схемы, а также возможная неоднородность образца (см. ниже). На рисунке 3а показан также результат свертки теоретической кривой и функции $\exp(-|\delta|/\xi)$ с параметром $\xi = 0.4 \text{ мкм}$. Можно предположить, что высокая степень когерентности излучения зондирующего лазера при рассеянии на вращающемся матовом стекле теряется не полностью. Во всяком случае, первый нуль функции $|2J_1(\nu)/\nu|$ в профиле полос явно не наблюдается и результат свертки здесь ближе к эксперименту. Зависимость $|g^{(1)}(\delta)|$, приведенную на рис. 3б, никакой сверткой экспоненты $\exp(-|\delta|/\xi)$ с теоретической кривой получить невозможно: при такой ширине центрального пика спадание коррелятора с рос-

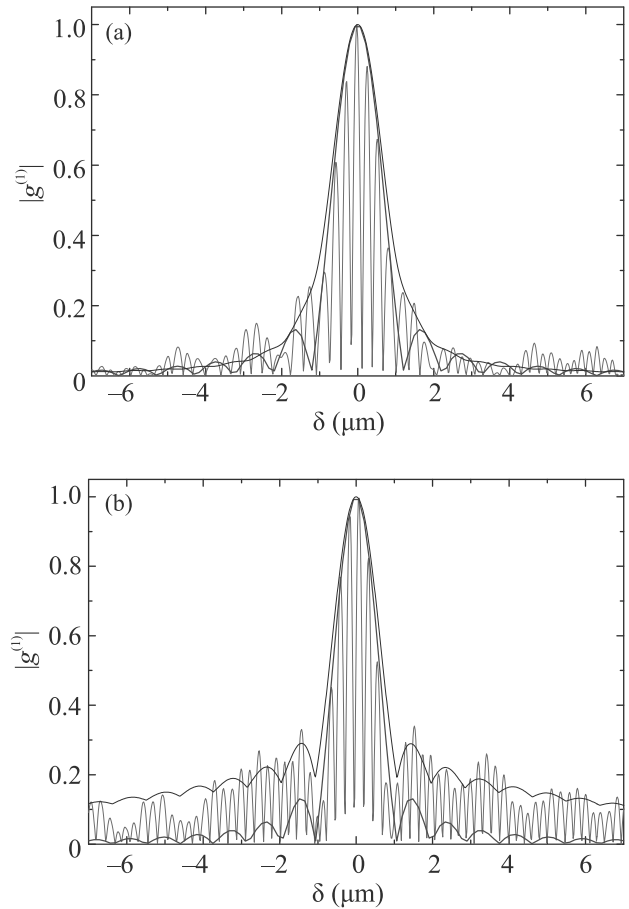


Рис. 3. (Цветной онлайн) Оценка степени когерентности магнитоэкситонного конденсата. Профиль интерференционных полос в свете резонансного отражения $|g^{(1)}(\delta) \cos \Phi(\delta)|$ (красная линия) без накачки (а), $P_{\text{pump}} = 0$, $P_{\text{probe}} = 5 \text{ мВт}$, и при включенной накачке (б) $P_{\text{pump}} = P_{\text{probe}} = 1 \text{ мВт}$. Синяя линия – теоретическая кривая $|2J_1(\nu)/\nu|$, наилучшим образом описывающая центральный пик. Черная кривая на (а) – результат ее свертки с функцией $\exp(-|\delta|/\xi)$ при $\xi = 0.4 \text{ мкм}$. Черная кривая на (б) – результат сложения с весом 0.8 и 0.2, соответственно, теоретической кривой и ее свертки с $\exp(-|\delta|/\xi)$ при $\xi = 10 \text{ мкм}$. Параметры эксперимента совпадают с рис. 1

том сдвига должно происходить гораздо быстрее. Качественно картину можно объяснить, предположив, что имеются два источника излучения: некогерентный ($\xi \lesssim 0.1 \text{ мкм}$) и частично когерентный с величиной $\xi \sim 10 \text{ мкм}$ (точнее определить здесь вряд ли возможно). На рисунке 3б показан результат суммирования с весом 0.8 и 0.2, соответственно, функции $|2J_1(\nu)/\nu|$, показанной синей кривой, и ее свертки с экспонентой $\exp(-|\delta|/\xi)$ при $\xi = 10 \text{ мкм}$. Согласие с экспериментом здесь не самое лучшее, но важно то, что эффект подрастания “крыльев” распределе-

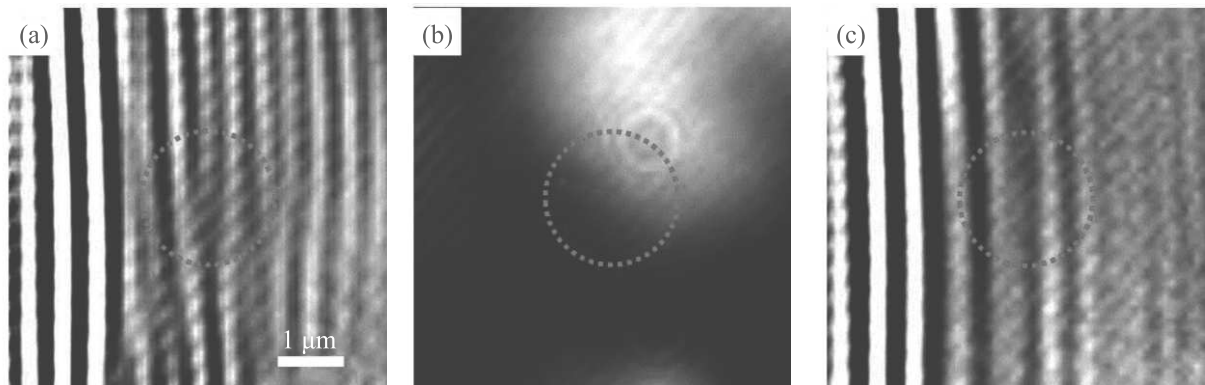


Рис. 4. (Цветной онлайн) Обнаружение вихрей в магнитоэкситонном конденсате в присутствии неоднородностей. (а) – Интерферограмма в свете ФРО $g^{(1)}(\mathbf{r}) \cos \Phi(\mathbf{r})$ для конденсата при $P_{\text{pump}} = P_{\text{probe}} = 1$ мкВт. (б) – При тех же условиях распределение интенсивности ФРО – сигнал, регистрируемый в одном из плеч интерферометра, $I_1(\mathbf{r})$. (с) – Интерферограмма резонансного отражения для того же места на образце при $P_{\text{pump}} = 0$ и $P_{\text{probe}} = 5$ мкВт. Красным пунктирным кружком обозначено положение вихря. $T = 0.65\text{--}0.70$ К. $\nu = 2.15$

ния $|g^{(1)}(\delta)|$ при включении накачки надежно воспроизводится. На рисунке 3 приведен пример, когда этот эффект максимален.

При формировании магнитоэкситонного конденсата на изображениях образца в свете ФРО наблюдаются полосы, ориентированные вдоль определенных кристаллографических направлений и похожие на ступени/террасы на интерфейсах гетероструктуры. Картина интерференционных полос вблизи границ таких неоднородностей может искажаться. Рисунок 4 иллюстрирует подобную ситуацию. Красным пунктирным кружком на рис. 4а обведена область, где одна из интерференционных полос обрывается и наблюдается картина типа “вилки”. На рисунке 4б приведено изображение того же участка, зарегистрированное при пропускании света только через одно из плеч интерферометра, т.е. распределение $I_1(\mathbf{r})$. Видно, что в центре кружка находится край более яркой области (из-за большого увеличения он сильно размыт). Наконец, рис. 4с демонстрирует, что при выключенной накачке, т.е. в отсутствие конденсата, картина интерференционных полос остается искаженной. Особенности типа показанной на рис. 4а наблюдаются как в атомных бозе-конденсатах [14], экситон-поляритонных конденсатах [15], так и в конденсатах не прямых экситонов [7]. Их появление – свидетельство фазовой сингулярности в картине интерференции: при круговом обходе вокруг “вилки” фаза меняется на 2π . Такая особенность возникает вокруг квантовых вихрей, которые являются отличительным признаком сверхтекучей фазы [8]. В однородной 2D системе элементарное возбуждение в виде пары “вихрь-антивихрь” должно двигаться со скоростью, приближающейся к скорости звука. При

измерениях без временного разрешения его не зарегистрировать, но вихрь, закрепленный на флуктуации потенциала, вызванной дефектом структуры, наблюдать удастся (см. [15]). Следует заметить, однако, что наблюдение особенности типа “вилки” само по себе еще не является доказательством сверхтекучести (см. [7, 16, 17]). Поэтому для интерпретации результатов, приведенных на рис. 4, требуется проведение дополнительных исследований.

Таким образом, с помощью методов сдвиговой оптической интерферометрии удалось обнаружить признаки высокой пространственной когерентности магнитоэкситонного конденсата в квантово-холловском диэлектрике. Показано, что картина интерференции в свете резонансного отражения сформирована двумя компонентами: некогерентным (длина поперечной когерентности $\xi \lesssim 0.1$ мкм) излучением надконденсатной фазы (магнитоэкситонного газа) и излучением конденсированной фазы, для которой величина ξ составляет ~ 10 мкм. Доля когерентной фазы может достигать 20 %. Наличие двух компонент качественно согласуется с выводами работы [12], согласно которым ансамбль триплетных циклотронных магнитоэкситонов в квантово-холловском диэлектрике всегда является неравновесным, состоящим из газа тепловых надконденсатных экситонов с импульсами $q \simeq 0$ и конденсата экситонов в энергетическом минимуме с импульсами $q_{\text{min}} \sim 1/l_B$. В интерференционной картине наблюдаются особенности, которые могут быть связаны с закрепленными на дефектах структуры квантовыми вихрями в сверхтекучей конденсатной фазе. Подобная трактовка находится в качественном согласии с результатами работы [4],

свидетельствующими о недиффузионном растекании магнитоэкситонного конденсата из пятна фотовозбуждения.

Авторы благодарны А. А. Деменеву и А. С. Журавлеву за помощь в постановке и отлаживании экспериментальной методики и В. Д. Кулаковскому – за ценные обсуждения полученных результатов.

Работа выполнена при поддержке Российского Научного Фонда, проект # 21-12-00368.

1. L. V. Kulik, A. V. Gorbunov, A. S. Zhuravlev, V. B. Timofeev, S. Dickmann, and I. V. Kukushkin, *Sci. Rep.* **4**, 10354 (2015).
2. L. V. Kulik, A. S. Zhuravlev, S. Dickmann, A. V. Gorbunov, V. B. Timofeev, I. V. Kukushkin, and S. Schmult, *Nature Comm.* **7**, 13499 (2016).
3. J. E. Avron, I. W. Herbst, and B. Simon, *Ann. Physics* **114**, 431 (1978).
4. L. V. Kulik, V. A. Kuznetsov, A. S. Zhuravlev, A. V. Gorbunov, V. V. Solovyev, V. B. Timofeev, I. V. Kukushkin, and S. Schmult, *Sci. Rep.* **8**, 10948 (2018).
5. L. V. Kulik, A. V. Gorbunov, A. S. Zhuravlev, V. A. Kuznetsov, I. V. Kukushkin, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 062403 (2019).
6. А. В. Горбунов, В. Б. Тимофеев, *ФНТ* **42**, 438 (2016).
7. A. A. High, J. R. Leonard, A. T. Hammack, M. M. Fogler, L. V. Butov, A. V. Kavokin, K. L. Campman, and A. C. Gossard, *Nature* **483**, 584 (2012).
8. H. Deng, H. Haug, and Y. Yamamoto, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1489 (2010).
9. C. Kallin and B. I. Halperin, *Phys. Rev. B* **30**, 5655 (1984).
10. A. S. Zhuravlev, V. A. Kuznetsov, L. V. Kulik, V. E. Bisti, V. E. Kirpichev, I. V. Kukushkin, and S. Schmult, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 196802 (2016).
11. V. A. Kuznetsov, L. V. Kulik, M. D. Velikanov, A. S. Zhuravlev, A. V. Gorbunov, S. Schmult, and I. V. Kukushkin, *Phys. Rev. B* **98**, 205303 (2018).
12. А. С. Журавлев, В. А. Кузнецов, А. В. Горбунов, Л. В. Кулик, В. Б. Тимофеев, И. В. Кукушкин, *Письма в ЖЭТФ* **110**, 260 (2019).
13. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, М. (1973).
14. Z. Hadzibabic, P. Krüger, M. Cheneau, B. Battelier, and J. Dalibard, *Nature* **441**, 1118 (2006).
15. K. G. Lagoudakis, M. Wouters, M. Richard, A. Baas, I. Carusotto, R. André, L. S. Dang, and B. Deveaud-Plédran, *Nature Phys.* **4**, 706 (2008).
16. P. Cilibrizzi, H. Ohadi, T. T. Ostatnicky, A. Askitopoulos, W. Langbein, and P. Lagoudakis, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 103901 (2014).
17. V. H. Nitsche, N. Y. Kim, G. Roumpos, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, and Y. Yamamoto, *Phys. Rev. A* **93**, 0536622 (2016).

Подавление магнито-межподзонных осцилляций сопротивления крупномасштабными флуктуациями межподзонного энергетического расщепления

А. А. Быков⁺¹⁾, Д. В. Номоконов⁺, А. В. Горан⁺, И. С. Стрыгин⁺, А. К. Бакаров⁺, С. Абеди^{*2)},
С. А. Виткалов^{*2)}

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

^{*}Physics Department, City College of the City University of New York, 10031 New York, USA

Поступила в редакцию 2 сентября 2021 г.

После переработки 2 сентября 2021 г.

Принята к публикации 9 сентября 2021 г.

В одиночных квантовых ямах GaAs толщиной (d_{SQW}) от 22 до 46 нм с двумя заполненными подзонами размерного квантования E_1 и E_2 изучены низкотемпературные зависимости амплитуды магнито-межподзонных (ММП) осцилляций сопротивления (ΔR_{MISO}) от магнитного поля $B < 2$ Тл. Установлено, что в исследуемых квантовых ямах в зависимостях ΔR_{MISO} от $1/B$ появляется дополнительное затухание, что объясняется влиянием крупномасштабных флуктуаций межподзонного расщепления $\Delta_{12} = E_2 - E_1$ на амплитуду осцилляций ΔR_{MISO} . Обнаружено, что подавление осцилляций ΔR_{MISO} с ростом $1/B$ более эффективно в “узких” квантовых ямах. Этот экспериментальный факт позволяет предположить, что основной причиной флуктуаций Δ_{12} в изучаемых “узких” квантовых ямах являются крупномасштабные флуктуации толщины ям d_{SQW} . Получено выражение, учитывающее роль крупномасштабных флуктуаций Δ_{12} в затухании ΔR_{MISO} . Сопоставление теории и эксперимента позволило определить среднюю величину флуктуаций межподзонного расщепления в исследуемых квантовых ямах GaAs.

DOI: 10.31857/S1234567821190071

Современная молекулярно-лучевая эпитаксия позволяет выращивать селективно-легированные квантовые ямы GaAs с низкотемпературной подвижностью двумерного (2D) электронного газа $\mu \sim 4400 \text{ м}^2/\text{Вс}$ [1–4]. Однако, несмотря на достигнутые успехи в технологии выращивания и оптимизации дизайна высокоподвижных гетероструктур, они не являются идеальными 2D электронными системами. В частности, в таких структурах присутствуют крупномасштабные флуктуации концентрации 2D электронного газа δn , которые приводят к неоднородному уширению уровней Ландау и проявляются в нелинейности графиков Дингла – зависимостей логарифма амплитуды осцилляций Шубникова–Гааза (ШдГ) от обратного магнитного поля [3]. Вид графиков Дингла определяется температурой T и механизмами уширения уровней Ландау, и они широко используются для изучения процессов рассеяния 2D электронного газа в полупроводниковых гетероструктурах [5–8].

Для случая однородного уширения уровней Ландау зависимость амплитуды осцилляций ШдГ (ΔR_{SDH}) от магнитного поля B следует из формулы Лифшица–Косевича и задается следующим соотношением [9, 10]:

$$\Delta R_{\text{SDH}} = 4R_0 X(T) \exp(-\pi/\omega_c \tau_q), \quad (1)$$

где R_0 – сопротивление в нулевом магнитном поле, $X(T) = (2\pi^2 k_B T / \hbar \omega_c) / \sinh(2\pi^2 k_B T / \hbar \omega_c)$ – фактор температурного подавления, $\omega_c = eB/m^*$ – циклотронная частота, m^* – эффективная электронная масса, а τ_q – квантовое время жизни электронов. Зависимость $\ln[\Delta R_{\text{SDH}}/R_0 X(T)]$ от $1/B$ (график Дингла) для однородного уширения уровней Ландау будет линейной, а ее наклон будет определяться величиной τ_q .

Влияние неоднородного уширения, обусловленного флуктуациями δn , на осцилляции ШдГ в 2D электронном газе, было изучено в работе [11]. Флуктуации δn приводят к тому, что периоды осцилляций ШдГ в разных областях образца будут отличаться. В результате амплитуда осцилляций ШдГ, усредненная по площади образца, будет падать с ростом $1/B$

¹⁾e-mail: bykov@isp.nsc.ru

²⁾S. Abedi, S. A. Vitkalov.

быстрее, в сравнении с однородным образцом. В этом случае в левой части формулы (1) появляется дополнительный множитель – фактор неоднородного затухания, а величина ΔR_{sdh} определяется формулой [11]:

$$\Delta R_{\text{sdh}} = 4R_0 X(T) \exp(-\pi/\omega_c \tau_q) \exp[-(\pi \delta \varepsilon_F / \hbar \omega_c)^2], \quad (2)$$

где $\delta \varepsilon_F = (\pi \hbar^2 / m^*) \delta n$ – характерная (средняя) величина флуктуации энергии Ферми, соответствующая величине δn . Видно, что график Дингла, кроме линейного по $1/B$ члена, приобретает добавку, пропорциональную $1/B^2$. Эта добавка учитывает неоднородное уширение уровней Ландау, вызванное флуктуациями концентрации δn .

В многоподзонных электронных системах в зависимостях сопротивления $R_{xx}(B)$ наряду с осцилляциями ШдГ возникают еще и магнито-межподзонные (ММП) осцилляции [12–15]. Они возникают вследствие межподзонного рассеяния электронов, которое становится резонансным в условиях, когда уровни Ландау, принадлежащие различным подзонам, смыкаются. В двухподзонной электронной системе положение максимумов ММП осцилляций в магнитном поле определяется равенством

$$E_2 - E_1 = k \hbar \omega_c, \quad (3)$$

где E_1 – положение дна первой подзоны, E_2 – положение дна второй подзоны, k – целое положительное число. ММП осцилляции, как и осцилляции ШдГ, периодичны по $1/B$, а их период задается отношением $\Delta_{12}/\hbar \omega_c$, где $\Delta_{12} = (E_2 - E_1)$ – величина межподзонного расщепления.

Амплитуда ММП осцилляций сопротивления для носителей заряда в квантовой яме с двумя заполненными энергетическими подзонами выражается равенством [16–18]:

$$\Delta R_{\text{MISO}} = R_0 A_{\text{MISO}} \exp(-2\pi/\omega_c \tau_q^{\text{MISO}}), \quad (4)$$

где $A_{\text{MISO}} = 2\tau_{tr}/\tau_{12}^*$, τ_{tr} – транспортное время рассеяния, τ_{12}^* – эффективное время межподзонного рассеяния, $\tau_q^{\text{MISO}} = 2\tau_{q1}\tau_{q2}/(\tau_{q1} + \tau_{q2})$, а τ_{q1} и τ_{q2} – квантовые времена жизни электронов в подзонах. Из формулы (4) следует, что зависимость $\ln(\Delta R_{\text{MISO}}/R_0)$ от $1/B$ является линейной, а ее наклон определяется величиной τ_q^{MISO} , т.е. формула (4) предсказывает линейное поведение графиков Дингла для ММП осцилляций.

Графики Дингла для осцилляций ШдГ в гетеропереходе GaAs/AlGaAs с двумя заполненными подзонами E_1 и E_2 исследовались в работе [14]. Было

показано, что они описываются линейными зависимостями, а величины τ_{q1} и τ_{q2} , вычисленные из их наклона, существенно отличаются. Графики Дингла для ММП осцилляций исследовались лишь в квантовых ямах GaAs с боковыми сверхрешеточными барьерами AlAs/GaAs [19–22]. Было установлено, что в таких гетероструктурах зависимости $\ln(\Delta R_{\text{MISO}}/R_0)$ от $1/B$ при $T < 10$ К являются нелинейными. Причины обнаруженной нелинейности остаются до сих пор дискуссионными. В настоящей работе приводятся результаты экспериментального изучения зависимостей $\Delta R_{\text{MISO}}(1/B)$ в квантовых ямах GaAs с величиной Δ_{12} , изменяющейся от 22.7 до 1.44 мэВ. Полученные данные анализируются в рамках модели, учитывающей роль крупномасштабных флуктуаций Δ_{12} в подавлении ММП осцилляций.

В настоящей работе изучались симметрично легированные GaAs квантовые ямы шириной 22, 26, 30, 36 и 46 нм. В качестве боковых барьеров к квантовым ямам использовались короткопериодные сверхрешетки AlAs/GaAs [23, 24]. Гетероструктуры выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на (100) GaAs подложках. Образцы для магнетотранспортных измерений представляли собой мостики Холла длиной $L = 450$ мкм и шириной $W = 50$ мкм, снабженные полевыми затворами Шоттки. Исследования проводились при температуре $T = 4.2$ К в магнитных полях $B < 2$ Тл. Сопротивления R_{xx} и R_{xy} измерялись в линейном режиме на переменном электрическом токе, частота которого составляла 888 Гц, а его амплитуда не превышала 1 мкА. Общая концентрация электронов в квантовых ямах n_T вычислялась из сопротивления R_{xy} в магнитном поле $B = 0.5$ Тл. Подвижность μ вычислялась из n_T и величин R_0 . Параметры исследуемых образцов приведены в табл. 1.

На рисунке 1 представлена типичная зависимость $R_{xx}(B)/R_0$ для “узкой” квантовой ямы ($d_{\text{sqw}} = 22$ нм) – “однослойной” двухподзонной электронной системы. Величина Δ_{12} в этом случае определяется в основном толщиной квантовой ямы. В “узкой” квантовой яме в полях $B < 0.1$ Тл проявляется классическое положительное магнетосопротивление [20], затем следуют ММП осцилляции, которые в полях $B > 0.5$ Тл сосуществуют с осцилляциями ШдГ. Незначительная модуляция амплитуды ММП осцилляций в диапазоне от 0.1 до 0.5 Тл связана с интерференцией магнетофонных и ММП осцилляций [25, 26]. Фурье анализ таких зависимостей дает три частоты, соответствующие периодам осцилляций ШдГ в первой и второй подзонах, а также периоду ММП осцилляций.

Таблица 1. Параметры образцов: d_{SQW} – толщина квантовой ямы; n_T – общая электронная концентрация; μ – электронная подвижность; Δ_{12} – межподзонное энергетическое расщепление; $\delta\Delta_{12}$ – средняя величина флуктуаций межподзонного энергетического расщепления; δd_{SQW} – средняя величина флуктуаций толщины квантовой ямы

Номер образца	d_{SQW} (нм)	n_T (10^{15} м^{-2})	μ ($\text{м}^2/\text{В с}$)	Δ_{12} (мэВ)	$\delta\Delta_{12}$ (мэВ)	δd_{SQW} (нм)
1	22	10	121	21.7	0.103	0.055
2	26	8.1	119	15.1	0.066	0.045
3	30	6.8	233	9.95	0.058	0.053
4	36	8.4	162	4.76	0.042	0.066
5	46	8.4	158	1.45	0.036	0.51

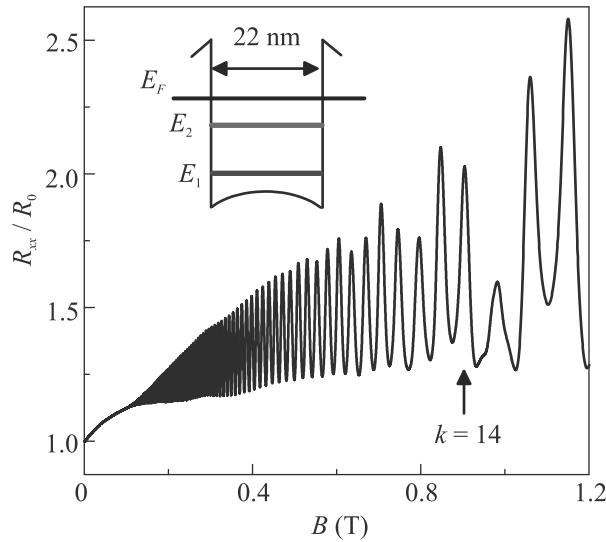


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость $R_{xx}(B)/R_0$ при $T = 4.2 \text{ К}$ для “узкой” квантовой ямы ($d_{\text{SQW}} = 22 \text{ нм}$). Стрелкой указано положение максимума для $k = 14$. На вставке приведено схематическое изображение “узкой” квантовой ямы

Концентрации электронов в подзонах в “узких” квантовых ямах сильно отличаются, поэтому квантовые времена τ_{q1} и τ_{q2} в общем случае не равны. В соответствии с формулой (4), наклон графика Дингла в этом случае будет определяться величиной $\tau_q^{\text{MISO}} = 2\tau_{q1}\tau_{q2}/(\tau_{q1} + \tau_{q2})$, а значение $\Delta R_{\text{MISO}}/R_0$ при $1/B = 0$ будет равняться A_{MISO} .

На рисунке 2 представлена типичная зависимость $R_{xx}(B)/R_0$ при $T = 4.2 \text{ К}$ для “широкой” квантовой ямы ($d_{\text{SQW}} = 46 \text{ нм}$) – “двухслойной” двухподзонной электронной системы. Величина межподзонного расщепления в этом случае определяется в основном туннельной связью между электронными слоями, разделенными плавным барьером, возникающим вследствие электростатического расталкивания электронов к гетерограницам квантовой ямы [27]. В “широких” квантовых ямах, в отличие от “узких” не проявляется классическое положительное магнетосопротивление. Это связано

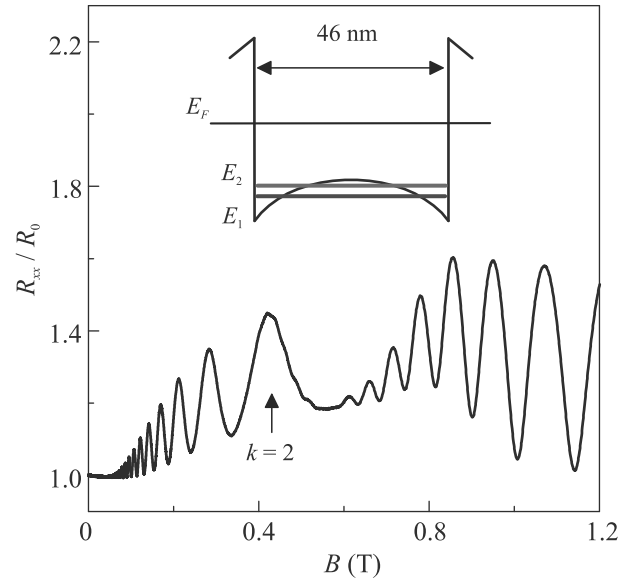


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость $R_{xx}(B)/R_0$ при $T = 4.2 \text{ К}$ для “широкой” квантовой ямы ($d_{\text{SQW}} = 46 \text{ нм}$). Стрелкой указано положение максимума для $k = 2$. На вставке приведено схематическое изображение “широкой” квантовой ямы

с тем, что концентрации и подвижности электронов в подзонах приблизительно равны. В такой системе квантовые времена в подзонах можно считать близкими, $\tau_{q1} \approx \tau_{q2}$. Наклон графика Дингла для ММП осцилляций в этом случае будет определяться величиной $\tau_q^{\text{MISO}} = \tau_q$, а значение $\Delta R_{\text{MISO}}/R_0$ при $1/B = 0$ будет равняться $A_{\text{MISO}} = 1$ [18].

Рисунок 3а демонстрирует поведение осциллирующих компонент экспериментальных зависимостей $R_{xx}(1/B)/R_0$ для “широкой” и “узкой” квантовых ям в области $1/B > 4 \text{ Тл}^{-1}$. В этой области присутствуют лишь ММП осцилляции. Видно, что ММП осцилляции с ростом $1/B$ затухают раньше в “узкой” квантовой яме. В соответствии с формулой (4) это означает, что τ_q^{MISO} в “широкой” квантовой яме должно быть больше, чем в “узкой”. Рисунок 3б показывает результаты Фурье анализа зависимостей

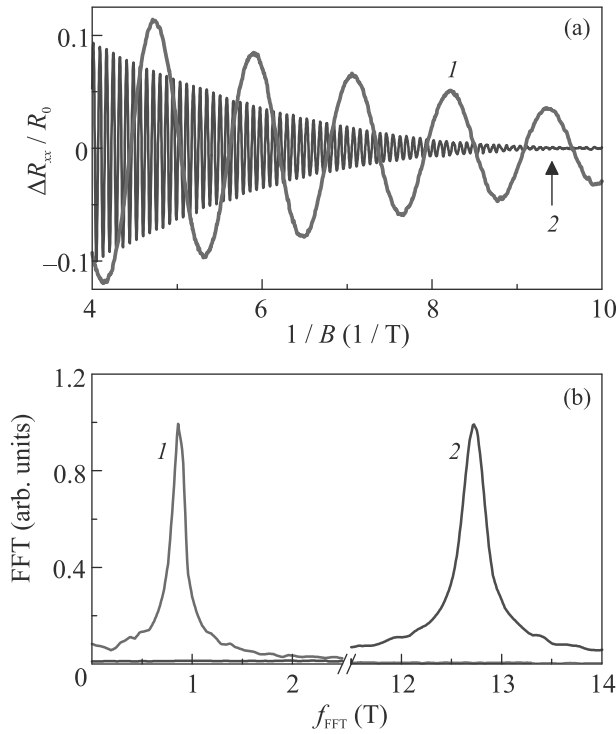


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Зависимости $\Delta R_{xx}(1/B)/R_0$ при $T = 4.2$ К для квантовых ям шириной 46 нм (кривая 1) и 22 нм (кривая 2). (b) – Фурье спектры зависимостей $\Delta R_{xx}(1/B)/R_0$ для квантовых ям шириной 46 нм (кривая 1) и 22 нм (кривая 2)

$\Delta R_{xx}(1/B)/R_0$ в области $1/B > 4 \text{ Тл}^{-1}$. В этой области наблюдается лишь пик для ММП осцилляций, частоты которых определяются величиной Δ_{12} . Видно, что ширина пика для “узкой” квантовой ямы больше, чем для “широкой”. Это согласуется с предположением, что в “узкой” квантовой яме τ_q^{MISO} меньше, чем в “широкой”. На рисунке 4 представлены зависимости $\Delta R_{\text{MISO}}(1/B)/R_0$ для “широкой” (a) и “узкой” (b) квантовых ям. Экспериментальные зависимости не являются линейными, что не согласуется с формулой (4). Это означает, что различное поведение зависимостей $\Delta R_{xx}(1/B)/R_0$ для “узкой” и “широкой” квантовых ям нельзя объяснить только различием величин τ_q^{MISO} в “узкой” и “широкой” ямах.

В соответствии с формулой (3), период ММП осцилляций определяется величиной Δ_{12} . В том случае, если в системе имеются крупномасштабные флуктуации Δ_{12} , то вследствие усреднения по площади образца они должны приводить к дополнительному подавлению амплитуды ММП осцилляций. Следуя подходу работы [11], будем считать, что крупномасштабные флуктуации Δ_{12} распределены

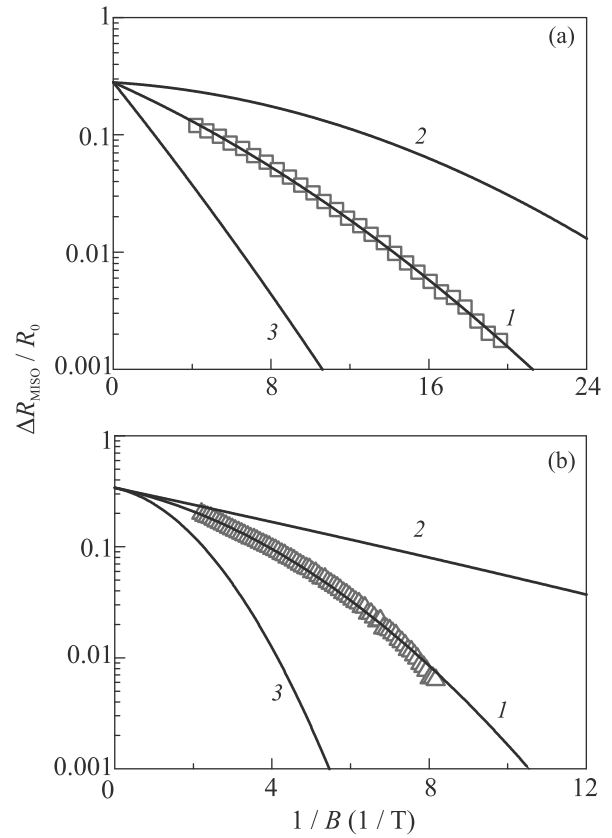


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости $\Delta R_{\text{MISO}}/R_0$ от $1/B$. (a) – Квадраты – экспериментальная зависимость при $T = 4.2$ К для квантовой ямы шириной $d_{\text{SQW}} = 46$ нм. Сплошные линии – зависимости, рассчитанные по формуле (5) для $A_{\text{MISO}} = 0.28$, $\hbar/\delta\Delta_{12} = 18.5$ пс и различных величин τ_q^{MISO} : 1 – 14 пс; 2 – 100 пс; 3 – 5 пс. (b) – Треугольники – экспериментальная зависимость при $T = 4.2$ К для квантовой ямы шириной $d_{\text{SQW}} = 22$ нм. Сплошные линии – зависимости, рассчитанные по формуле (5) для $A_{\text{MISO}} = 0.34$, $\tau_q^{\text{MISO}} = 14$ пс и различных величин $\hbar/\delta\Delta_{12}$: 1 – 6.4 пс; 2 – 40 пс; 3 – 3 пс

по закону Гаусса. В этом случае в левой части формулы (4) появляется еще один множитель – фактор неоднородного затухания, а амплитуда ММП осцилляций выражается формулой:

$$\Delta R_{\text{MISO}} = R_0 A_{\text{MISO}} \exp(-2\pi/\omega_c \tau_q^{\text{MISO}}) \times \exp[-(\pi\delta\Delta_{12}/\hbar\omega_c)^2], \quad (5)$$

где $\delta\Delta_{12}$ – средняя величина флуктуации Δ_{12} . Формула (5) показывает, что графики Дингла для ММП осцилляций с учетом неоднородного уширения будут нелинейными.

Рисунок 4а показывает, что теоретическая зависимость $\Delta R_{\text{MISO}}(1/B)/R_0$, обозначенная цифрой 1 и рассчитанная по формуле (5), хорошо согласуется с

экспериментальными данными для “широкой” квантовой ямы ($d_{\text{SQW}} = 46$ нм). Теоретические зависимости, обозначенные на этом рисунке цифрами 2 и 3, демонстрируют роль величины τ_q^{MISO} в подавлении амплитуды ММП осцилляций. В том случае, если τ_q^{MISO} , учитывающее однородное (столкновительное) уширение уровней Ландау, существенно превышает величину $\hbar/\delta\Delta_{12}$, то подавление ΔR_{MISO} с ростом $1/B$ в значительной степени определяется крупномасштабными флуктуациями Δ_{12} . В ситуации, когда $\tau_q^{\text{MISO}} \ll \hbar/\delta\Delta_{12}$, ролью крупномасштабных флуктуаций $\delta\Delta_{12}$ в подавлении амплитуды ММП осцилляций можно пренебречь.

Рисунок 4b показывает, что для “узкой” квантовой ямы ($d_{\text{SQW}} = 22$ нм) экспериментальные данные согласуются с теоретической зависимостью (кривая 1) не во всем исследуемом диапазоне обратных магнитных полей. В диапазоне $1/B > 7 \text{ Тл}^{-1}$ наблюдается незначительное отклонение экспериментальных значений ΔR_{MISO} от рассчитанных по формуле (5). У нас к настоящему времени нет объяснения этому экспериментальному факту. Теоретические зависимости, обозначенные на этом рисунке цифрами 2 и 3, демонстрируют влияние величины крупномасштабных флуктуаций $\delta\Delta_{12}$ на поведение графиков Дингла для ММП осцилляций при фиксированном значении τ_q^{MISO} .

Рисунок 5а демонстрирует влияние затворного напряжения V_g на поведение зависимостей $R_{xx}(B)/R_0$. Подача отрицательного V_g приводит к возрастанию классического положительного магнетосопротивления, подавлению амплитуды и увеличению частоты ММП осцилляций. Такое влияние V_g на поведение $R_{xx}(B)/R_0$ вполне ожидаемо. Отрицательное V_g в первую очередь выдавливает Х-электроны, локализованные в слоях AlAs, прилегающих к Si- δ -легированному слою, расположенному между затвором Шоттки и квантовой ямой [8]. Уменьшение концентрации компактных диполей, образованных положительно заряженными донорами в Si- δ -легированном слое и Х-электронами в слоях AlAs, увеличивает рассеяние электронов на случайном потенциале легирующей примеси, что и приводит к подавлению ММП осцилляций. Увеличение частоты ММП осцилляций под действием V_g указывает на возрастание Δ_{12} , обусловленное “перекосом” ямы. Кроме того, отрицательное V_g приводит к увеличению разности подвижностей в подзонах, что и является причиной возрастания классического положительного магнетосопротивления.

Рисунок 5b показывает влияние V_g на зависимости $\Delta R_{\text{MISO}}/R_0$ от $1/B$. Экспериментальные гра-

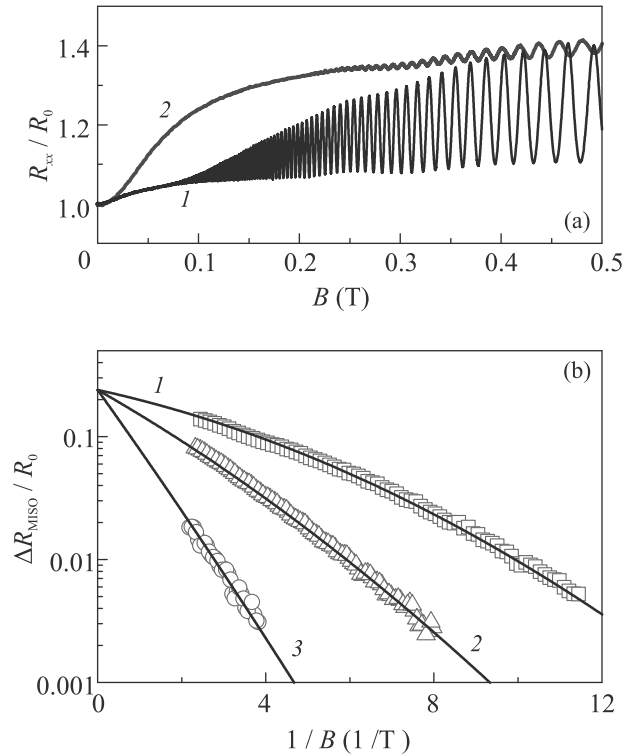


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Экспериментальные зависимости $R_{xx}(B)/R_0$ для квантовой ямы шириной $d_{\text{SQW}} = 26$ нм при $T = 4.2$ К и различных затворных напряжениях: 1 – $V_g = 0$; 2 – $V_g = -1.2$ В. (б) – Квадраты ($V_g = 0$), треугольники ($V_g = -0.94$ В) и окружности ($V_g = -1.2$ В) – экспериментальные зависимости $\Delta R_{\text{MISO}}/R_0$ от $1/B$ для квантовой ямы шириной $d_{\text{SQW}} = 26$ нм при $T = 4.2$ К. Сплошные линии – зависимости, рассчитанные по формуле (5) для $A_{\text{MISO}} = 0.24$, $\hbar/\delta\Delta_{12} = 10$ пс и различных величин τ_q^{MISO} : 1 – 14 пс; 2 – 5.4 пс; 3 – 2.2 пс

фики Дингла для квантовой ямы шириной 26 нм для различных V_g полностью согласуются с теоретическими зависимостями $\Delta R_{\text{MISO}}/R_0$ от $1/B$, рассчитанными по формуле (5). Наблюдаемое согласие говорит о том, что V_g в исследуемой квантовой яме изменяет лишь величину τ_q^{MISO} , но не влияет на среднюю величину крупномасштабных флуктуаций межподзонного энергетического расщепления ($\delta\Delta_{12}$). Величины $\delta\Delta_{12}$, полученные из сопоставления экспериментальных и расчетных зависимостей $\Delta R_{\text{MISO}}(1/B)/R_0$, приведены в табл. 1. Эти данные показывают, что величина $\delta\Delta_{12}$ растет с уменьшением d_{SQW} . Такое поведение позволяет предположить, что одной из основных причин крупномасштабных флуктуаций Δ_{12} являются крупномасштабные флуктуации d_{SQW} .

Логично считать, что средняя величина флуктуаций толщины (δd_{SQW}) исследуемых квантовых

ям GaAs, имеющих одинаковый дизайн боковых барьеров и выращенных в одинаковых технологических режимах, будет одной и той же для различных d_{SQW} . В таком случае при уменьшении d_{SQW} отношение $\delta d_{\text{SQW}}/d_{\text{SQW}}$ будет увеличиваться. Таким образом, крупномасштабные флуктуации d_{SQW} , имеющие одинаковую среднюю величину, будут приводить к более высоким значениям $\delta\Delta_{12}$ в ямах, имеющих меньшую толщину. Такую зависимость $\delta\Delta_{12}$ от d_{SQW} мы и наблюдаем. Отсутствие влияния V_g на величину $\delta\Delta_{12}$, несмотря на увеличение Δ_{12} с ростом $|V_g|$, согласуется с тем, что крупномасштабные флуктуации d_{SQW} в “узких” квантовых ямах являются доминирующей причиной неоднородного уширения уровней Ландау. Отметим, что крупномасштабные флуктуации различных параметров полупроводниковых слоев в селективно-легированных гетероструктурах, в том числе и d_{SQW} , приводят к коррелированному изменению энергетических положений E_1 и E_2 в квантовой яме. Это означает, что $\delta\Delta_{12} = |\delta E_2 - \delta E_1|$ в принципе может иметь нулевое значение.

Такая ситуация возможна в “широких” квантовых ямах, так как Δ_{12} в них в основном определяется туннельной связью между электронными слоями, а не величиной d_{SQW} . В этом случае флуктуации d_{SQW} не должны приводить к значительным флуктуациям $\delta\Delta_{12}$. Однако эксперимент показывает, что крупномасштабные флуктуации Δ_{12} присутствуют и в “широкой” квантовой яме, хотя их величина значительно меньше, чем в “узкой”.

В “узких” ямах с высокими барьерами флуктуация Δ_{12} , обусловленная флуктуациями d_{SQW} , оценивается как $\delta\Delta_{12} \sim 2\Delta_{12}\delta d_{\text{SQW}}/d_{\text{SQW}}$. Из этого следует, что в “узких” квантовых ямах крупномасштабные флуктуации d_{SQW} приводят к флуктуациям Δ_{12} , что в соответствии с формулой (5) является причиной нелинейного поведения графиков Дингла для ММП осцилляций.

Величины δd_{SQW} , вычисленные из значений $\delta\Delta_{12}$, приведены в табл. 1. Из таблицы следует, что $\delta d_{\text{SQW}} = 0.51$ нм для “широкой” квантовой ямы не согласуется с величинами δd_{SQW} для более узких ям. Это означает, что в “узких” и “широких” квантовых ямах физические причины крупномасштабных флуктуаций Δ_{12} различны. С нашей точки зрения, так и должно быть, ибо само расщепление Δ_{12} в этих ямах обусловлено различными физическими механизмами.

Одной из причин крупномасштабных флуктуаций Δ_{12} в исследуемой “широкой” квантовой яме могут быть крупномасштабные “озера” Х-электронов,

которые могут возникать в слоях AlAs, прилегающих к Si- δ -легированным слоям. Так как пространственное расположение этих “озер” в левом и правом барьерах к квантовой яме GaAs является случайным, то величина $\delta\Delta_{12} = |\delta E_2 - \delta E_1|$ в этом случае будет ненулевой, несмотря на симметричное расположение δ -легирующих слоев. Случайное расположение крупных “озер” в левом и правом барьерах будет приводить к крупномасштабным флуктуациям “перекоса” “широкой” квантовой ямы и соответственно к крупномасштабным флуктуациям Δ_{12} .

Таким образом, в настоящей работе исследовано влияние неоднородного уширения уровней Ландау на амплитуду магнито-межподзонных осцилляций в квантовых ямах с двумя заполненными энергетическими подзонами. Показано, что причиной нелинейности графиков Дингла для ММП осцилляций являются крупномасштабные флуктуации межподзонного расщепления. Получено аналитическое выражение для учета крупномасштабных флуктуаций межподзонного расщепления в зависимостях амплитуды ММП осцилляций от обратного магнитного поля. Сопоставление теории и эксперимента позволило определить среднюю величину флуктуаций межподзонного расщепления $\delta\Delta_{12}$ в исследуемых квантовых ямах GaAs с боковыми сверхрешеточными барьерами AlAs/GaAs.

Авторы благодарят Виталия Ткаченко и Григория Минькова за плодотворные обсуждения полученных результатов.

Работа была выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, проект # 20-02-00309, и Национального научного фонда США (Отдел материаловедения, грант # 1702594).

1. V. Umansky, M. Heiblum, Y. Levinson, J. Smet, J. Nubler, and M. Dolev, J. Cryst. Growth **311**, 1658 (2009).
2. M. J. Manfra, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. **5**, 347 (2014).
3. Q. Qian, J. Nakamura, S. Fallahi, G.C. Gardner, J.D. Watson, S. Luscher, J. A. Folk, G. A. Csathy, and M. J. Manfra, Phys. Rev. B **96**, 035309 (2017).
4. Y. J. Chung, K. A. Villegas Rosales, K. W. Baldwin, P. T. Madathil, K. W. West, M. Shayegan, and L. N. Pfeiffer, Nat. Mater. **20**, 632 (2021).
5. J. P. Harrang, R. J. Higgins, R. K. Goodall, P. R. Jay, M. Laviron, and P. Delescluse, Phys. Rev. B **32**, 8126 (1985).
6. P. T. Coleridge, Phys. Rev. B **44**, 3793 (1991).

7. S. D. Bystrov, A. M. Kreshchuk, S. V. Novikov, T. A. Polyanskaya, and I. G. Savel'ev, *Fiz. Tekh. Poluprov.* **27**, 645 (1993) [*Semiconductors* **27**, 358 (1993)].
8. A. A. Bykov, I. S. Strygin, A. V. Goran, D. V. Nomokonov, and A. K. Bakarov, *JETP Lett.* **112**, 437 (2020).
9. I. M. Lifshits and A. M. Kosevich, *ZhETF* **29**, 730 (1955) [*Sov. Phys. JETP* **2**, 636 (1956)].
10. P. T. Coleridge, R. Stoner, and R. Fletcher, *Phys. Rev. B* **39**, 1120 (1989).
11. S. D. Bystrov, A. M. Kreshchuk, L. Taun, S. V. Novikov, T. A. Polyanskaya, I. G. Savel'ev, and A. Ya. Shik, *Fiz. Tekh. Poluprov.* **28**, 91 (1994) [*Semiconductors* **28**, 55 (1994)].
12. L. I. Magarill and A. A. Romanov, *Fiz. Tverd. Tela* **13**, 993 (1971) [*Sov. Phys.-Solid State* **13**, 828 (1971)].
13. V. M. Polyanskii, *Fiz. Tekh. Poluprov.* **22**, 2230 (1988) [*Sov. Phys.-Semiconductors* **22**, 1408 (1988)].
14. P. T. Coleridge, *Semicond. Sci. Technol.* **5**, 961 (1990).
15. D. R. Leadley, R. Fletcher, R. J. Nicholas, F. Tao, C. T. Foxon, and J. J. Harris, *Phys. Rev. B* **46**, 12439 (1992).
16. M. E. Raikh and T. V. Shahbazyan, *Phys. Rev. B* **49**, 5531 (1994).
17. N. S. Averkiev, L. E. Golub, S. A. Tarasenko, and M. Willander, *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, 2517 (2001).
18. O. E. Raichev, *Phys. Rev. B* **78**, 125304 (2008).
19. A. V. Goran, A. A. Bykov, A. I. Toropov, and S. A. Vitkalov, *Phys. Rev. B* **80**, 193305 (2009).
20. W. Mayer, S. Vitkalov, and A. A. Bykov, *Phys. Rev. B* **96**, 045436 (2017).
21. A. A. Bykov, A. V. Goran, and A. K. Bakarov, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 28LT01 (2018).
22. S. Abedi, S. Vitkalov, A. A. Bykov, and A. K. Bakarov, *Phys. Rev. B* **104**, 075416 (2021).
23. K.-J. Friedland, R. Hey, H. Kostial, R. Klann, and K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4616 (1996).
24. D. V. Dmitriev, I. S. Strygin, A. A. Bykov, S. Dietrich, and S. A. Vitkalov, *JETP Lett.* **95**, 420 (2012).
25. A. A. Bykov, A. V. Goran, and S. A. Vitkalov, *Phys. Rev. B* **81**, 155322 (2010).
26. O. E. Raichev, *Phys. Rev. B* **81**, 195301 (2010).
27. Y. W. Suen, L. W. Engel, M. B. Santos, M. Shayegan, and D. C. Tsui, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1379 (1992).

Относительно высокой чувствительности заселенности колебательных уровней в лазерно-охлаждаемых молекулах к интенсивности излучения

Т. А. Исаев¹⁾

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

Поступила в редакцию 22 августа 2021 г.

После переработки 6 сентября 2021 г.

Принята к публикации 9 сентября 2021 г.

Особенности электронной структуры лазерно-охлаждаемых молекул могут использоваться для достижения высокой чувствительности к интенсивности излучения путем измерения заселенности колебательных уровней в таких молекулах. В настоящей статье мы указываем на перспективы измерения интенсивности излучения с высокой точностью с использованием лазерно-охлаждаемых молекул.

DOI: 10.31857/S1234567821190083

Точное измерение интенсивности излучения является актуальной проблемой в современной оптической спектроскопии. Частоту (и, следовательно, временной интервал) можно измерить со сверхвысокой точностью, до 10^{-18} [1], но точные измерения интенсивности излучения по-прежнему представляют проблему. Неопределенность в измерениях интенсивности излучения/оптической мощности от различных источников сильно зависит от типа источника, диапазона частот, типа детектора и т.д. В недавнем обзоре [2] приведен список детекторов оптической мощности, доступных в Национальном институте стандартов США (NIST) с соответствующими погрешностями измерений. Наиболее точным детектором, доступным в NIST, является лазерный криогенный радиометр (LOCR) с относительной погрешностью измерения оптической мощности 0.02–0.05 %. Что касается однофотонных детекторов (которые могут быть наиболее эффективно использованы для интенсивности излучения, обсуждаемой далее), то наименьшая погрешность достигается при измерениях с однофотонным лавинным фотодиодом (SPAD) и составляет 1.53 %.

В настоящей работе мы исследуем физическую систему, имеющую некоторое свойство, сильно зависящее от интенсивности падающего излучения, а именно, изменение заселенности молекулярных колебательных уровней после перерасеяния ряда фотонов. Молекулы, пригодные для прямого лазерного охлаждения, могут перерасеивать от сотен до тысяч

фотонов [3–5], и поэтому являются естественными объектами для детектирования вариаций потока фотонов. Конкретная техническая реализация соответствующей установки является предметом отдельного исследования, в настоящей статье мы только обсуждаем некоторые особенности лазерно-охлаждаемых молекул, делающими их перспективными объектами для применения в измерениях интенсивности излучения.

Принципы лазерного охлаждения изложены в многочисленных учебниках и обзорах, например, в [6, 7], и здесь мы просто напомним самые основные принципы метода на примере доплеровского лазерного охлаждения. Рассмотрим обычный атомный случай, когда некоторый атом движется в поле лазерного излучения, частота которого немного сдвинута в “красную сторону” от частоты резонансного перехода между атомными уровнями (для простоты мы предполагаем, что атом – это двухуровневая система). Понятно, что вероятность поглощения фотона резко возрастает, когда атом движется к источнику лазерного излучения из-за эффекта Доплера. Если атом движется в другом направлении, вероятность поглощения либо уменьшается, либо остается неизменной. Если шесть “красно-отстроенных” лазерных лучей пересекаются в определенной точке, то когда атом пересекает эту область в любом направлении, он подвергается действию силы давления света, являющейся диссипативной. Обычно атом должен перерассеять более тысячи фотонов, чтобы охладиться от нескольких кельвинов (эта температура может быть достигнута с помощью традиционного

¹⁾e-mail: isaev_ta@pnpi.nrcki.ru

метода молекулярных пучков) до субкельвиновских температур (до так называемого доплеровского предела [8]), и далее может быть захвачен, например, в магнитооптическую ловушку. В случае двухуровневой системы заселенность рабочих уровней периодически меняется в течение процесса перерассеивания, но сумма заселенностей уровней остается прежней, так как в двухуровневой схеме нет дополнительных каналов утечки заселенности. В реальных системах всегда есть каналы утечки, когда система (атом или молекула) может перейти в состояние, не взаимодействующее с лазерным излучением. Такие состояния называются “темными состояниями”, и обычно требуются отдельные усилия для перевода охлаждаемых атомов/молекул обратно в “светлые состояния”, например, смешивание зеемановских подуровней в магнитном поле и т. д. Если “темные состояния” достаточно долгоживущие, то в эти состояния происходит перекачка заселенности, и эта проблема известна как проблема оптической накачки. В молекулах проблема оптической накачки имеет особенное значение из-за возможности спонтанного перехода на колебательные уровни, при этом для вероятности такого перехода в общем случае не существует никаких правил отбора (см., например, [5]).

Рассмотрим электронно-колебательный уровень для некоторой модельной двухатомной молекулы (см. рис. 1), где мы выбирали переход $0' \rightarrow 0$ в качестве охлаждающего перехода. Матричный элемент электрического дипольного перехода между колебательно-вращательными уровнями возбужденного электронного состояния и основного электронного состояния дается в рамках приближения Борна-Оппенгеймера как (см., например, гл. 6 в [9]):

$$\mu = \langle Y_{J,M} | \cos(\theta) | Y_{J',M'} \rangle \times \quad (1a)$$

$$\left[\int_{R_N} \Psi_\nu^*(R_N) \Psi_{\nu'}(R_N) dR_N \right] \times \quad (1b)$$

$$\langle \Psi_e(r_e, R_N(E)) | \sum_i \mathbf{d}_i^e | \Psi'_e(r_e, R_N(E)) \rangle dr_e, \quad (1c)$$

где $Y_{J,M}$ – вращательная ядерная волновая функция, θ – угол между вектором напряженности электрического поля и межъядерной осью, $\Psi_\nu(R_N)$ – колебательная волновая функция ядер с колебательным квантовым числом ν , $\Psi_e(r_e, R_N(E))$ – электронная волновая функция при равновесном межъядерном расстоянии $R_N(E)$, $\mathbf{d}_i^e$ – оператор электрического дипольного момента для i -го электрона. В выражении (1) мы сделали дополнительное приближение, а именно, пренебрегли зависимостью матричного элемента электрического дипольного момента

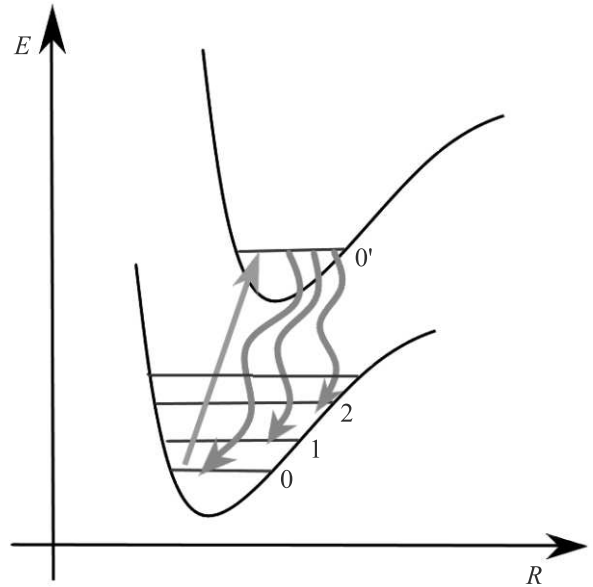


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема колебательных уровней для некоторой модельной двухатомной молекулы. Межъядерное расстояние (R) и энергия (E) даны в произвольных единицах. Цифры (0, 1, 2 ...) нумеруют колебательные уровни, штрих означает, что колебательный уровень принадлежит возбужденному электронному состоянию

(1c) от R_N . Самая существенная разница, которая отличает выражение (1) от аналогичного для атомов – отсутствие правил отбора для вибронных переходов между уровнями с разными ν из-за интеграла (1b), который является хорошо известным интегралом Франка–Кондона (квадрат которого дает фактор Франка–Кондона). Соответственно, матрица, составленная из ФК-факторов с индексами ν, ν' , называется ФК-матрицей. Возвращаясь к экспериментальной схеме, представленной на рис. 1, совершенно очевидно, что после нескольких циклов возбуждения и последующего спонтанного излучения произойдет оптическая накачка возбужденных колебательных уровней 1, 2, ... и выпадение молекулы из цикла оптической циркуляции. Особенности электронной структуры лазерно-охлаждаемых молекул приводят к подобию (“параллельности”) кривых потенциальной энергии основного и возбужденного электронных состояний и, следовательно, к (квази)диагональности ФК-матрицы [5, 10, 11].

Можно оценить, насколько замкнутым должен быть цикл охлаждения, чтобы сохранить заметную заселенность основного колебательного состояния после перерассеяния нескольких тысяч фотонов. Рассматривая каждый акт поглощения/испускания

фотона как независимое событие, можно увидеть, что после перерасеяния N фотонов вероятность того, что молекула останется, например, в колебательном состоянии 0 ($FC_{0'0}$) N , где $FC_{0'0}$ – вероятность спонтанного перехода из колебательного состояния $0'$ в колебательное состояние 0 . На практике цикл охлаждения включает в себя не только пару колебательных уровней, но для простоты мы далее предположим, что 0 может относиться также к множеству состояний, включенных в цикл охлаждения. Теперь легко вычислить, как изменяется заселенность состояния (состояний) 0 после перерасеяния N фотонов в зависимости от $FC_{0'0}$, см. табл. 1.

Таблица 1. Вероятность молекулы остаться в колебательном состоянии 0 ($FC_{0'0}$) после перерасеяния N фотонов в переходе $0 \rightarrow 0'$

$FC_{0'0} \backslash N$	1 000	10 000	100 000
0.90000	0.0000000	0.0000000	0.0000000
0.99000	0.0000431	0.0000000	0.0000000
0.99900	0.3676950	0.0000451	0.0000000

Из данной таблицы можно видеть что при, например, $FC_{0'0} = 0.999$, когда число перерасеянных фотонов изменяется на порядок (с 1000 до 10000), заселенность состояния 0 изменяется на почти четыре порядка величины.

Теперь мы можем рассмотреть принципиальную экспериментальную схему для измерения вариации потока фотонов, см. рис. 2. Предположим, у нас есть молекулярный пучок (не обязательно нейтральных молекул, можно рассматривать также молекулярные ионы), последовательно проходящий три области, которые мы обозначили как Preparation, Probing и Detection. На первом этапе (Preparation) молекулы приготавливаются в некотором (обычно основном) колебательном состоянии. Ансамбль колебательно-холодных молекул. можно получить, например, методом лазерного молекулярного охлаждения, подобному использованному для Cs_2 в [12], или методами охлаждения в газовой ячейке и т.д. На следующем этапе (Probing) молекулы взаимодействуют с измеряемым потоком фотонов (предположим, что за время взаимодействия перерасеиваются N фотонов), причем частота фотонов соответствует переходу $0 \rightarrow 0'$. В результате прохождения области Probing происходит перераспределение заселенностей молекул в пучке по колебательным уровням $0, 1, 2, \dots$ И в третьей области (Detection) выполняется анализ распределения заселенностей по колебательным уровням. Нас интересует величина относительного изменения ко-

личества молекул в данном колебательном состоянии $\delta A(N)/A(N)$ в зависимости от относительного изменения потока фотонов $\delta N/N$.

Рассмотрим изменение заселенности колебательного уровня 0 после перерасеивания N фотонов на переходе $0 \rightarrow 0'$. Если начальное число молекул в состоянии 0 составляет A_i , после перерасеяния N фотонов мы имеем:

$$A(N) = A_i(FC_{0'0})^N \quad (2)$$

молекул в состоянии 0 . Мы хотим представить $\delta A(N)/A(N)$ как функцию $\delta N/N$. Поскольку

$$\delta A(N) = A_i \ln(FC_{0'0})(FC_{0'0})^N \delta N, \quad (3)$$

после простых преобразований мы имеем:

$$\frac{\delta A(N)}{A(N)} = N \ln(FC_{0'0}) \frac{\delta N}{N} = \kappa \frac{\delta N}{N}, \quad (4)$$

где мы ввели фактор усиления $\kappa = N \ln(FC_{0'0})$. Таким образом максимальная чувствительность заселенности колебательного уровня к изменению интенсивности излучения достигается при $N \rightarrow \infty$ и $FC_{0'0} \rightarrow 0$. Разумеется, данные требования являются противоречивыми, поскольку $A(N) \rightarrow 0$, когда $N \rightarrow \infty$, поскольку $FC_{0'0} < 1$. Мы можем оценить значение $FC_{0'0}$, при, например, $N \sim 1000$. Записав выражение (2) в следующем виде:

$$\ln(FC_{0'0}) = \frac{1}{N} \ln \frac{A(N)}{A_i}, \quad (5)$$

мы получим, что даже если предположить $\frac{A(N)}{A_i} \sim 10^{-5}$, то $\ln(FC_{0'0}) \sim -0.01$, а значит, $FC_{0'0}$ должно быть ~ 0.989 (при этом $\kappa = -11.5$). Как уже упоминалось, такая степень закрытости цикла оптического охлаждения может быть достигнута только в лазерно-охлаждаемых молекулах.

Теперь мы можем оценить точность измерения интенсивности излучения по предложенной выше схеме. В предлагаемой схеме точность измерения вариации потока фотонов напрямую связана с точностью определения распределения заселенности по колебательным уровням, которая в свою очередь, как мы предполагаем, должна быть близка к точности определения соответствующих ФК-факторов. Типичная погрешность измерения ФК-фактора в лазерно-охлаждаемых молекулах составляет около 1 % (см., например, [13] для измерений на молекуле монофторида радия), и для измерения с погрешностью $\delta A(N)/A(N) \sim 1\%$ и $\kappa \sim 10$ (см. оценки выше) из уравнения (4) получаем чувствительность

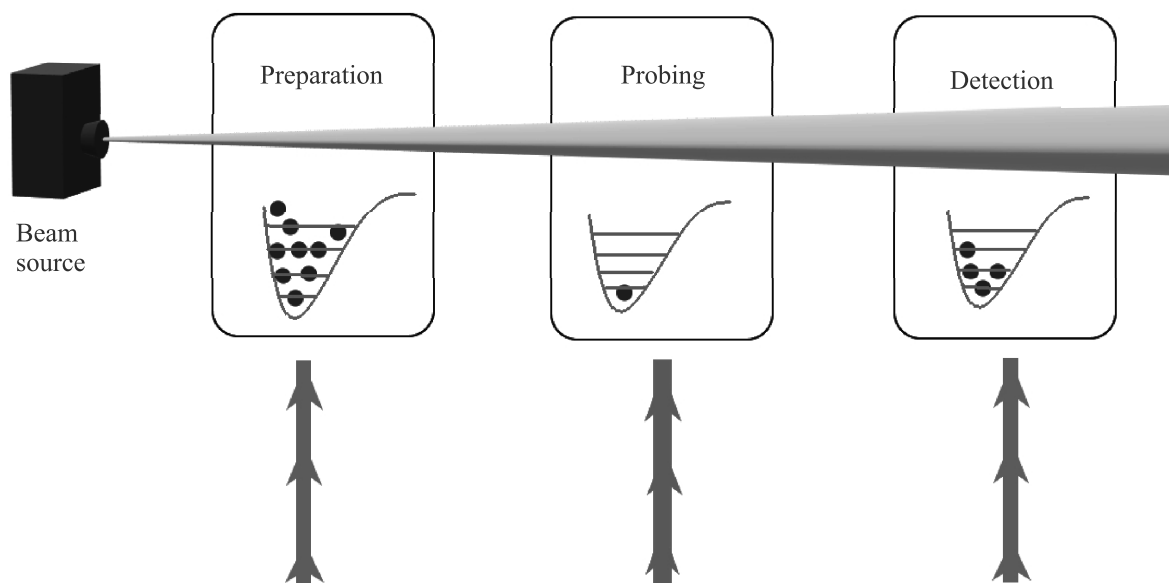


Рис. 2. (Цветной онлайн) Принципиальная схема эксперимента по измерению интенсивности потока фотонов на лазерно-охлаждаемых молекулах/молекулярных ионах

к потоку фотонов $\delta N/N \sim 0.1\%$. Для высокоточных измерений ФК-факторов, как в [14, 15], погрешности могут составлять всего 0.1% , и, таким образом, чувствительность $\delta N/N$ в принципе может достигать $\sim 0.01\%$. Как уже отмечалось, для потоков фотонов порядка $N \sim 10^3 - 10^6$ фотонов/с существуют развитые экспериментальные методы на основе однофотонных счетчиков для измерения оптической мощности, наподобие счетчиков на основе SPAD с погрешностью измерения потока фотонов 1.53% . В предложенной схеме погрешность измерения потока фотонов в принципе может быть сопоставима с погрешностями наиболее точных измерителей интенсивности излучения, таких как LOCR, и почти на порядок ниже, чем для основанных на SPAD однофотонных счетчиков.

Автор глубоко благодарен профессору Марбургского Университета Роберту Бергеру за плодотворные обсуждения особенностей электронной структуры лазерно-охлаждаемых молекул, а также профессору Д. Дойлю, И. Козыреву и участникам семинара в ИСАН за их интерес к данной работе.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта RSF-DFG # 21-42-04411.

1. H. Leopardi, K. Beloy, T. Bothwell et al. (Collaboration), *Metrologia*,

https://tsapps.nist.gov/publication/get_pdf.cfm?pub_id=931072 (2021).

2. P. A. Williams, M. T. Spidell, J. A. Hadler, Th. Gerrits, A. Koepke, D. Livigni, M. S. Stephens, N. A. Tomlin, G. A. Shaw, J. D. Splett, I. Vayshenker, M. G. White, Ch. Yung, and J. H. Lehman, <https://arxiv.org/abs/1908.06139> (2019).
3. T. A. Isaev and R. Berger, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 063006 (2016).
4. T. A. Isaev and R. Berger, *Chimia Int. J. for Chemistry* **72**, 375 (2018).
5. T. A. Isaev, *Phys.-Uspekhi* **190**, 313 (2020).
6. H. Metcalf and P. van der Straten, *Laser cooling and trapping*, Springer-Verlag, N.Y. (1999).
7. В. Г. Миногин, В. С. Летохов, *Давление лазерного излучения на атомы*, Современные проблемы физики, Наука, М. (1986).
8. V. Letokhov, V. Minogin, and B. Pavlik, *JETP* **45**, 698, (1977).
9. J. M. Brown and A. Carrington, *Rotational Spectroscopy of Diatomic Molecules*, Cambridge University Press, Boston (2003).
10. T. A. Isaev, S. Hoekstra, and R. Berger, *Phys. Rev. A* **82**, 052521 (2010).
11. T. A. Isaev and R. Berger, *ArXiv e-prints physics.chem-ph:1302.5682* (2013), 1302.5682.
12. D. Sofikitis, A. Fioretti, S. Weber, R. Horchani, M. Pichler, X. Li, M. Allegrini, B. Chatel, D. Comparat, and P. Pillet, *New J. Phys.* **11**, 055037 (2009).

13. R.F. Garcia Ruiz, R. Berger, J. Billowes et al. (Collaboration), *Nature* **581**, 396 (2020); <https://doi.org/10.1038/s41586-020-2299-4>.
14. L. Baum, N.B. Vilas, Ch. Hallas, B.L. Augenbraun, Sh. Rava, D. Mitra, and J. M. Doyle, *Phys. Rev. A* **103**, 043111 (2021); <https://arxiv.org/abs/2006.01769>.
15. Ch. Zhang, B.L. Augenbraun, Z. D. Lasner, N. B. Vilas, J. M. Doyle, and L. Cheng, ArXiv e-print: 2105.10760 (2021).

Многофононная ионизация глубоких центров в аморфном нитриде бора

Ю. Н. Новиков⁺¹⁾, В. А. Гриценко^{+*}

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

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

Поступила в редакцию 12 августа 2021 г.

После переработки 6 сентября 2021 г.

Принята к публикации 7 сентября 2021 г.

В широком диапазоне электрических полей и температур экспериментально рассмотрен перенос заряда в аморфном нитриде бора (BN). Методом количественного сопоставления эксперимента и расчета по транспорту заряда в BN анализируется применимость двух моделей: эффекта Френкеля и многофононного механизма ионизации ловушек. Установлено, что эффект Френкеля качественно описывает транспорт заряда в BN. Однако, для такого описания необходимо использовать нефизично малую величину частотного фактора $4.3 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$. Показано, что транспорт заряда в BN удовлетворительно описывается теорией многофононной ионизации ловушек. Определены величины термической ($W_T = 1.0 \text{ эВ}$) и оптической ($W_{\text{OPT}} = 2.0 \text{ эВ}$) энергии ловушки в BN.

DOI: 10.31857/S1234567821190095

Аморфные пленки нитрида бора (BN) привлекают внимание исследователей благодаря своим термическим, механическим свойствам, а также химической стабильности [1]. Пленки BN выращиваются на различных подложках и имеют хорошие границы раздела с Si, SiO₂, Al₂O₃, металлами и двумерными материалами, такими как MoS₂ и графен [1]. Напряжения пробоя в аморфных тонких пленках BN значительно превышают напряжения пробоя *h*-BN (гексагональная модификация BN) [2]. Пленки BN могут использоваться в качестве фотоприемников для ультрафиолетового излучения [3] благодаря большому значению запрещенной зоны (4.5 эВ) [1] и высокому коэффициенту оптического поглощения. В работе [4] продемонстрировано, что структуры Ni/SiN/BN/*n*⁺⁺-Si, использующие аморфные слои SiN и BN, обладают мемристорным переключением и могут быть успешно применены в качестве синапсов в нейроморфных сетях. Недавно [5] было обнаружено, что пленки BN толщиной 3 нм имеют сверхнизкие значения диэлектрической проницаемости (1.78 и 1.16) на рабочих частотах 100 кГц и 1 МГц, соответственно, и могут успешно применяться для изоляции соединений в сверхбольших интегральных схемах.

Большинство диэлектрических пленок, таких как: Si₃N₄ [6], Al₂O₃ [7], HfO₂ [8], ZrO₂ [9], Ta₂O₅

[10], GeO₂ [11], low-*k* [12] и др. имеют высокую ($10^{18} - 10^{21} \text{ см}^{-3}$) концентрацию глубоких центров (ловушек). Перенос заряда в электрическом поле в диэлектриках происходит через ловушки. История изучения переноса заряда в диэлектриках началась в начале прошлого столетия. В 1916 году было обнаружено, что электрический ток, протекающий в слюде, экспоненциально возрастает с увеличением прикладываемого электрического поля (закон Пула $J \sim \exp(cF)$), где *c*-константа, а *F*-электрическое поле [13, 14]. Для объяснения экспоненциального возрастания проводимости полупроводников и диэлектриков в электрическом поле в 1938 г. было предложено простое и наглядное объяснение этого явления понижением кулоновского потенциала ловушки в электрическом поле (эффект Френкеля) [15, 16]. Эффект Френкеля применялся для описания переноса заряда в некоторых модификациях нитрида бора: *h*-NB, *c*-BN (кубическая фаза BN) [17, 18]. В работах [17, 18] наблюдалось спрямление экспериментальных характеристик в координатах Френкеля $\log(J) - F^{1/2}$. В то же время, были некоторые проблемы при интерпретации экспериментальных данных с использованием эффекта Френкеля, а именно, несоответствие высокочастотных диэлектрических проницаемостей, определяемых по наклону экспериментальных характеристик в координатах $\log(J) - F^{1/2}$, с реальными значениями. Данное несоответствие объяснялось: в работе [17] –

¹⁾ e-mail: nov@isp.nsc.ru

отличием плотности исследуемых пленок BN от идеальной, а в работе [18] – наличием мелких нейтральных ловушек и глубоких уровней доноров. В работе [19] высказано предположение о том, что проводимость перовскитных диэлектриков не описывается эффектом Френкеля. Как правило, перенос заряда в полупроводниках интерпретируется с использованием теории многофононной ионизации ловушек [20]. В последнее время теория многофононной ионизации ловушек стала применяется для описания переноса заряда в различных диэлектриках: Si_3N_4 [6], Al_2O_3 [7], HfO_2 [21] и т.д. В работах [22, 23] рассмотрены некоторые оптические явления в h -BN и проанализированы механизмы электрон-фононного взаимодействия.

Целью данной статьи является экспериментальное исследование переноса заряда в аморфных пленках BN и определение в нем механизма ионизации ловушек (количественное сравнение экспериментальных данных с эффектом Френкеля и теорией многофононной ионизации ловушек).

Для электрофизических измерений были приготовлены структуры металл–диэлектрик–полупроводник (МДП). Диэлектрические аморфные пленки (100 нм) BN были синтезированы на подложке n -Si с проводимостью около $7 \text{ Ом} \cdot \text{см}$. Пленки BN получены пиролизом боразина ($\text{B}_3\text{N}_3\text{H}_6$) при $T = 500^\circ\text{C}$. Металлические контакты (Al) площадью $5 \cdot 10^{-3} \text{ см}^2$ наносились через маску в вакууме при 10^{-5} Торр. Показатель преломления измерялся лазерным эллипсометром на длине волны 6328 Å и составил 2.0. Для определения механизма переноса заряда в BN были измерены вольт-амперные характеристики (ВАХ) при разных температурах в n -Si/BN/Al-структурах и положительном потенциале на Al.

Расчет вероятности ионизации ловушек в BN производился с использованием двух моделей: эффекта Френкеля, с учетом термически облегченного туннелирования (*thermally assisted tunneling* – TAT), и многофононного механизма ионизации. Согласно эффекту Френкеля, вероятность ионизации ловушки определяется как [15, 16]:

$$P_F = \nu \exp\left(-\frac{W_t - \beta\sqrt{F}}{kT}\right); \quad \beta = \sqrt{\frac{e^3}{\pi\epsilon_\infty\epsilon}}. \quad (1)$$

Здесь W_t – энергия ловушки, β – постоянная Френкеля, k – постоянная Больцмана, T – температура, $\epsilon_\infty = 4.0$ – высокочастотная диэлектрическая проницаемость, ϵ – диэлектрическая постоянная, e – заряд электрона, ν – частотный фактор.

Кроме термической ионизации ловушки через верх кулоновского барьера, рассмотренного в оригинальных работах Френкеля, мы рассмотрели механизм TAT [24], который, помимо прямого туннелирования, предусматривает туннелирование из возбужденного состояния с энергией W :

$$P_{\text{TAT}} = \frac{\nu}{kT} \int_0^{W_t - \beta\sqrt{F}} dW \times \exp\left(-\frac{W}{kT} - \frac{2}{\hbar} \int_{x_1}^{x_2} dx \sqrt{m^*(eV(x) - W)}\right), \quad (2)$$

$$V(x) = W_t - \frac{e}{4\pi\epsilon_\infty\epsilon x} - Fx.$$

Здесь $V(x)$ – кулоновский барьер, x – координата, m^* – туннельная эффективная масса, $\hbar$ – постоянная Планка. Классические точки поворота x_1 , x_2 рассчитывались по формуле:

$$x_{1,2} = \frac{1}{2} \frac{W_t - W}{eF} \left(1 \pm \left(\frac{eF}{\pi\epsilon_\infty\epsilon(W_t - W)^2}\right)^{1/2}\right). \quad (3)$$

Темп ионизации по механизму Френкеля с учетом TAT рассчитывался по формуле [24]:

$$P_{F, \text{TAT}} = P_F + P_{\text{TAT}}. \quad (4)$$

Для вычисления вероятности ионизации ловушек также используется модель многофононной ионизации [20]. Следуя работе [20], мы предполагаем, что ловушка представляет собой гармонический осциллятор с обобщенной координатой Q и частотой ω , встроенный в решетку BN. Ловушка может захватывать электрон и дырку. Захваченный электрон (дырка) имеют энергию, линейно зависящую от Q :

$$W = -\sqrt{2S}Q\hbar\omega + \text{const}, \quad (5)$$

где S – константа взаимодействия Хуанга–Риса; с величиной $\hbar\omega$ связывается энергия фонона. Благодаря линейной зависимости от Q , система, состоящая из “ядра” с захваченным электроном, также является гармоническим осциллятором. Во внешнем поле эта составная система может распасться на пустое “ядро” и свободный носитель (процесс ионизации). Обычно, после процесса ионизации, конечным состоянием “ядра” является возбужденное состояние. Этот избыток энергии “ядро” тратит на то, чтобы вызвать другие моды колебаний решетки. В рамках этой модели вероятность ионизации ловушки дается выражением [20]:

$$P_{MF} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \exp\left[\frac{nW_{ph}}{2kT} - S \coth \frac{W_{ph}}{2kT}\right] \times$$

$$\times I_n \left(\frac{S}{\sinh(W_{ph}/2kT)} \right) P_i(W_T + nW_{ph}), \quad (6)$$

$$P_i(W) = \frac{eF}{2\sqrt{2m^*W}} \exp \left(-\frac{4}{3} \frac{\sqrt{2m^*}}{\hbar eF} W^{3/2} \right),$$

$$S = \frac{W_{OPT} - W_T}{W_T},$$

где W_T – термическая энергия ионизации ловушки, W_{OPT} – оптическая энергия ионизации ловушки, W_{ph} – энергия фотона, I_n – функция Бесселя.

Плотность электрического тока (J) рассчитывается согласно выражению [8]:

$$J = eN^{2/3}P, \quad (7)$$

где P – вероятность ионизации (формула (4) или (6)), N – концентрация ловушек в BN.

Экспериментальные ВАХ (квадраты) в BN и их расчет с использованием эффекта Френкеля с учетом ТАТ (сплошные линии) показаны на рис. 1. Рас-

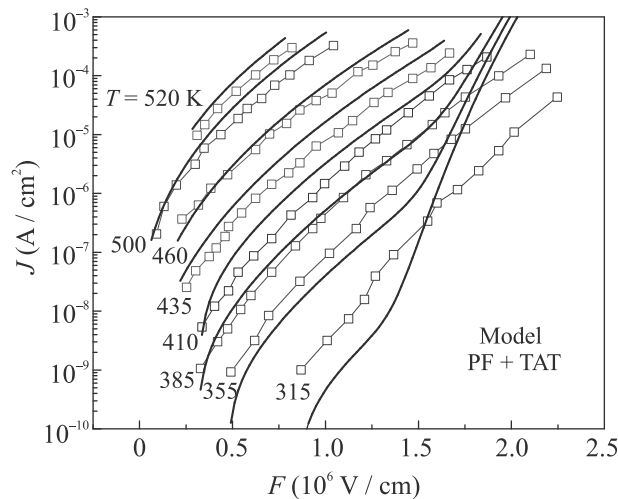


Рис. 1. (Цветной онлайн) ВАХ, измеренные в МДП-структуре с диэлектрическими аморфными пленками BN, выращенными на n -Si подложках; квадраты – эксперимент, сплошные линии – расчет (модель Френкеля с учетом ТАТ)

чет проводился при следующих параметрах ловушек: $W_t = 1.3$ эВ, $N = 9 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $\nu = 4.3 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$ и $m^* = 0.3m_0$ (m_0 – масса свободного электрона). При высоких температурах ($T = 460$ – 520 K) в области слабых полей, менее 10^6 В/см, наблюдается хорошее согласие эксперимента с расчетом (рис. 1). При более низких температурах согласие с экспериментом ухудшается. Расчет предсказывает, что для электрических полей более 10^6 В/см должны сильнее проявлять себя эффекты, связанные с тунелированием

электронов через потенциальный барьер, создаваемый ловушкой. По этой причине расчеты предсказывают большее значение электрического тока для электрических полей более 10^6 В/см, чем в эксперименте. Кроме того, значение частотного фактора, использованное в расчетах, составляло $4.3 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$, что на четыре порядка меньше, чем значение частотного фактора ($\nu = W_t/\hbar \sim 10^{15} \text{ с}^{-1}$), оцененное в оригинальной работе Френкеля [15]. Таким образом, эффект Френкеля с учетом ТАТ описывает эксперименты по переносу заряда в BN для высоких температур, но значение частотного фактора, используемое в расчетах, является нефизично малой величиной. Ранее нефизично малое значение частотного фактора было получено при описании переноса заряда в Al_2O_3 [7] и SiN_x [24].

Экспериментальные ВАХ (квадраты) в BN и их расчет с использованием многофононного механизма ионизации ловушек (сплошные линии) показаны на рис. 2. Расчет показал удовлетворительное согла-

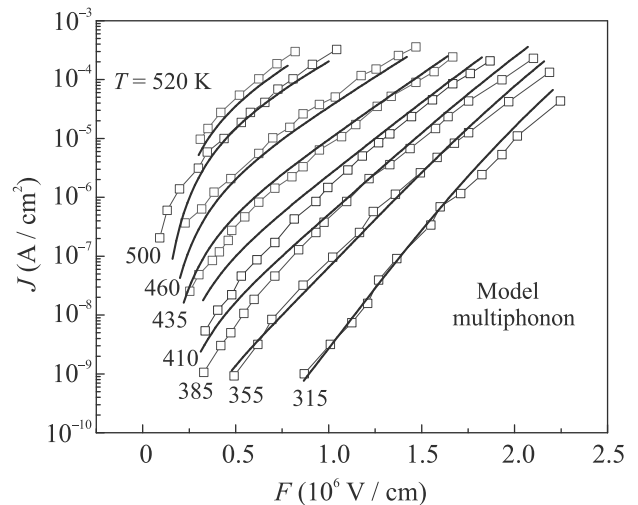


Рис. 2. (Цветной онлайн) ВАХ, измеренные в МДП-структуре с диэлектрическими аморфными пленками BN, выращенными на n -Si подложках; квадраты – эксперимент, сплошные линии – расчет (многофононный механизм ионизации ловушек)

сие с экспериментом во всем диапазоне электрических полей и температур. В расчетах использовались следующие параметры ловушек: $W_T = 1.0$ эВ, $W_{OPT} = 2.0$ эВ, $W_{ph} = 0.06$ эВ, $m^* = 0.3m_0$ и $N = 2.5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Полученное значение предэкспоненциального множителя $\sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$ хорошо согласуется по порядку величины с предэкспоненциальными множителями, полученными в других диэлектриках [7, 24].

Применение теории Карпуса [25] (упрощенное описание вероятности ионизации без функции Бесселя) не дало удовлетворительных результатов при рассмотрении эксперимента по переносу заряда в BN. Возможно, это связано с тем, что теория Карпуса применима для высоких электрических полей. Оценка электрических полей по формуле [25] $F = \omega\sqrt{2m^*W_{\text{ОПТ}}}/e$ дала величину $F \sim 2.4 \cdot 10^6$ В/см, которая больше величин электрических полей, используемых в наших экспериментах.

При положительном потенциале на Al основной вклад в проводимость BN должны вносить электроны. Электронное строение BN характеризуется преимущественно sp^2 -связями [1], как и в h -BN. В [26] сообщается о составе и структуре пленок BN, осажденных при пиролизе боразина. Эта технология близка к технологии приготовления пленок BN в настоящей работе. Было показано [26], что пленки BN состоят из слабо кристаллических h -BN и c -BN (кубическая фаза BN). В работе [27] было показано, что азотная вакансия в h -BN является ловушкой для электрона с энергией ~ 1 эВ, что совпадает с термической энергией ловушки (W_T), полученной в настоящей работе. При рассмотрении многофононной ионизации ловушек речь идет о локализованных фононах и так называемой “дыхательной” моде энергии фонона. Такая же энергия фонона, как и в настоящей работе, была обнаружена в работе [22] для поперечных акустических фононов в h -BN. Образование и взаимодействие локализованных фононов в аморфном BN с фононами другой природы требует дальнейших исследований.

В заключении следует отметить, что численное моделирование транспорта заряда показывает, что эффект Френкеля с учетом ТАТ количественно не описывает проводимость BN. Установлено, что транспорт заряда в BN непротиворечиво описывается многофононной ионизацией ловушек. Определены величины термической ($W_T = 1.0$ эВ) и оптической ($W_{\text{ОПТ}} = 2.0$) эВ энергии ловушки в BN.

Работа поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований БРИКС #0-57-12003.

1. N.R. Glavin, C. Muratore, M.L. Jespersen, J. Hu, P.T. Hagerty, A.M. Hilton, A.T. Blake, C.A. Grabowski, M.F. Durstock, M.E. McConney, D.M. Hilgert, T.S. Fisher, and A.A. Voevodin, *Adv. Funct. Mater.* **26**, 2640 (2016); <https://doi.org/10.1002/adfm.201505455>.
2. G.-H. Lee, Y.-J. Yu, C. Lee, C. Dean, K.L. Shepard, P. Kim, and J. Hone, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 243114

- (2011); <https://doi.org/10.1063/1.3662043>.
3. Y. Li, J. Guo, W. Zheng, and F. Huang, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 023504 (2020).
4. M.K. Rahmani, M.-H. Kim, F. Hussain, Y. Abbas, M. Ismail, K. Hong, C. Mahata, C. Choi, B.-G. Park, and S. Kim, *Nanomaterials* **10**, 994 (2020); <https://doi.org/10.3390/nano10050994>.
5. S. Hong, C.-S. Lee, M.-H. Lee et al. (Collaboration), *Nature* **582**, 511 (2020); <https://www.nature.com/articles/s41586-020-2375-9?proof=t>.
6. К.А. Насырова, Ю.Н. Новиков, В.А. Гриценко, С.Ю. Юн, Ч.В. Ким, *Письма в ЖЭТФ* **77**, 455 (2003).
7. Ю.Н. Новиков, В.А. Гриценко, К.А. Насыров, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 599 (2009).
8. D.R. Islamov, V.A. Gritsenko, C.H. Cheng, and A. Chin, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 222901 (2014); <https://doi.org/10.1063/1.4903169>.
9. D.R. Islamov, V.A. Gritsenko, T.V. Perevalov, V.Sh. Aliev, V.A. Nadolinny, and A. Chin, *Materialia* **15**, 100980 (2021); <https://doi.org/10.1016/j.mtla.2020.100980>.
10. V.A. Gritsenko, T.V. Perevalov, V.A. Voronkovskii, A.A. Gismatulin, V.N. Kruchinin, V.Sh. Aliev, V.A. Pustovarov, I.P. Prosvirin, and Y. Roizin, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **10**, 3769 (2018); <https://doi.org/10.1021/acsami.7b16753>.
11. A.V. Shaposhnikov, T.V. Perevalov, V.A. Gritsenko, C.H. Cheng, and A. Chin, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 243506 (2012); <https://doi.org/10.1063/1.4729589>.
12. A.A. Gismatulin, V.A. Gritsenko, D.S. Seregin, K.A. Vorotilov, and M.R. Baklanov, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 082904 (2019); <https://doi.org/10.1063/1.5113633>.
13. H.H. Poole, *Philos. Mag. J. Sci.* **32**, 112 (1916).
14. H.H. Poole, *Philos. Mag. J. Sci.* **42**, 488 (1921).
15. Я.И. Френкель, *ЖЭТФ* **8**, 1292 (1938).
16. J. Frenkel, *Phys. Rev.* **54**, 647 (1938).
17. S. Kawamoto, T. Nakakuma, K. Tei, and S. Matsumoto, *J. Appl. Phys.* **122**, 225108 (2017).
18. C. Ronning, E. Dreher, H. Feldermann, M. Gross, M. Sebastian, and H. Hofsass, *Diam. Relat. Mater.* **6**, 1129 (1997).
19. H. Schroeder, *J. Appl. Phys.* **117**, 215103 (2015).
20. S.S. Makram-Ebeid and M. Lannoo, *Phys. Rev. B* **25**, 6406 (1982).
21. Yu.N. Novikov, *J. Appl. Phys.* **113**, 024109 (2013).
22. A. Vokhmintsev, I. Weinstein, and D. Zamyatin, *J. Lumin.* **208**, 363 (2019).
23. G. Cassabo, P. Valvin, and B. Gil, *Nat. Photonics* **10**, 262 (2016).
24. A.V. Vishnyakov, Yu.N. Novikov, V.A. Gritsenko, and K.A. Nasyrov, *Solid-State Electronics* **53**, 251 (2009).
25. В. Карпус, *Письма ЖЭТФ* **44**, 334 (1986).
26. J. Kouvetakis, V.V. Patel, C.W. Miller, and D.B. Beach, *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**, 3929 (1990).
27. A. Katzir, J.T. Suss, A. Zunger, and A. Halperin, *Phys. Rev.* **11**, 2370 (1975).

Лестничные соотношения на функции Бесселя–Макдональда и $\mathfrak{osp}(1|2)$ цепочка Тоды

Е. Доценко¹⁾

Институт теоретической и экспериментальной физики, 117218 Москва, Россия

Факультет математики, Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 119048 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 августа 2021 г.

После переработки 24 августа 2021 г.

Принята к публикации 30 августа 2021 г.

В настоящей работе исследуется открытая цепочка Тоды, ассоциированная с супералгеброй $\mathfrak{osp}(1|2)$. Показывается, что лестничные соотношения на функции Бесселя–Макдональда возникают естественным образом.

DOI: 10.31857/S1234567821190101

Функция Бесселя–Макдональда $K_\alpha(e^\phi)$ возникает как решение дифференциального уравнения Бесселя

$$(\partial_\phi^2 - e^{2\phi}) K_\alpha(e^\phi) = \alpha^2 K_\alpha(e^\phi), \quad (1)$$

где параметр $\alpha \in i\mathbb{R}$, с асимптотиками

$$K_\alpha(e^\phi) \sim e^{-e^\phi}, \phi \rightarrow +\infty, \quad (2a)$$

$$K_\alpha(e^\phi) \sim e^{\alpha\phi}, \phi \rightarrow -\infty, \quad (2b)$$

и имеет следующее интегральное представление

$$K_\alpha(x) = \frac{1}{2} \left(\frac{x}{2}\right)^\alpha \int_0^\infty dy y^{-\alpha-1} e^{-y-\frac{x^2}{4y}}, \quad (3)$$

см. [1].

Уравнение (1) и его решение (3) выделено своей связью с теорией представлений группы $SL(2, \mathbb{R})$. Уравнение (1) получается как редукция оператора Лапласа на группе, а интегральное представление (3) возникает как матричный элемент, подробности приведены в [2].

Уравнение (1) может быть факторизовано при помощи лестничных соотношений

$$\left(\partial_x + \frac{\alpha}{x}\right) K_\alpha(x) = K_{\alpha-1}(x), \quad (4a)$$

$$\left(-\partial_x + \frac{\alpha}{x}\right) K_\alpha(x) = K_{\alpha+1}(x), \quad (4b)$$

следующим образом

$$\left(\partial_x + \frac{\alpha+1}{x}\right) \left(\partial_x - \frac{\alpha}{x}\right) K_\alpha(x) = K_\alpha(x), \quad (5)$$

где $x = e^\phi$.

Основной результат работы состоит в том, что рекуррентные соотношения (4a), (4b) связываются с супергруппой $OSP(1|2)$.

Кратко приведем все результаты работы.

$\mathfrak{osp}(1|2)$ гамильтониан

$$\begin{pmatrix} \frac{1}{4}\partial_\phi^2 - \frac{1}{4}\partial_\phi - e^{2\phi} & \frac{1}{2}e^\phi \\ -\frac{1}{2}e^\phi & \frac{1}{4}\partial_\phi^2 - \frac{1}{4}\partial_\phi - e^{2\phi} \end{pmatrix} \times \\ \times \begin{pmatrix} \psi_0(\lambda, \phi) \\ \psi_1(\lambda, \phi) \end{pmatrix} = \frac{2\lambda^2 + \lambda}{2} \begin{pmatrix} \psi_0(\lambda, \phi) \\ \psi_1(\lambda, \phi) \end{pmatrix}, \quad (6)$$

эта матричная система возникает как редукция оператора Казимира на подходящее пространство функций. Разрешение этой матричной системы ведет к лестничным соотношениям на функции Бесселя (4a), (4b).

Матричный гамильтониан диагонализуется

$$H_{\mathfrak{osp}(1|2)} = \begin{pmatrix} H_1 & 0 \\ 0 & H_2 \end{pmatrix} = \\ = \begin{pmatrix} \frac{1}{4}\partial_\phi^2 - e^{2\phi} - \frac{1}{2}e^\phi & 0 \\ 0 & \frac{1}{4}\partial_\phi^2 - e^{2\phi} + \frac{1}{2}e^\phi \end{pmatrix} \quad (7)$$

и совпадает с гамильтонианом BC_1 открытой цепочки Тоды. Аналогичная и более общая задача обсуждается в [3]. Также отметим, что гамильтониан (7) допускает следующее суперсимметричное представление:

$$H_{\mathfrak{osp}(1|2)} = \mathfrak{Q}^2, \quad (8)$$

¹⁾e-mail: edotsenko95@gmail.com

где

$$\Omega = \begin{pmatrix} 0 & Q_1 \\ Q_2 & 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{1}{2}(\partial_x + e^x) \\ \frac{1}{2}(\partial_x - e^x) & 0 \end{pmatrix}, \quad (9a)$$

$$x = \phi + \log(2). \quad (9b)$$

Также построены интегральные представления для волновых функций как интегралы Березина – нечетный аналог формул, полученных в [2].

Текст работы организован следующим образом: сначала производится редукция оператора Лапласа на пространство функций определенного вида, затем описывается интегральное представление волновых функций. В последней части мы рассматриваем BC_1 систему Калоджеро–Сазерленда, ее связь с $\mathfrak{sl}(2, \mathbb{R})$ алгеброй, и ее иноземцевское вырождение в контексте суперсимметричной факторизации (8).

Теоретико-групповое описание цепочки Тоды. Супералгебра $\mathfrak{osp}(1|2)$ имеет четные образующие $h, e^\pm$ и нечетные $f^\pm$. Соотношения следующие:

$$[h, e^\pm] = \pm e^\pm, \quad (10a)$$

$$[e^+, e^-] = 2h, \quad \{f^\pm, f^\pm\} = \pm \frac{1}{2}e^\pm, \quad (10b)$$

$$\{f^+, f^-\} = \frac{h}{2}, \quad (10c)$$

$$[h, f^\pm] = \pm \frac{1}{2}f^\pm, \quad (10d)$$

$$[e^\pm, f^\mp] = -f^\pm. \quad (10e)$$

Оператор Казимира

$$C = h^2 + \frac{\{e^+, e^-\}}{2} - [f^+, f^-]. \quad (11)$$

Рассмотрим множество элементов Γ на супергруппе $OSP(1|2)$ вида

$$g = e^{2\theta_1 f^+} e^{x_1 e^+} e^{\phi h} e^{x_2 e^-} e^{2\theta_2 f^-},$$

где x_i, ϕ – четные, а θ_i – нечетные координаты.

В выбранной параметризации правое действие $\mathfrak{osp}(1|2)$ векторными полями на пространстве функций на Γ имеет вид (для сокращения будем обозначать элемент алгебры и соответствующее ему векторное поле одной и той же буквой)

$$e^+ = \partial_{x_1}, \quad h = -\frac{\partial_\phi}{2} - x_1 \partial_{x_1} - \frac{1}{2} \theta_1 \partial_{\theta_1}, \quad (12a)$$

$$e^- = e^{2\phi} \partial_{x_2} - x_1^2 \partial_{x_1} - x_1 \partial_\phi - x_1 \theta_1 \partial_{\theta_1} + e^\phi \theta_1 (\partial_{\theta_2} - \theta_2 \partial_{x_2}), \quad (12b)$$

$$f^+ = \frac{1}{2}(\partial_{\theta_1} + \theta_1 \partial_{x_1}), \quad f^- = \frac{1}{2}e^\phi (\partial_{\theta_2} - \theta_2 \partial_{x_2}) - \frac{1}{2}x_1 (\partial_{\theta_1} + \theta_1 \partial_{x_1}) - \frac{1}{2} \theta_1 \partial_\phi. \quad (12c)$$

Заметим, что оператор C допускает следующее разложение:

$$C = (Q_+ - Q_-) \left(Q_+ - Q_- + \frac{1}{2} \right), \quad (13a)$$

$$Q_+ = \frac{h}{2} + 2f^+ f^-, \quad (13b)$$

$$Q_- = \frac{h}{2} + 2f^- f^+. \quad (13c)$$

В выбранной параметризации оператор Казимира имеет вид

$$C = \frac{1}{4} \partial_\phi^2 - \frac{1}{4} \partial_\phi + e^{2\phi} \partial_{x_2} \partial_{x_1} - \frac{1}{2} e^\phi (\partial_{\theta_1} - \theta_1 \partial_{x_1}) (\partial_{\theta_2} - \theta_2 \partial_{x_2}), \quad (14)$$

и его ограничение на пространство функций $F_{0,1}$ на Γ

$$F_0 = e^{x_1 - x_2} (\psi(\phi) + \theta_1 \theta_2 \psi_{\theta_1 \theta_2}(\phi)), \quad (15a)$$

$$F_1 = e^{x_1 - x_2} (\theta_1 \psi_{\theta_1}(\phi) + \theta_2 \psi_{\theta_2}(\phi)), \quad (15b)$$

имеет следующий вид

$$C|_{F_{0,1}} = \begin{pmatrix} \frac{1}{4} \partial_\phi^2 - \frac{1}{4} \partial_\phi - e^{2\phi} & \frac{1}{2} e^\phi \\ -\frac{1}{2} e^\phi & \frac{1}{4} \partial_\phi^2 - \frac{1}{4} \partial_\phi - e^{2\phi} \end{pmatrix}. \quad (16)$$

Представление (12a)–(12c) допускает редукцию на пространство функций на группе V , эквивариантных относительно борелевской подгруппы B (состоящей из элементов вида $g_B = e^{\phi h} e^{x_2 e^-} e^{2\theta_2 f^-}$), с характером $\chi(e^{\phi h} e^{x_2 e^-} e^{2\theta_2 f^-}) = e^{-2\lambda \phi}$, где $\lambda \in i\mathbb{R}$: $f_\chi(x) \chi(g_B) = f_\chi(x) \chi(g_B)$. Имеем

$$e^+ = \partial_{x_1}, \quad h = \lambda - x_1 \partial_{x_1} - \frac{1}{2} \theta_1 \partial_{\theta_1}, \quad (17a)$$

$$e^- = -x_1^2 \partial_{x_1} + 2\lambda x_1 - x_1 \theta_1 \partial_{\theta_1}, \quad (17a)$$

$$f^+ = \frac{1}{2}(\partial_{\theta_1} + \theta_1 \partial_{x_1}), \quad f^- = -\frac{1}{2}x_1 (\partial_{\theta_1} + \theta_1 \partial_{x_1}) + \theta_1 \lambda. \quad (17b)$$

Следуя [2], определим скалярное произведение состояний $|f\rangle, |h\rangle \in V$ посредством интеграла Березина по нижнетреугольным матрицам

$$\langle f|h\rangle = \int dx_1 \int d\theta_1 \overline{f(x_1, \theta_1)} h(x_1, \theta_1), \quad (18)$$

таким образом, V является гильбертовым пространством.

Определим левые и правые уиттекеровские состояния в V :

$$f^+ |\psi_R^\pm\rangle = \pm \frac{i^{3/2}}{2} |\psi_R^\pm\rangle, \quad (19a)$$

$$\langle \psi_L | f^- = \langle \psi_L | \frac{i^{3/2}}{2}, \quad (19b)$$

которые представляются функциями

$$|\psi_R^\pm\rangle = e^{i^{3/2}x_1}(1 \pm i^{3/2}\theta_1), \quad (20a)$$

$$\langle\psi_L| = e^{-\frac{i^{3/2}}{x_1}}(x_1^{-2\lambda-1} - x_1^{-2\lambda-2}i^{3/2}\theta_1). \quad (20b)$$

Рассмотрим матричные элементы

$$\Psi_\pm(\lambda, \tilde{\phi}) = \langle\psi_L|e^{\tilde{\phi}h}|\psi_R^\pm\rangle. \quad (21)$$

Явным вычислением проверяется, что

$$\Psi_\pm(\lambda, \tilde{\phi}) = 2i^{2\lambda} \left(K_{2\lambda+1}(2ie^{\tilde{\phi}}) \pm K_{2\lambda-1}(2ie^{\tilde{\phi}}) \right). \quad (22)$$

Сделаем вставку оператора Казимира и, используя соотношения (10a) – (10e), имеем

$$\begin{aligned} \langle\psi_L|e^{\tilde{\phi}h}C|\psi_R^\pm\rangle &= \\ &= \left(\frac{1}{4}\partial_\phi^2 + e^{2\tilde{\phi}} \pm \frac{1}{2}e^{\tilde{\phi}}i \right) \langle\psi_L|e^{\tilde{\phi}h}|\psi_R^\pm\rangle = \\ &= \frac{\lambda(2\lambda+1)}{2} \langle\psi_L|e^{\tilde{\phi}h}|\psi_R^\pm\rangle. \end{aligned} \quad (23)$$

Уравнение выше совпадает с (6) после замены $\tilde{\phi} = \phi + \frac{\pi i}{2}$.

Теоретико-групповое BC_1 системы Калоджеро–Мозера. В неопубликованной работе С. М. Харчева [4] дана теоретико-групповая интерпретация гамильтониана BC_1 системы Калоджеро–Сазерленда. А именно, рассматривается представление $\mathfrak{sl}(2, \mathbb{R})$ алгебры

$$e = \partial_z, \quad h = 2\lambda - 2z\partial_z, \quad f = 2\lambda z - z^2\partial_z, \quad (24)$$

на пространстве функций $|f\rangle \in F$. На F определено скалярное произведение

$$\langle f|g\rangle = \int \overline{f(\bar{z})}g(z). \quad (25)$$

Форма (25) инвариантна относительно действия (24) при $\lambda + \bar{\lambda} = -1$.

Рассмотрим вектор $|v_g\rangle \in F$, который удовлетворяет следующим условиям

$$(e - f)|v_g\rangle = 2ig|v_g\rangle, \quad g \in \mathbb{R}, \quad (26)$$

который представлен функцией

$$|v_g\rangle = (1 + iz)^{\lambda+g}(1 - iz)^{\lambda-g}. \quad (27)$$

В [4] показано, что функция

$$\Psi(x) = \sinh(x)^{-\frac{1}{2}} \langle v_{g_2}(z), e^{\frac{xh}{2}} v_{g_1}(z) \rangle \quad (28)$$

решает уравнение

$$\begin{aligned} \left(\partial_x^2 + \frac{g_1^2 + g_2^2 + 1 - 2g_1g_2 \cosh(x)}{\sinh^2(x)} \right) \Psi(x) &= \\ &= \left(\lambda + \frac{1}{2} \right)^2 \Psi(x). \end{aligned} \quad (29)$$

Решения этого уравнения выражаются через присоединенные функции Лежандра [5]. Уравнение (29) приводится к задаче на собственные значения с гамильтонианом

$$H = \partial_x^2 - \frac{(g_1 - g_2)^2 + 1}{4 \cosh^2(x/2)} + \frac{(g_1 + g_2)^2 + 1}{4 \sinh^2(x/2)}. \quad (30)$$

И. В. Полубиным было обнаружено, что гамильтониан (30) модели Калоджеро–Сазерленда допускает представление, аналогичное (8). Рассмотрим матрицу

$$\begin{aligned} \Omega_{CM} &= \begin{pmatrix} 0 & Q_{CM+} \\ Q_{CM-} & 0 \end{pmatrix} = \\ &= \begin{pmatrix} 0 & \partial_x + \nu_1 \tanh(\frac{x}{2}) + \nu_2 \coth(\frac{x}{2}) \\ \partial_x - \nu_1 \tanh(\frac{x}{2}) - \nu_2 \coth(\frac{x}{2}) & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (31)$$

Тогда,

$$H_{BC_1} = \Omega_{CM}^2 = \text{diag}(a_1, a_2), \quad (32a)$$

$$a_1 = \partial_x^2 + \frac{\nu_1(\nu_1 - \frac{1}{2})}{\cosh^2(\frac{x}{2})} - \frac{\nu_2(\nu_2 + \frac{1}{2})}{\sinh^2(\frac{x}{2})} - (\nu_1 + \nu_2)^2, \quad (32b)$$

$$a_2 = \partial_x^2 + \frac{\nu_1(\nu_1 + \frac{1}{2})}{\cosh^2(\frac{x}{2})} - \frac{\nu_2(\nu_2 - \frac{1}{2})}{\sinh^2(\frac{x}{2})} - (\nu_1 + \nu_2)^2, \quad (32c)$$

где параметры ν_i , g_i связаны следующим образом

$$\nu_i \left(\nu_i + \left(-\frac{1}{2}\right)^i \right) = -\frac{(g_1 + (-1)^i g_2)^2 + 1}{4}. \quad (33)$$

Известно, что тригонометрические системы Калоджеро–Мозера допускают вырождение в открытую цепочку Тоды [6, 7]. Сделаем следующее преобразование:

$$x \rightarrow x + \Delta/2, \quad \nu_i = \alpha_i e^\Delta, \quad i = 1, 2. \quad (34)$$

В пределе $\Delta \rightarrow \infty$

$$H_{BC_1} \rightarrow \begin{pmatrix} \partial_x^2 + \alpha_1^2 e^{-4x} + \alpha_1 \alpha_2 e^{-2x} & 0 \\ 0 & \partial_x^2 + \alpha_1^2 e^{-4x} - \alpha_1 \alpha_2 e^{-2x} \end{pmatrix}. \quad (35)$$

Заметим, что операторы $Q_{CM\pm}$ имеют конечный предел только в случае $\alpha_1 = -\alpha_2$, что в точности отвечает (6).

-
1. I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik, *Tables of integrals*, GIFML, Moscow (1963).
 2. A. Gerasimov, S. Kharchev, A. Morozov, M. Olshanetsky, A. Marshakov, and A. Mironov, *Int. J. Mod. Phys. A* **12**(14), 2523 (1997).
 3. A. A. Gerasimov, D. R. Lebedev, and S. V. Oblezin, arXiv:2012.08902 (2020).

-
4. S. Kharchev, private communication.
 5. N. Y. Vilenkin, *Special functions and the theory of group representations*, 2nd ed. Nauka, Moscow (1991), pp. 311, 327–328.
 6. V. I. Inozemtsev, *Commun. Math. Phys.* **121**(4), 629 (1989).
 7. A. V. Zotov and Y. B. Chernyakov, *Theor. Math. Phys.* **129**(2), 1526 (2001).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 114

Выпуск 8

25 октября 2021

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

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

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

Пространственное разделение скалярных световых пучков с орбитальным угловым моментом с помощью фазовой метаповерхности

А. Д. Гартман¹⁾, А. С. Устинов, А. С. Шорохов, А. А. Федянин

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

Поступила в редакцию 26 августа 2021 г.

После переработки 10 сентября 2021 г.

Принята к публикации 10 сентября 2021 г.

Предложена концепция и оптимизирован дизайн поляризационно-независимой кремниевой метаповерхности на основе Ми-резонансных нанодисков для пространственного разделения скалярных световых пучков с различными значениями орбитального углового момента (ОУМ). Получены геометрические параметры структуры для излучения с длиной волны 810 нм и численно продемонстрировано смещение пучков с разными ОУМ относительно оси оптической системы.

DOI: 10.31857/S1234567821200015

Возрастающий интерес к квантовой фотонике в последние годы стал стимулом для стремительного развития этой области как со стороны фундаментальных исследований, так и со стороны прикладных задач [1]. Было предложено множество различных платформ и подходов, но наиболее практичными из них представляются те, что могут предложить высокий уровень интеграции и миниатюризации на микро- и наномасштабах в рамках фотонного чипа, а также совместимость с методами изготовления современной микроэлектроники [2]. Такие оптические устройства за счет своих уникальных свойств часто превосходят возможности объемных аналогов (среди которых можно отметить классические рефрактивные оптические элементы, такие как линзы, фазовые пластинки и пр.) по управлению неклассическим излучением [3, 4] и открывают широкие перспективы для масштабирования.

Отдельной областью квантовой фотоники, которая представляет особый интерес для задач криптографии и вычислений с неклассическим светом, является исследование электромагнитного излучения с орбитальным угловым моментом (ОУМ) [5] – составляющей частью углового момента светового луча (помимо спинового углового момента), зависящей от распределения поля в каждой точке пространства. В отличие от спинового углового момента, связанного с поляризацией фотона и принимающего значения $\pm\hbar$, ОУМ изменяется в диапазоне от $-\hbar$ до $\hbar$ и предоставляет теоретически большее количество

возможных степеней свободы, что приводит к повышению размерности гильбертова пространства [6]. В свою очередь, было доказано, что повышение размерности не только способствует росту плотности кодирования оптической информации в одном канале [7], но и увеличивает секретность связи, делая ее более устойчивой к внешним воздействиям [8]. Примером излучения с орбитальным угловым моментом являются скалярные световые пучки Лагерра–Гаусса [9], за счет чего они представляют особый интерес для задач квантовой криптографии [10, 11]. Это связано в первую очередь с созданием надежных и защищенных широкополосных каналов связи для передачи и обработки информации [12]. Однако, несмотря на все преимущества работы со светом, обладающим таким большим числом степеней свободы, в настоящий момент существует не так много устройств, реализованных на компактной интегральной платформе.

В связи с этим, актуальным является поиск решений, позволяющих осуществлять управление светом с ОУМ, основанных на новых подходах и принципах. Одной из ключевых задач в этой области является реализация пространственного разделения скалярных световых пучков с различными значениями ОУМ [13, 14]. Этого можно достичь с помощью планарных оптических устройств – метаповерхностей, представляющих собой двумерные массивы резонансных наноструктур, специально спроектированные для создания сложного фазового профиля [15] для эффективной генерации и управления высоко-размерных запутанных квантовых состояний [16].

¹⁾e-mail: gartman@nanolab.phys.msu.ru

За последнее время было показано, что использование метаповерхностей на основе субволновых нанорезонаторов позволяет эффективно управлять как классическим [17–19], так и квантовым излучением [20, 21]. В частности, было продемонстрировано, что используя метаповерхность специального фазового профиля, состоящую из ячеек кремниевых наночастиц, можно проводить измерение и восстановление одно- и многофотонных состояний света, при этом обеспечивая надежную реконструкцию амплитуды, фазы, когерентности и запутанности состояний, закодированных с помощью поляризации исходного излучения [22].

В данной работе предложена идея пространственного разделения скалярных пучков с ОУМ на основе резонансных кремниевых метаповерхностей (КМП) с заданным фазовым профилем. Схематичное изображение принципа пространственного разделения излучения, прошедшего через КМП, представлено на рис. 1. Скалярный пучок с различными значениями

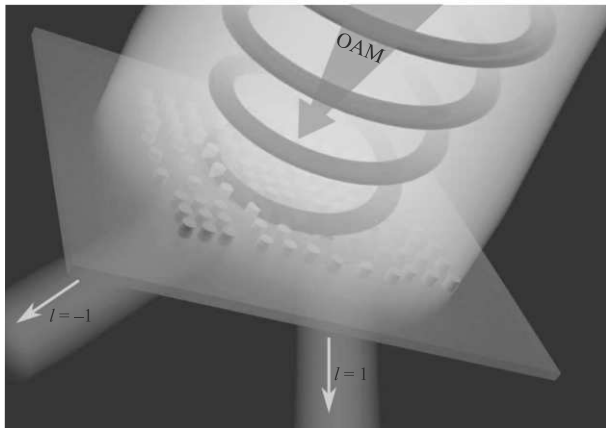


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематичное изображение принципа работы резонансной кремниевой метаповерхности для разделения скалярных пучков с разными значениями ОУМ (ОАМ – *orbital angular momentum*) в пространстве

ОУМ, проходя через КМП, посредством преобразования фазы разделяется в пространстве на две компоненты, соответствующие $l = -1$ и $l = 1$. Как было отмечено выше [23], использование таких оптических структур, как КМП для решения данной задачи обусловлено их компактным размером, простотой изготовления и совместимостью с современной технологией производства микроэлектронной промышленности [24]. В отличие от ранее представленных аналогов [14], предложенная в данной работе КМП со сложным поверхностным профилем также является поляризационно независимой.

Задача пространственного разделения излучения с различными значениями ОУМ имеет классическое решение [25], которое может быть описано аналитически при помощи выражений (1) и (2):

$$\phi_1(x, y) = \frac{2\pi a}{\lambda f} \left[y \arctan\left(\frac{y}{x}\right) - x \ln\left(\frac{\sqrt{x^2 + y^2}}{b}\right) + x \right], \quad (1)$$

$$\phi_2(x, y) = -\frac{2\pi ab}{\lambda f} \exp\left(-\frac{U}{a}\right) \cos\left(\frac{V}{a}\right). \quad (2)$$

Данные уравнения являются следствием решения задачи отображения объекта из плоскости $(x; y)$ в плоскость $(u; v)$ для случая, соответствующего переходу от декартовых координат к логарифмическим полярным (log-pol) координатам: $u = -a \ln(\sqrt{x^2 + y^2}/b)$, $v = a \arctan(y/x)$, где $a = g/2\pi$ (g – поперечный размер преобразованного луча, а параметр b отвечает смещению сформированного изображения в направлении u). Первое преобразование (1) совершает конформное отображение координат $(x; y) \rightarrow (u; v)$, переводя пучок со спиральным фазовым профилем в поперечно вытянутый пучок с линейным градиентом фазы. После прохождения такого пучка через линзу излучение, отвечающее разным значениям ОУМ, будет сфокусировано в разные точки вдоль поперечного направления выходного экрана. Однако, возникающее в результате преобразования координат изменение длины оптического пути означает, что фильтр (1) вносит фазовое искажение в профиль излучения. Для его корректировки и коллимации светового пучка на выходе оптической системы необходимо использовать преобразование (2) (phase corrector). Стоит отметить необходимость совмещения центров падающего пучка и метаповерхности для осуществления корректного преобразования координат. Это нужно для последующего эффективного разделения излучения с разным значением ОУМ в пространстве. Таким образом, система изменения фазы электромагнитного излучения спирального профиля включает в себя два преобразования: первое для преобразования координат, а второе – для коррекции фазовых искажений [26].

Для того, чтобы осуществить разделение скалярных пучков по разным значениям ОУМ в пространстве с помощью КМП, необходимо обеспечить выполнение ряда условий, накладываемых на ее фазовый профиль [27]. Во-первых, необходимо реализовать такую геометрию фазовой маски КМП, чтобы на выбранной (рабочей) длине волны коэффициент пропускания был высоким (наиболее приближен-

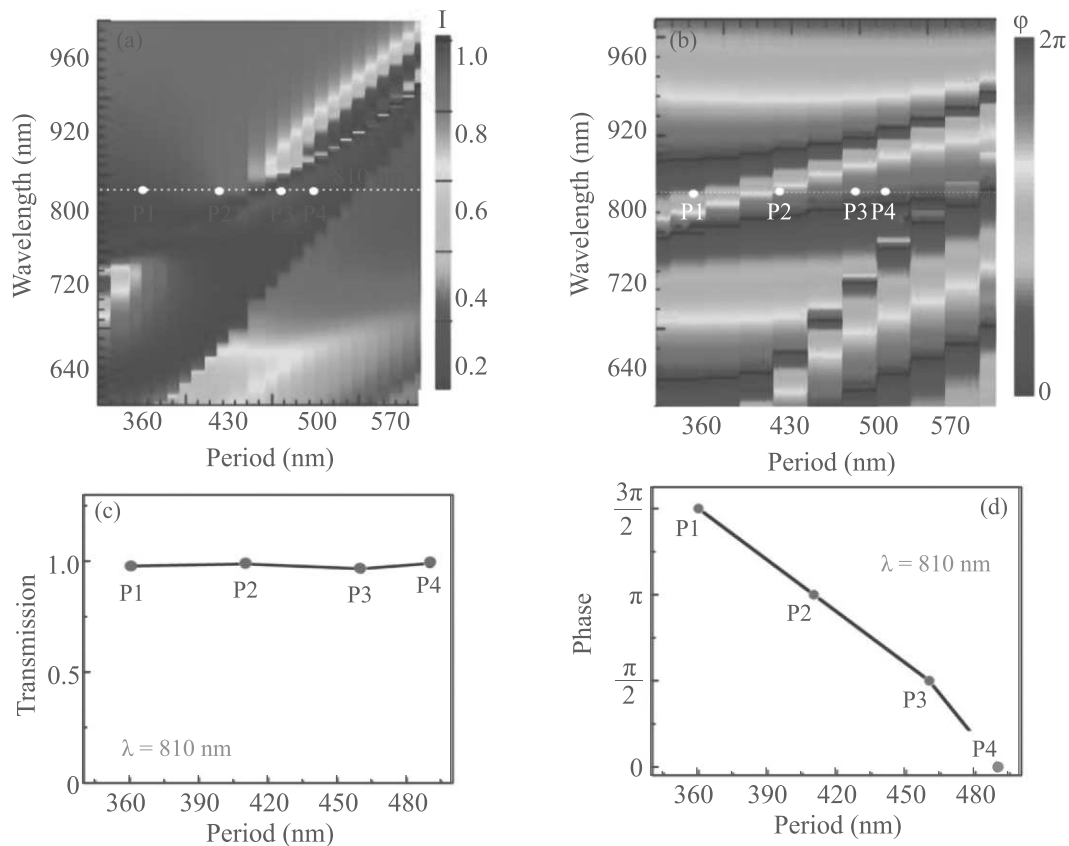


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a), (b) – Графики зависимостей коэффициента пропускания и фазы прошедшей волны для ансамбля кремниевых нанодисков высотой $h = 130$ нм и диаметром $d = 210$ нм от длины волны падающего электромагнитного излучения и периода расположения нанорезонаторов; (c), (d) – графики зависимостей коэффициента пропускания и фазового профиля на выделенной длине волны $\lambda = 810$ нм для ансамбля кремниевых нанодисков высотой $h = 130$ нм и диаметром $d = 210$ нм в зависимости от периода их расположения

ным к 1) и не изменялся для всего диапазона вариаций геометрических параметров структуры. Во-вторых, необходимо обеспечить возможность изменения фазы прошедшего электромагнитного излучения в диапазоне от 0 до 2π радиан. Основываясь на данных требованиях, в программном пакете Lumerical FDTD методом конечных разностей по временной области было проведено численное моделирование зависимостей коэффициента пропускания (рис. 2a) и фазы прошедшей волны (рис. 2b) для кремниевых нанодисков высотой $h = 130$ нм и диаметром $d = 210$ нм. Данный выбор геометрических параметров обусловлен наличием перекрытия электрического и магнитного дипольных резонансов у кремниевых нанодисков в заданном спектральном диапазоне [28–30]. На выбранной длине волны 810 нм были подобраны четыре значения периода кремниевых нанодисков, для которых коэффициент пропускания принимает максимально близкое к единице значение (рис. 2c), а фаза прошедшей волны (рис. 2d) изменя-

ется в диапазоне от 0 до 2π . Выбор длины волны обусловлен тем, что во многих работах квантовое излучение с ОУМ реализуется на базе диодного лазера с длиной волны 405 нм и нелинейного кристалла, например КТР, настроенного в режиме коллинеарной генерации бифотонов [31].

Согласно преобразованию (1) была подобрана фазовая маска для КМП. На рисунке 3а представлена поверхность, заданная преобразованием (1) и отображающая изменение фазового профиля в диапазоне от 0 до 200π радиан. Расчетная область была задана в соответствии с реальными размерами структур и охватывала диапазон 200×200 мкм². Данная поверхность была разбита на равные области – квадраты размером 20×20 мкм², внутри которых было проведено усреднение значений фазы и нормировка по диапазону от 0 до 2π радиан. Каждой такой области было поставлено в соответствие определенное значение периода кремниевых нанодисков [32], полученное ранее и наилучшим образом описываю-

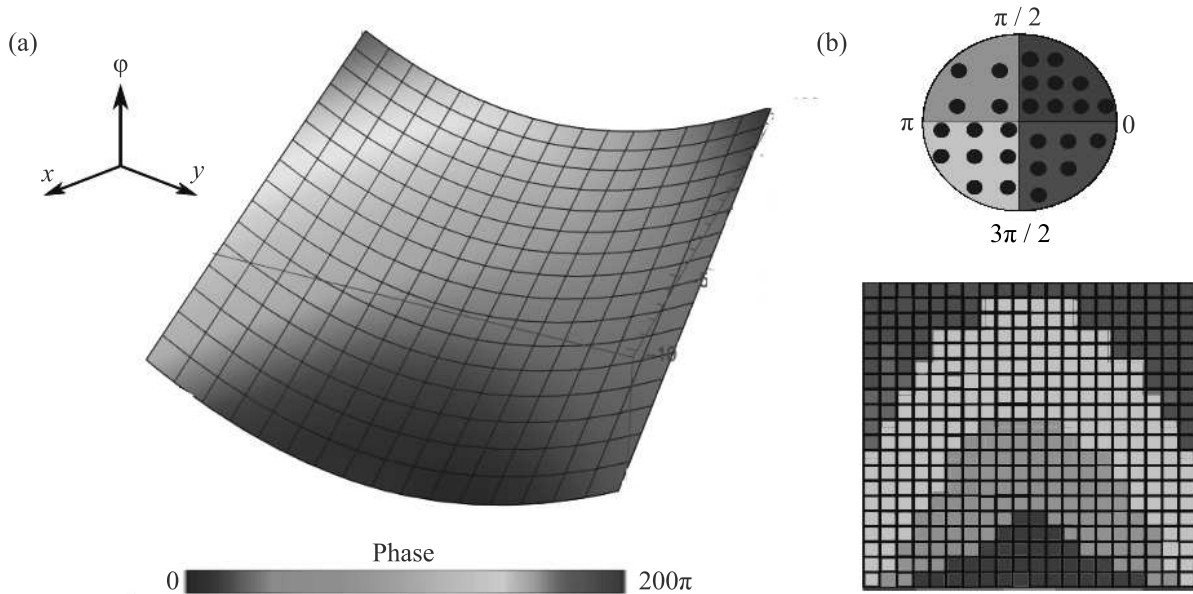


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Фазовая поверхность, заданная преобразованием (1) и отображающая изменение фазового профиля в диапазоне от 0 до 200π радиан; (б) – схематичное изображение фазовой маски для КМП, представляющее собой массив квадратов размером $20 \times 20 \text{ мкм}^2$, каждому из которых соответствует определенное значение фазы, отмеченное цветом: синим – значения в диапазоне от 0 до $\pi/2$; зеленым – от $\pi/2$ до π ; желтым – от π до $3\pi/2$; красным – от $3\pi/2$ до 2π

щее изменение фазы данного квадрата поверхности (рис. 3б).

Таким образом, был подобран оптимальный дизайн для КМП, представляющей собой резонансную двумерную структуру, разбитую на квадраты – области выделенной фазы. Каждый такой квадрат состоит из массивов кремниевых нанодисков высотой $h = 130 \text{ нм}$, диаметром $d = 210 \text{ нм}$ и характеризуется значением периода согласно табл. 1.

Таблица 1. Сводная таблица по сопоставлению диапазона изменения фазы и соответствующего ему периода между кремниевыми нанодисками внутри квадратов метаповерхности

$0 - \pi/2$	$\pi/2 - \pi$	$\pi - 3\pi/2$	$3\pi/2 - 2\pi$
360 нм	407 нм	460 нм	493 нм

Предложенная выше концепция резонансной метаповерхности не является единственно возможной, но в силу простоты изготовления данное решение предполагает легкость в экспериментальной реализации.

На рисунке 4а представлена оптическая схема для пространственного разделения скалярных пучков с ОУМ системой, состоящей из КМП, совершающей конформное преобразование координат, и фазокорректирующей поверхности, в роли которой может выступать пространственный модулятор света. Численное моделирование было проведено мето-

дом решения уравнений для дифракции Фраунгофера, реализованного в программном пакете Zemax OpticStudio в модуле физической оптики. Скалярный пучок с ОУМ (ОАМ – *orbital angular momentum*) попадает на кремниевую метаповерхность (*dielectric metasurface*), которая совершает преобразование координат. После на экране (*image plane*) наблюдается пространственное разделение падающего излучения на разные компоненты ОУМ. На рисунке 4б представлен фазовый профиль пучков на входе системы (*input beam*) и соответствующие им изображения в плоскости экрана (*image plane*). Были рассмотрены пучки с ОУМ $l = \pm 1$ и $l = \pm 3$. Стоит отметить, что выбранные значения ОУМ связаны лишь с соображениями наглядности представления результатов, аналогичные результаты могут быть получены и для других значений ОУМ. Наблюдается пространственное разделение скалярных пучков разных знаков относительно центральной оптической оси системы, причем каждое значение l точно локализовано в плоскости $X'Y'$ и смещено по координате Y' относительно нуля по разные стороны в зависимости от знака и модуля ОУМ. Так, например, пучки с положительными значениями ОУМ $l = 1; 3$ смещаются выше оси OX , а пучки с $l = -1; -3$, соответственно, ниже. Смещение равных по модулю компонент l одинаково, но различно по направлению.

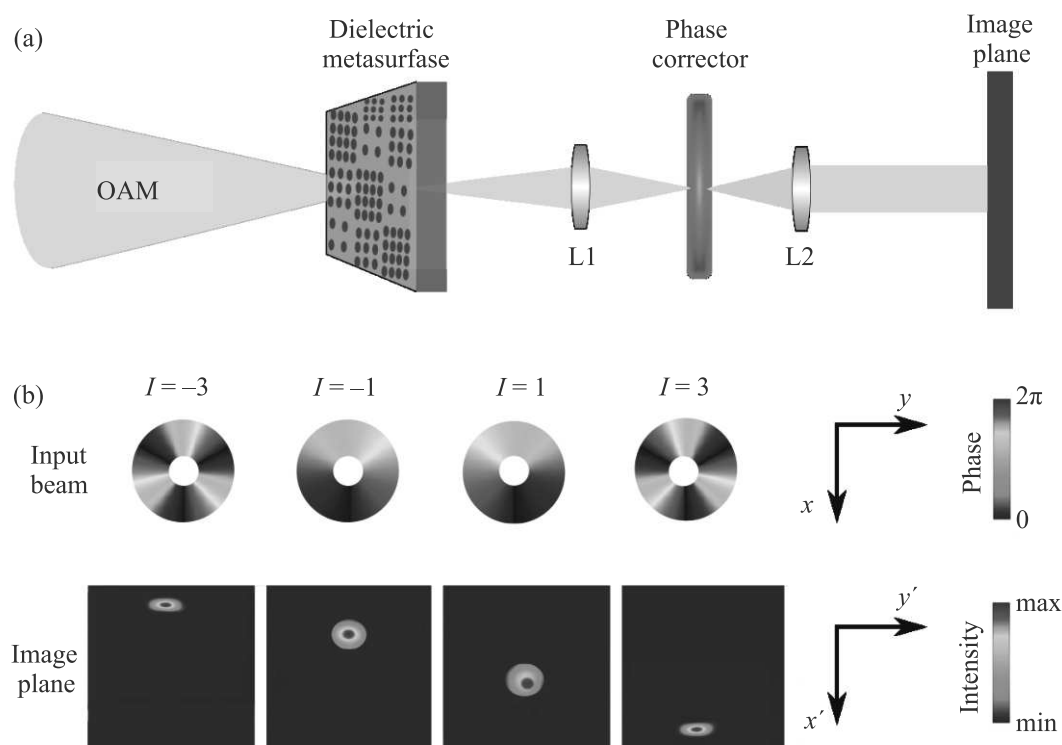


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Изображение оптической схемы для разделения скалярных пучков с ОУМ в пространстве; (b) – фазовый профиль пучков на входе системы (input beam) и соответствующие им изображения в плоскости экрана (image plane)

Таким образом, методами численного моделирования были исследованы планарные оптические структуры – резонансные метаповерхности, состоящие из массива кремниевых цилиндрических наночастиц, обеспечивающих высокое пропускание света и полный фазовый контроль. Показано, что использование КМП специально подобранного профиля позволяет эффективно разделять различные компоненты излучения с орбитальным угловым моментом в пространстве. Полученные результаты могут быть использованы в задачах квантовой криптографии для создания компактных устройств анализа неклассического света.

Авторы выражают благодарность С. С. Страупе за конструктивные комментарии и ценные замечания.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках проектов # 19-32-90223 (моделирование и оптимизация отклика однородной метаповерхности) и # 20-02-00897 (численная демонстрация разделения пучков в пространстве). Часть исследований выполнена при поддержке Центра квантовых технологий МГУ.

1. S. Slussarenko and G. Pryde, Appl. Phys. Rev. **6**, 041303 (2019).
2. J. Wang, F. Sciarrino, A. Laing, and M. Thompson, Nature Photon. **14**, 273 (2020).
3. F. Peyskens, C. Chakraborty, M. Muneeb, D. Thourhout, and D. Englund, Nat. Commun. **10**, 4435 (2019).
4. A. D. Gartman, M. K. Kroychuk, A. S. Shorokhov, and A. A. Fedyanin, JETP Lett. **112**, 693 (2020).
5. L. Allen, M. Beijersbergen, R. Spreeuw, and J. Woerdman, Phys. Rev. **45**, 8185 (1992).
6. D. Andrews and M. Babiker, *The Angular Momentum of Light*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK (2012).
7. M. Mirhosseini, O. Magaña-Loaiza, M. O'Sullivan, B. Rodenburg, M. Malik, M. Lavery, M. Padgett, D. Gauthier, and R. Boyd, New J. Phys. **17**, 033033 (2015).
8. J. O'Brien, A. Furusawa, and J. Vuckovic, Nature Photon. **10**, 687 (2009).
9. R. Devlin, A. Ambrosio, N. Rubin, J. Mueller, and F. Capasso, Science **17**, 896 (2017).
10. J. Wang, Photonics Res. **4**, 251 (2016).

11. K. A. Balygin, V. I. Zaitsev, A. N. Klimov, A. I. Klimov, S. P. Kulik, and S. N. Molotkov, *JETP Lett.* **105**, 606 (2017).
12. X. Wang, Z. Nie, Y. Liang, J. Wang, T. Li, and B. Jia, *Nanophotonics* **7**, 1533 (2018).
13. M. Mirhosseini, M. Malik, Z. Shi, and R. Boyd, *Nat. Commun.* **4**, 2781 (2013).
14. G. Ruffato, P. Capaldo, M. Massari, E. Mafakheri, and F. Romanato, *Opt. Express* **27**, 15750 (2019).
15. S. Pachava, R. Dharmavarapu, A. Vijayakumar, S. Jayakumar, A. Manthalkar, A. Dixit, N. Viswanathan, B. Srinivasan, and S. Bhattacharya, *Opt. Eng.* **4**, 041205 (2019).
16. F. Yue, D. Wen, C. Zhang, B. Gerardot, W. Wang, S. Zhang, and X. Chen, *Adv. Mater.* **29**, 1603838 (2017).
17. A. Kuznetsov, A. Miroshnichenko, M. Brongersma, Y. Kivshar, and B. Lukyanchuk, *Science* **354**, 6314 (2016).
18. N. Yu and F. Capasso, *Nat. Mater.* **13**, 139 (2014).
19. S. Kruk, B. Hopkins, I. Kravchenko, A. Miroshnichenko, D. Neshev, and Y. Kivshar, *APL Photonics* **1**, 030801 (2016).
20. T. Stav, A. Faerman, E. Maguid, D. Oren, V. Kleiner, E. Hasman, and M. Segev, *Science* **361**, 1101 (2018).
21. A. S. Solntsev, G. S. Agarwal, and Y. S. Kivshar, *Nature Photon.* **15**, 327 (2021).
22. K. Wang, G. Titchener, S. Kruk, L. Xu, H. Chung, M. Parry, I. Kravchenko, Y. Chen, A. Solntsev, Y. Kivshar, D. Neshev, and A. Sukhorukov, *Science* **12**, 1104 (2018).
23. H. Hsiao, C. Chu, and D. Tsai, *Small Methods* **1**, 1600064 (2017).
24. E. Maguid, I. Yulevich, M. Yannai, V. Kleiner, M. Brongersma, and E. Hasman, *Light Sci. Appl.* **6**, 31031 (2017).
25. O. Bryngdahl, *J. Opt. Soc. Am.* **64**, 1092 (1974).
26. G. Berkhout, M. Lavery, J. Courtial, M. Beijersbergen, and M. Padgett, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 153601 (2010).
27. K. Chong, I. Staude, A. James, J. Dominguez, S. Liu, S. Campione, G. Subramania, T. Luk, M. Decker, D. Neshev, I. Brener, and Y. Kivshar, *Nano Lett.* **5**, 5369 (2015).
28. E. V. Melik-Gaykazyan, K. L. Koshelev, J. H. Choi, S. S. Kruk, A. A. Fedyanin, and Y. S. Kivshar, *JETP Lett.* **109**, 131 (2019).
29. M. K. Kroychuk, D. F. Yagudin, A. S. Shorokhov, D. A. Smirnova, I. I. Volkovskaya, M. R. Shcherbakov, G. Shvets, Y. S. Kivshar, and A. A. Fedyanin, *Adv. Opt. Mater.* **7**, 1900447 (2019).
30. M. K. Kroychuk, A. S. Shorokhov, D. F. Yagudin, D. A. Shilkin, and A. A. Fedyanin, *Nano Lett.* **20**, 3471 (2020).
31. E. Kovlakov, S. Straupe, and S. Kulik, *Phys. Rev. A* **98**, 060301 (2018).
32. K. Chong, L. Wang, I. Staude, A. James, J. Dominguez, S. Liu, G. Subramania, M. Decker, D. Neshev, I. Brener, and Y. Kivshar, *ACS Photonics* **3**, 514 (2016).

Влияние размера нанокристаллов на антистоксовую фотолюминесценцию в перовскитах галогенида свинца

К. С. Секербаев^a, Г. К. Мусабек^{a,b,c}, Н. С. Покрышкин^{b,d}, В. Г. Якунин^d, Е. Т. Таурбаев^a, Е. Шабдан^{a,e},
Ж. Н. Утегулов^f, В. С. Чирвоный^g, В. Ю. Тимошенко^{d,h1)}

^aКазахский национальный университет им. аль-Фараби, Институт экспериментальной и теоретической физики, 050040 Алматы, Казахстан

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

^cИнститут информационных и вычислительных технологий, 050000 Алматы, Казахстан

^dМГУ им. М. В. Ломоносова, физический факультет, 119991 Москва, Россия

^eНазарбаев Университет, Школа инженерных и цифровых наук, 010000 Нур-Султан, Казахстан

^fНазарбаев Университет, Факультет физики, Школа естественных и гуманитарных наук, 010000 Нур-Султан, Казахстан

^gUniversidad de Valencia, UMDO, Instituto de Ciencia de los Materiales, 46071 Valencia, Spain

^hФизический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 сентября 2021 г.

После переработки 10 сентября 2021 г.

Принята к публикации 10 сентября 2021 г.

В работе сообщается о зависящей от размера нанокристаллов перовскита бромида свинца метил-аммония (MALB) антистоксовой фотолюминесценции при резонансном лазерном возбуждении. Эффективность такой люминесценции была более высокой для образцов со средними размерами 6 нм. Эффект объясняется электрон-фононным взаимодействием, которое приводит к одновременному поглощению фотонов и фононов с последующей излучательной рекомбинацией через экситонные состояния в нанокристаллах MALB. Полученные результаты могут быть полезны для потенциальных применений нанокристаллов MALB для оптического охлаждения.

DOI: 10.31857/S1234567821200027

Антистоксова фотолюминесценция (ASPL) заключается в испускании фотонов с энергией, превышающей энергию возбуждающего фотона [1–3]. ASPL наблюдается в большом разнообразии систем, начиная от атомов [4] и заканчивая полупроводниковыми нанокристаллами (NCs) [5]. Процесс ASPL в твердотельном материале приводит к уменьшению энергии решетки, что приводит к охлаждению оптически возбужденного материала. В целом, оптические процессы с повышением энергии фотона перспективны для различных применений, таких как апконверсионные лазеры [6], и для твердотельного оптического охлаждения [7].

Среди наиболее интересных оптоэлектронных материалов, в которых наблюдается процесс ASPL, активно исследуются NCs органометаллического перовскита галогенида свинца (LHP) [8–10]. Вследствие прямозонности этого полупроводника и боль-

шого оптического поглощения NCs LHP демонстрируют эффективную фотолюминесценцию (PL) с высоким квантовым выходом, что важно для оптического охлаждения [7, 8]. Кроме того, такие NCs и пленки из них перспективны для оптоэлектронных применений, таких как солнечные элементы, светодиоды (LED), фотоприемники и лазеры [11–13]. Теоретически было показано, что оптическое охлаждение может быть усилено за счет связи с резонансами Ми в относительно больших NCs LHP [14]. Кроме того, квантово-размерный эффект в наноструктурах LHP дает возможность перестройки полосы поглощения и спектра PL, что можно использовать для повышения эффективности ASPL, а, следовательно, и оптического охлаждения [3]. Отметим, что как коллоидные растворы, так и пленки LHP NCs с желаемыми размерами в диапазоне от единиц до нескольких сотен нанометров могут быть достаточно легко получены с использованием относительно недорогой процедуры жидкостного химического синтеза [15].

¹⁾e-mail: timoshen@physics.msu.ru

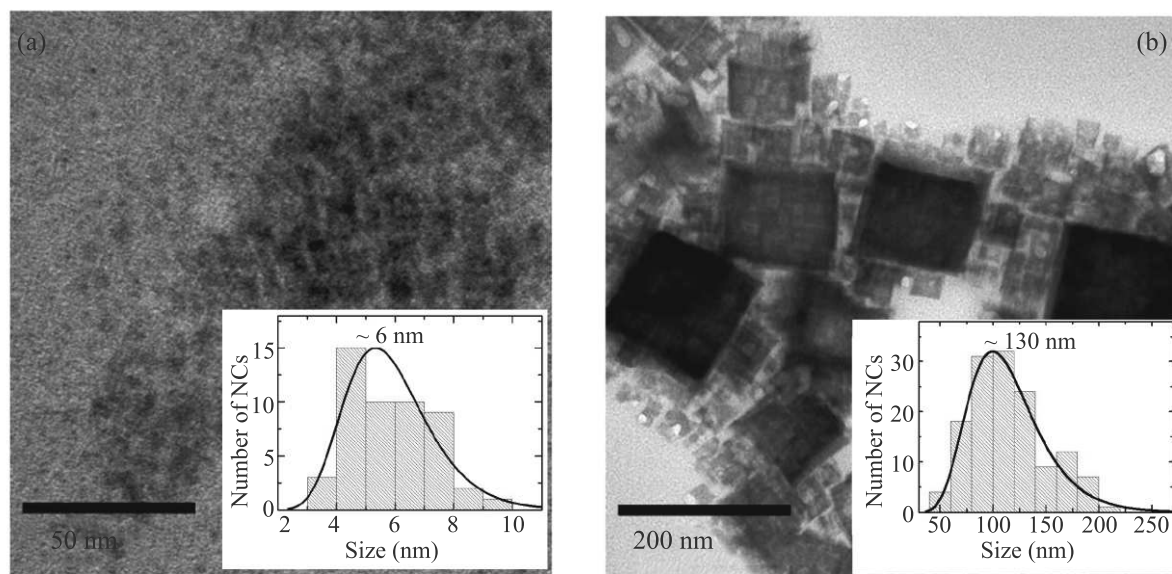


Рис. 1. (Цветной онлайн) ТЕМ изображения нанокристаллов MALB со средними размерами 6 (а) и 130 нм (б). Вставки показывают соответствующие гистограммы распределения нанокристаллов по размерам (столбики), аппроксимированные логнормальными функциями (линии)

В нашей работе исследуется эффективность ASPL в нанокристаллах органометаллического перовскита, а именно, бромид свинца метиламмония (MALB), со средними размерами от 6 до 130 нм при возбуждении светом энергией фотонов в полосе люминесценции данных нанокристаллов. Фотолюминесценция образцов также исследуется с использованием возбуждения с энергией фотонов существенно выше максимума спектра PL. Полученные результаты показывают, что возбуждению ASPL способствует поглощение фононов с последующей излучательной рекомбинацией экситонов, усиленной в малых NCs.

Образцы нанокристаллов MALB с химической формулой $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ были синтезированы с использованием метода переосаждения с помощью лиганда [16, 17]. Вкратце, компоненты MALB, растворенные в диметилформамиде, были добавлены в раствор “антирастворителя” на основе толуола (5 мл) с органическими лигандами, а именно: октилaminом (10–20 мкл), олеиновой кислотой (1 мл) и бензиловым спиртом (1 мл) [18]. Размер нанокристаллов MALB контролировался концентрацией октиламина: чем больше лиганда добавлялось, тем меньше был размер [19]. Перед оптическим измерением суспензию MALB NC наносили каплями на стеклянную подложку и сушили на воздухе. Толщина пленки составляла около 1 мкм, и она регулировалась количеством наносимой суспензии.

NCs MALB, нанесенные на покрытые углеродом золотые сетки, были изучены с помощью просвечивающего электронного микроскопа (ТЕМ) JEOL JEM-1400 Plus. Согласно данным ТЕМ (см. рис. 1), синтезированные NCs MALB имели преимущественно кубическую форму со средними размерами 6 и 130 нм для образцов, приготовленных с количеством октиламина 20 и 10 мкл соответственно. Вставки на рис. 1 показывают соответствующие распределения размеров нанокристаллов, полученные из их изображений ТЕМ, которые были обработаны с помощью программы ImageJ (NIH, USA).

На рисунке 2 показаны спектры оптического поглощения подготовленных пленок. Спектр 130 нм нанокристаллов демонстрирует пик около 520 нм (2.38 эВ), что может быть связано с экситонным переходом, подобно случаю поликристаллических пленок MALB [20]. Хорошо выраженный экситонный пик указывает на то, что экситоны играют значительную роль во взаимодействии света и вещества в исследуемых нанокристаллах MALB. Действительно, энергия связи экситонов в поликристаллических пленках LHP оценивается в 10–20 мэВ в зависимости от состава галогенида [20]. Экситонные пики в спектрах поглощения и отражения ранее наблюдались как для бромида свинца метиламмония [20], так и для иодида [21].

Известно, что нелокальный отклик экситона может влиять на спектральные свойства вблизи резонанса.

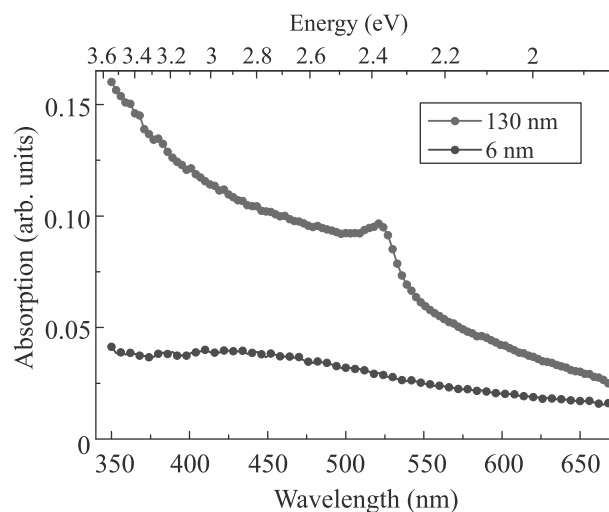


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры поглощения тонких пленок MALB со средними размерами нанокристаллов 6 нм (синие точки) и 130 нм (красные точки)

нансов Ми в галогенидных перовскитных нанокристаллах с размерами более 50–100 нм [22]. Пик экстинкции для 130 нм MALB NCs (см. рис. 2) не демонстрирует заметного “синего” сдвига, который может быть связан с эффектом нелокальности [22], или Фано-подобными провалами, в результате связывания экситонов с резонансом Ми в перовскитных NCs [23, 24]. Отсутствие этих особенностей в спектре экстинкции наших образцов можно объяснить широким распределением нанокристаллов и их агрегатов по размерам в исследованных высушенных слоях на стеклянных подложках.

Спектр поглощения образцов со средними размерами нанокристаллов 6 нм демонстрирует широкую полосу в области от 400 до 500 нм (см. рис. 2). Такая полоса, соответствующая энергиям фотонов от 2.5 до 3.2 эВ, объясняется эффектом квантового конфайнмента в MALB NCs, демонстрирующих распределение по размерам [15]. Уширение пика поглощения также может быть вызвано присутствием как кубических, так и плоских нанокристаллов [15]. Более того, поскольку энергия связи экситонов в полупроводниковой наноструктуре зависит от размера, формы и диэлектрического окружения NCs [25], это может привести к изменению спектров поглощения в исследуемых образцах MALB.

Спектры ASPL и PL были измерены с помощью конфокального микроскопа комбинационного рассеяния света Confotec MR350 (SOL Instruments) с детектором Andor iStar 340T CCD при лазерном возбуждении с длиной волны 532 нм и интенсивностью 1 кВт/см². Для нерезонансного возбуждения исполь-

зовался светодиод с длиной волны 405 нм с интенсивностью 0.1 кВт/см². На входе монохроматора был установлен notch-фильтр на основе брэгговской решетки с центром в 532 нм для подавления линии возбуждения. Тот же фильтр использовался для измерений PL при нерезонансном возбуждении. Все измерения проводились при комнатной температуре на воздухе.

На рисунке 3а показаны спектры PL приготовленных образцов при возбуждении светом с длиной

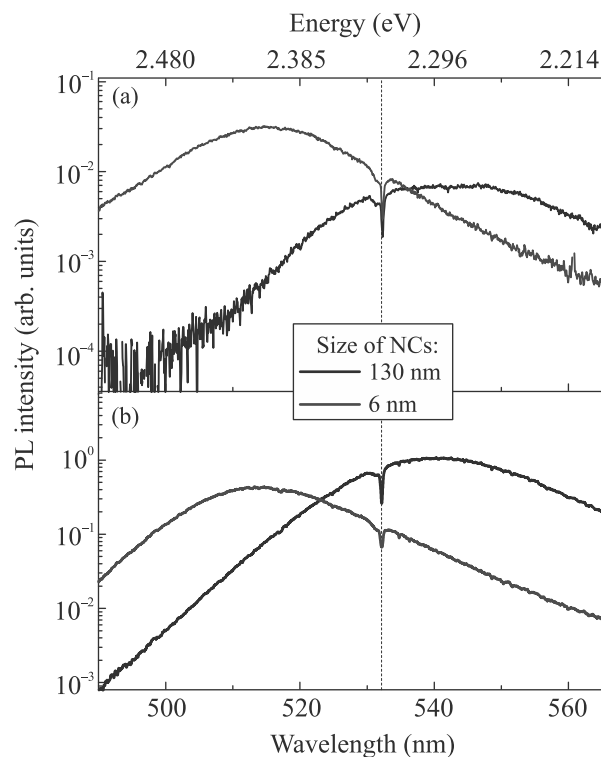


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры фотолуминесценции для образцов со средними размерами нанокристаллов MALB 6 нм (синяя линия) и 130 нм (черная линия) при возбуждении с длинами волн 405 нм (а) и 532 нм (б). Спектральное положение возбуждающего излучения с длиной волны 532 нм отмечено вертикальной пунктирной линией и провалом в спектрах, связанным с notch-фильтром

волны 405 нм. Полоса PL образца со средними размерами нанокристаллов 6 нм смещена на ~ 0.1 эВ в область высоких энергий по сравнению с таковой для образцов с большими нанокристаллами, что связано с квантово-размерным эффектом в меньших нанокристаллах [15, 26]. Наблюдаемое уширение спектров PL в последних, по-видимому, объясняется распределением нанокристаллов по размерам (см. рис. 1а). Эффект усиленного электрон-фононного взаимодействия в малых полупроводниковых нанокристаллах [27] также может влиять на уширение полосы PL.

Однако относительно широкий спектр PL (полная ширина при половинном максимуме около 0.15 эВ) нанокристаллов MALB размером 130 нм также может быть вызван нелокальностью экситонного отклика [22] и гибридными Фано резонансами, зависящими от размера нанокристаллов [22].

Спектры ASPL образцов NCs MALB при лазерном возбуждении 532 нм показаны на рис. 3б. Излучение ASPL становится сильнее для образца с меньшими NCs. Чтобы оценить эффективность процесса ASPL, мы сравнили числа испускаемых фотонов выше и ниже энергии возбуждающего фотона с энергией 2.33 эВ, соответствующей возбуждению лазера с длиной волны 532 нм. Отношение спектрально интегрированных интенсивностей антистоксового свечения к интенсивности в стоксовой части спектра, т.е. $I_A^{\text{int}}/I_S^{\text{int}}$ увеличивается с 0.25 до 7.7 при уменьшении размеров нанокристаллов со 130 до 6 нм.

Образцы с меньшими NCs демонстрируют более эффективную ASPL из-за более высокой вероятности процесса возбуждения с помощью фононов. Известно, что нарушение правил отбора в оптических переходах с участием фононов в малых полупроводниковых нанокристаллах может привести к повышению эффективности электрон-фононного взаимодействия [27, 28]. Следует отметить, что полученное отношение $I_A^{\text{int}}/I_S^{\text{int}}$ для образца со средним размером нанокристалла 130 нм также указывает на довольно высокую эффективность ASPL, и это может быть связано со вкладом NCs с размерами, которые соответствуют резонансам Ми [14, 23].

Для возбуждения ASPL в малых NCs MALB, где энергии фотонов недостаточно для создания экситонного состояния, очевидно, что недостающая энергия должна обеспечиваться фононами. Вклад фононов может быть связан с одновременным поглощением одного или нескольких фононов одновременно с поглощением фотонов. По данным спектроскопии комбинационного рассеяния света для перовскита MALB известны следующие фононы: CH_3 и NH_3^+ моды качения на 917 см^{-1} (114 мэВ), C-N⁺ валентная мода 971 см^{-1} (120 мэВ), NH_3^+ симметричная деформационная мода 1478 см^{-1} (183 мэВ), C-N вырожденная деформационная мода 1592 см^{-1} (198 мэВ) и CH_3 симметричные валентные колебания на 2965 см^{-1} (368 мэВ) [29]. Все эти моды могут способствовать образованию экситонов при возбуждении с энергией фотонов 2.33 эВ, о чем свидетельствуют высокоэнергетичные (более 2.4–2.5 эВ) “хвосты” спектров ASPL (см. рис. 3б). В то время как для возбуждения ASPL в больших NCs MALB как в полупроводниках с прямой запрещенной зоной требуется одновременное по-

глощение двух фононов, такие процессы с поглощением как двух, так и одного фонона должны быть более вероятными в меньших NCs, в которых возможно нарушение закона сохранения квазиимпульса [28].

Таким образом, в нанокристаллах органометаллического перовскита наблюдалась зависящая от их размера антистоксовая фотолуминесценция. Ее интенсивность возрастала с уменьшением среднего размера нанокристаллов из-за более сильного электрон-фононного взаимодействия, которое способствовало одновременному поглощению возбуждающего фотона и фононов. Необходимы дальнейшие исследования, например, с использованием оптических методов с временным разрешением [10], чтобы уточнить вклад различных фононов в процесс ASPL в нанокристаллах перовскита.

Работа была частично поддержана Министерством образования и науки Республики Казахстан (AP08052623). Один из авторов (Г. К. Мусабек) благодарна Казахскому национальному университету им. аль-Фараби за стипендию в рамках Программы постдокторантуры.

1. Yu. P. Rakovich, J. F. Donegan, M. I. Vasilevskiy, and A. L. Rogach, *Phys. Stat. Sol. A* **206**, 2497 (2009).
2. A. Volpia, G. Cittadino, A. Di Lieto, and M. Tonelli, *J. Lum.* **203**, 670 (2018).
3. S. T. Ha, C. Shen, J. Zhang, and Q. Xiong, *Nat. Photonics* **10**, 115 (2016).
4. W. D. Phillips, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 721 (1998).
5. X. Y. Wang, W. W. Yu, J. Y. Zhang, J. Aldana, X. Peng, and M. Xiao, *Phys. Rev. B* **68**, 125318 (2003).
6. R. M. Macfarlane, F. Tong, A. J. Silversmith, and W. Length, *Appl. Phys. Lett.* **52**, 1300 (1988).
7. X. Luo, M. D. Eisaman, and T. R. Gosnell, *Opt. Lett.* **23**, 639 (1998).
8. A. J. Prochazkova, F. Mayr, K. Gugunovic, B. Hailegnaw, J. Krajcovic, Y. Salinas, O. Brüggemann, N. S. Sariciftci, and M. C. Scharber, *Nanoscale* **2**, 16556 (2020).
9. W. Zhang, Y. Ye, C. Liu, J. Wang, J. Ruan, X. Zhao, and J. Han, *Adv. Opt. Mater.* **9**, 2001885 (2021).
10. A. Granados del Águila, T. T. H. Do, J. Xing, W. J. Jee, J. B. Khurgin, and Q. Xiong, *Nano Res.* **13**, 1962 (2020).
11. Z. K. Tan, R. S. Moghaddam, M. L. Lai, P. Docampo, R. Higler, F. Deschler, M. Price, A. Sadhanala, L. M. Pazos, D. Credgington, F. Hanusch, T. Bein, H. J. Snaith, and R. H. Friend, *Nat. Nanotechnol.* **9**, 687 (2014).
12. J. Ye, M. M. Byranvand, C. O. Martínez, R. L. Z. Hoye, M. Saliba, and L. Polavarapu, *Angew. Chem. Int. Ed.* **133**, 2 (2021).

13. M. V. Kovalenko, L. Protesescu, and M. I. Bodnarchuk, *Science* **358**, 745 (2017).
14. P. Tonkaev, G. Zograf, and S. Makarov, *Nanoscale* **11**, 17800 (2019).
15. J. Shamsi, A. S. Urban, M. Imran, L. D. Trizio, and L. Manna, *Chem. Rev.* **119**, 3296 (2019).
16. D. McKenna, B. A. Shivkumar, B. Charles, and R. C. Evans, *Nanoscale* **12**, 11694 (2020).
17. A. J. Prochazkova, M. C. Scharber, C. Yumusak, J. Jančík, J. Masilko, O. Brüggemann, M. Weiter, N. S. Sariciftci, J. Krajcovic, Y. Salinas, and A. Kovalenko, *Sci. Rep.* **10**, 15720 (2020).
18. S. A. Veldhuis, Y. K. E. Tay, A. Bruno, S. S. H. Dintakurti, S. Bhaumik, S. K. Muduli, M. Li, N. Mathews, T. C. Sum, and S. G. Mhaisalkar, *Nano Lett.* **17**, 7424 (2017).
19. J. Huang, Y.-H. Wu, Z.-G. Zhu, W. Y. Shih, and W.-H. Shih, *Chem. Phys. Lett.* **702**, 21 (2018).
20. K. S. Sekerbayev, Y. T. Taurbayev, T. Yu. Bazylenko, T. I. Taurbayev, and V. Yu. Timoshenko, *Tech. Phys. Lett.* **43**, 5 (2017).
21. K. S. Sekerbayev, Y. T. Taurbayev, I. N. Saraeva, S. I. Kudryashov, A. A. Ionin, and V. Yu. Timoshenko, *JETP Lett.* **110**, 9 (2019).
22. A. S. Berestennikov, Y. Li, I. V. Iorsh, A. A. Zakhidov, A. L. Rogach, and S. V. Makarov, *Nanoscale* **11**, 6747 (2019).
23. E. Y. Tiguntseva, G. P. Zograf, F. E. Komissarenko, D. A. Zuev, A. A. Zakhidov, S. V. Makarov, and Yu. S. Kivshar, *Nano Lett.* **18**, 1185 (2018).
24. E. Y. Tiguntseva, D. G. Baranov, A. P. Pushkarev, B. Munkhbat, F. Komissarenko, M. Franckevičius, A. A. Zakhidov, T. Shegai, Yu. S. Kivshar, and S. V. Makarov, *Nano Lett.* **18**, 5522 (2018).
25. L. V. Keldysh, *Phys. Stat. Sol. (a)* **164**, 3 (1997).
26. P. Tyagi, S. M. Arveson, and W. A. Tisdale, *J. Phys. Chem. Lett.* **6**, 1911 (2015).
27. T. Takagahara, *J. Lum.* **70**, 129 (1996).
28. D. Kovalev, H. Heckler, G. Polisski, and F. Koch, *Phys. Stat. Sol. B* **215**, 871 (1999).
29. K. Nakada, Y. Matsumoto, Y. Shimoi, K. Yamada, and Y. Furukawa, *Molecules* **24**, 626 (2019).

Лазерная микроскопия рассеивающих сред на основе регуляризируемого минимально диффузного восстановления изображений

М. С. Почечуев⁺, И. В. Федотов⁺⁺, Е. А. Степанов⁺, М. С. Андреева⁺, А. Б. Федотов⁺⁺, А. М. Желтиков^{++*1)}

⁺ Физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия

⁺⁺ Российский квантовый центр, 143025 Сколково, Россия

^{*} Department of Physics and Astronomy, Texas A&M University, College Station TX 77843, USA

Поступила в редакцию 20 сентября 2021 г.

После переработки 21 сентября 2021 г.

Принята к публикации 21 сентября 2021 г.

Представлена физическая реализация регуляризируемого по Тихонову решения обратной задачи рассеяния с использованием подстраиваемого непосредственно по ходу эксперимента базиса спеклов, обеспечивающего минимизацию обусловленной процедурой регуляризации диффузии изображений. На этой основе реализуется устойчивое, минимально диффузное восстановление изображений в схеме микроскопии рассеивающих сред с субмикронным пространственным разрешением.

DOI: 10.31857/S1234567821200039

Рассеяние является ключевым фактором, ограничивающим использование оптических методов для решения широкого класса задач, связанных с дистанционным зондированием атмосферы, астрономическими наблюдениями, исследованием фундаментальных физических процессов в твердом теле, диагностикой плазмы, микроскопией биологических систем, лазерной биомедициной, а также оптической кардио- и нейростимуляцией [1–6]. Разработанные в последние годы новые подходы в оптике рассеивающих сред, основанные на использовании методов статистической оптики, оптики сверхкоротких импульсов, нелинейной оптики и адаптивной оптики, позволяют значительно продвинуться в решении задач этого класса [7–10]. Ввиду того, что применимость методов прямого переноса изображений в условиях сильно рассеивающих сред оказывается ограниченной, многие из активно развиваемых в последние годы подходов обращаются, в том или ином виде, к восстановлению изображений путем решения обратной задачи рассеяния [8, 11–13]. Трудности, возникающие при практической реализации таких подходов, носят фундаментальный характер и обусловлены тем, что обратная задача рассеяния относится к классу некорректно поставленных [14].

Целью настоящей работы является физическая реализация регуляризируемого по Тихонову реше-

ния обратной задачи рассеяния с использованием адаптивно настраиваемого базиса спеклов как основа для лазерной микроскопии рассеивающих сред, обеспечивающей устойчивое восстановление изображений микрообъектов на фоне картины рассеяния с субмикронным пространственным разрешением. Ключевые идеи нашего эксперимента иллюстрируются на рис. 1 и 2. В качестве источника излучения используется непрерывный лазер на основе кристалла Nd:YAG с диодной накачкой и удвоением частоты. Излучение с длиной волны 532 нм мощностью 5 мВт, генерируемое этим лазерным источником, фокусируется с помощью сканирующей линзы (SL на рис. 1) объектива микроскопа с увеличением 10 $\times$ и числовой апертурой 0.25 (МО1 на рис. 1) для широкопольного освещения поверхности рассеивающей пластины, изготовленной из матового стекла (D на рис. 1). Изображение формируемой при этом спекл-картины с помощью аналогичного объектива (МО2 на рис. 1) из плоскости Σ (рис. 1) на ПЗС-камеру, установленную в плоскости Σ' , для анализа распределения интенсивности светового поля $a_i(x, y)$ этой картины. В плоскости Σ затем размещается прозрачный слайд, на который нанесены микрокристаллы алмаза с NV-центрами окраски (рис. 1, 2), а ПЗС-камера располагается в плоскости Σ' , оптически сопряженной с плоскостью Σ 4f-системой L–МО2 (рис. 1). Возбуждение NV-центров лазерным излучением с длиной волны 532 нм вызывает излу-

¹⁾ e-mail: zheltikov@physics.msu.ru

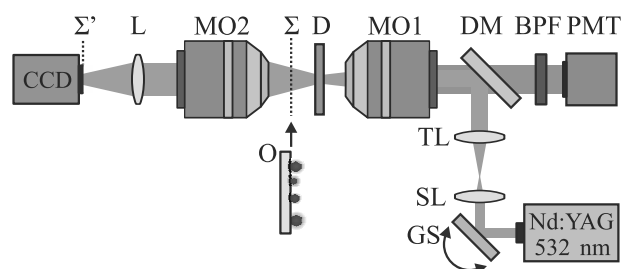


Рис. 1. (Цветной онлайн) Лазерная микроскопия рассеивающих сред на основе регулируемого минимально диффузного восстановления изображений: Nd:YAG 532 нм – непрерывный лазер накачки на основе кристалла Nd:YAG с диодной накачкой и удвоением частоты; GS – гальваносканер; SL – сканирующая линза; TL – тубусная линза; DM – дихроичное зеркало; BPF – полосовой фильтр; PMT – фотоэлектронный умножитель; MO1, MO2 – микроскопные объективы; D – рассеивающая пластина; Σ – плоскость образца и изображения; L – линза; Σ' – плоскость, оптически сопряженная с Σ 4f-системой L-MO2, и находящаяся на матрице ПЗС-камеры

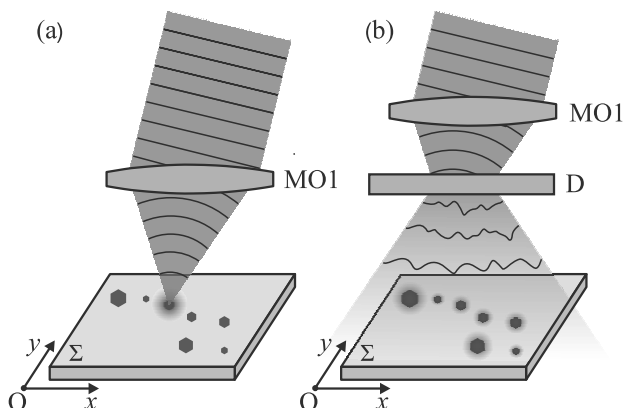


Рис. 2. (Цветной онлайн) Лазерная микроскопия на основе прямого переноса изображений (a) и на основе анализа изображения на фоне картины рассеяния (b)

чение, максимум спектра которого, соответствующий фоновому крылу NV-дефекта в решетке алмаза [15, 16], приходится на длину волны 670 нм (рис. 3).

На рисунке 4а представлено изображение области размером 10×10 мкм на поверхности предметного стекла с нанесенными микрокристаллами алмаза, полученное методом прямого переноса изображения предметной плоскости на видеокамеру (рис. 1) без внесения в лазерный луч матового стекла или иных рассеивающих элементов (рис. 1). В условиях сильного рассеяния, моделируемого в наших экспериментах внесением в лазерный луч матового стекла D (рис. 1, 2), получение изображения системы люминесцентных микрочастиц с помощью прямых мето-

дов микроскопии оказывается невозможным, так как изображение не может быть выделено на фоне картины рассеяния. Возникает необходимость восстановления изображения на основе решения обратной задачи рассеяния.

В реализованной нами экспериментальной схеме эта задача решается путем освещения системы люминесцентных микрокристаллов полем спеклов (рис. 1, 2), формируемым рассеивающим элементом (матовое стекло D, рис. 1), и регистрации интегрального сигнала люминесценции фотоприемником PMT, установленным за плоскостью Σ (рис. 1). Новые схемы лазерной микроскопии, основанные на использовании структурированных световых пучков и лазерных спеклов, активно развиваются в последние годы [17–19]. В схеме микроскопии, реализованной в наших экспериментах, система люминесцентных микрокристаллов алмаза с распределением $\rho(x, y)$, освещаемая полем спеклов с распределением интенсивности $a_i(x, y)$, приводит к интегральному сигналу люминесценции $b_i = \int_{\Sigma} a_i(x, y) \rho(x, y) dx dy$. Полагая, что каждый из микрокристаллов алмаза, центры окраски которого возбуждаются лазерным излучением, может быть приближенно описан как точечный излучатель, представим пространственное распределение люминесцентных центров в виде $\rho(x, y) = \sum_{j=1}^M \rho_j \delta(x - x_j, y - y_j)$, где (x_j, y_j) – координаты j -го излучающего микрокристалла в плоскости Σ . Выражение для интегрального сигнала люминесценции при этом принимает вид $b_i = \sum_{j=1}^N \rho_j a_{ij}$, где $a_{ij} = a_j(x_i, y_i)$.

Изменяя угол наклона лазерного излучения относительно поверхности матового стекла с помощью автоматически управляемой быстрой гальванометрической сканирующей системы, встроенной в схему конфокальной микроскопии (рис. 1), получаем новую спекл-картину с распределением интенсивности $a_k(x, y)$. Используя эту спекл-картину для освещения той же системы алмазов с NV-центров, получаем интегральный сигнал люминесценции $b_k = \sum_{j=1}^N \rho_j a_{kj}$, где $a_{kj} = a_j(x_k, y_k)$. Имея N спекл-картин, каждая из которых имеет свое распределение интенсивности $a_i(x, y)$, $i = 1, \dots, N$, и используя их для освещения системы алмазов с NV-центрами с распределением $\rho(x, y)$, получаем вектор $\mathbf{B} = \{b_1, \dots, b_N\}$, i -ая составляющая которого является интегральным сигналом люминесценции системы NV-центров, освещаемой i -й спекл-картиной.

Если бы все распределения интенсивности $a_{ij} = a_j(x_i, y_i)$ были известны точно, то распределение люминесцентных центров в плоскости Σ , $\rho =$

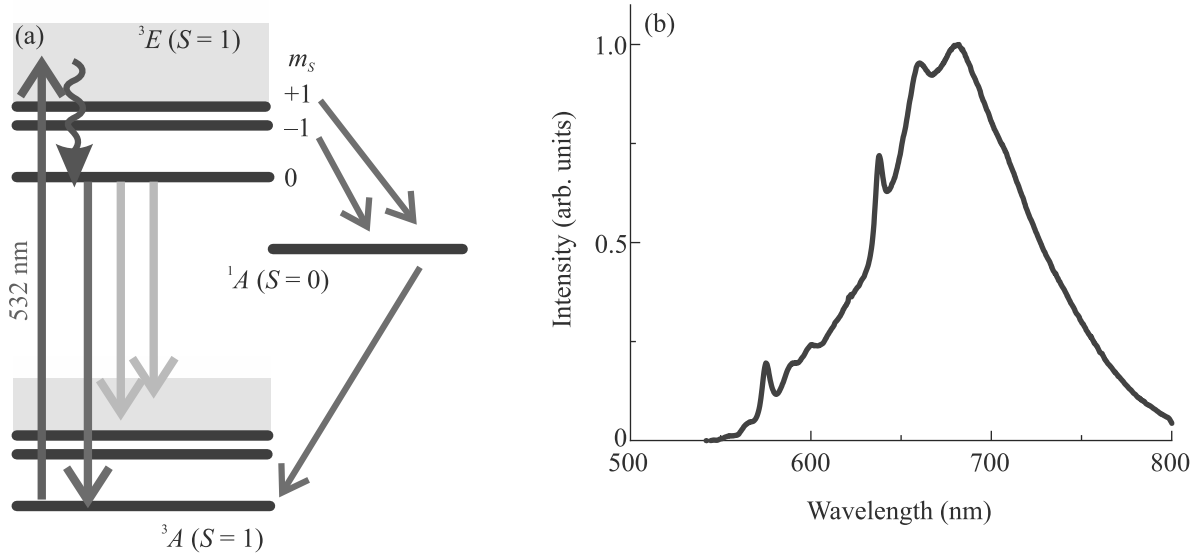


Рис. 3. (Цветной онлайн) Схема возбуждения (а) и спектр излучения (б) NV-центров в алмазе

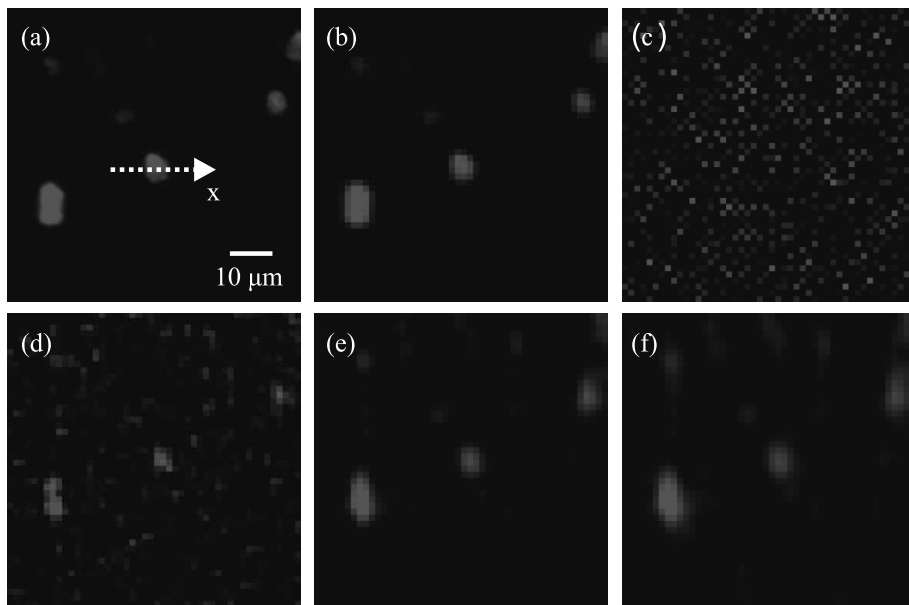


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Изображение системы люминесцентных микрочастиц алмаза, полученное путем прямого переноса и (б) его пикселированный вариант с общим числом пикселей, равным $N_x * N_y = 50 * 50 = 2500$. Изображения системы люминесцентных микрочастиц алмаза, восстановленные путем решения обратной задачи с параметром регуляризации $\alpha = 0$ (с), 1 (d), 5 (e), 10 (f)

$= \{\rho_1, \dots, \rho_N\}$, можно было бы найти путем решения системы линейных уравнений $A\rho = B$, где A – матрица, элементами которой являются интенсивности a_{ij} . Однако, так как вместо матрицы A точных значений интенсивности известна лишь матрица $\mathcal{A}$, элементами которой являются приближенные значения a_{ij} , решение уравнения $A\rho = B$ оказывается некорректно поставленной задачей.

Регуляризация решения этой задачи может быть выполнена с помощью процедуры регуляризации Тихонова [20], т.е. путем минимизации функционала $G_\alpha = \|A\rho - B\|^2 + \alpha\|L\rho\|^2$, где α – параметр регуляризации, L – регуляризирующая матрица. Регуляризованное решение ρ_α может быть найдено из соответствующего функционалу G_α уравнения Эйлера–Лагранжа [14, 21, 22] $(\mathcal{A}^* \mathcal{A} + \alpha L^* L)\rho_\alpha = \mathcal{A}^* B$. В опе-

раторной форме $\mathcal{A}$ и L в выражении для G_α понимаются как операторы, действующие в гильбертовом пространстве ρ . На практике, однако, компоненты вектора $\mathbf{B}$ также неизвестны. Вместо них известны лишь их приближенные значения, образующие вектор $\mathbf{B}$, так что $\|\mathbf{B} - \mathbf{B}\| \leq \sigma$. В реализованной нами экспериментальной схеме компонентами вектора $\mathbf{B}$ являются интегральные значения интенсивности, измеренные с конечной точностью с помощью различных спекл-картин. Обобщение процедуры регуляризации Тихонова на этот случай приводит к уравнению [21, 22] $(\mathcal{A}^* \mathcal{A} + \alpha L^* L) \rho_\alpha^\rho = \mathcal{A}^* \mathbf{B}$. Искомый вектор ρ_α^ρ при этом оказывается зависящим как от погрешности измерения σ , так и от выбора параметра регуляризации α .

В условиях микроскопии рассеивающих сред, когда устойчивости решения обратной задачи необходимо достичь при минимальных возможных потерях пространственного разрешения, выбор параметра регуляризации α оказывается непростой задачей. При слишком малых α изображения оказываются сильно зашумленными. В некоторых достаточно обширных областях, меняющихся по условиям экспериментов параметров, восстановление изображения при этом может терять устойчивость. При слишком больших значениях α операция фильтра $(\mathcal{A}^* \mathcal{A} + \alpha L^* L)^{-1} \mathcal{A}^* \mathbf{B} = \rho_\alpha^\rho$ приводит к потере важных пространственных деталей изображений, размытию границ, неприемлемому ухудшению пространственного разрешения. Все эти эффекты, приводящие к потере качества изображения, отражают диффузионный характер преобразования $\rho(x, y)$, диктуемый процедурой регуляризации решения обратной задачи [14, 22]. Для частного случая регуляризации по Тихонову регуляризованное решение обратной задачи рассеяния может быть описано изотропным уравнением диффузии [22] с коэффициентом диффузии, пропорциональным параметру регуляризации α .

Теория регуляризации решения обратной задачи рассеяния не предлагает удовлетворительных с точки зрения микроскопии рассеивающих сред рецептов выбора параметра регуляризации α по наперед заданному значению погрешности измерения σ . Наилучшим решением на практике является выбор α непосредственно в процессе эксперимента на основе одного из апостериорных критериев [21]. Примером такого подхода является широко используемый в практике машинного восстановления изображений метод апостериорного выбора параметра регуляризации α на основе критерия Морозова [23], который для случая $L = I$, где I – оператор тождественного преобразования, представляемый единичной матри-

цей, имеет вид $\|\mathcal{A} \rho_\alpha^\sigma - \mathbf{B}\| = \sigma$. Оптимальный выбор параметра регуляризации α , таким образом, может быть осуществлен лишь на основе уже имеющегося массива экспериментальных данных, позволяющего определить матрицу оператора $\mathcal{A}$ и вектор $\mathbf{B}$.

Ключевое преимущество реализованной в данной работе схеме микроскопии заключается в обеспечиваемой автоматической системой гальванометрического сканирования (рис. 1, 2) возможности быстрой подстройки размерности N базиса спеклов, используемого для восстановления распределения люминесцентных центров $\rho(x, y)$ в предметной плоскости. Возможность подстройки N непосредственно по ходу эксперимента позволяет за счет некоторого увеличения времени восстановления изображения уменьшить погрешность измерения σ , которая при больших N оказывается пропорциональной $1/N^{1/2}$. При меньших погрешностях измерения σ снижаются требования к параметру регуляризации α , который может быть при этом уменьшен без потери устойчивости процедуры восстановления изображения. Уменьшение α , в свою очередь, приводит к уменьшению диффузии изображения в процессе регуляризации.

На рисунках 4с–f представлены изображения системы люминесцентных микрочастиц алмаза, восстановленные путем решения обратной задачи. Размерность базиса спеклов для этих измерений, $N = 2500$, выбрана на основе анализа обширного массива восстановленных изображений. Цель этого анализа заключалась в выяснении баланса между устойчивостью процедуры восстановления изображения на фоне картины рассеяния с одной стороны и степенью диффузии изображения в процессе регуляризации, приводящей к потере пространственного разрешения и размытию границ изображений с другой стороны.

На рисунке 4с представлен результат нерегуляризованного решения обратной задачи рассеяния ($\alpha = 0$) для характерного массива данных, позволяющего определить матрицу оператора $\mathcal{A}$ и вектор $\mathbf{B}$ для реализованной схемы микроскопии. Как видно из рис. 4с, в отсутствие регуляризации решение полностью теряет устойчивость.

На рисунке 4d приведено изображение системы люминесцентных микрокристаллов алмаза, полученное путем решения обратной задачи рассеяния с параметром регуляризации $\alpha = 1$. Изображение этой же системы микрокристаллов, полученное в схеме прямого переноса изображения без внесения в лазерный луч рассеивающей пластины (рис. 2а), представлено на рис. 4а. Для корректности сравнения результатов, получаемых методом прямого переноса изображения и изображений, восстанавлива-

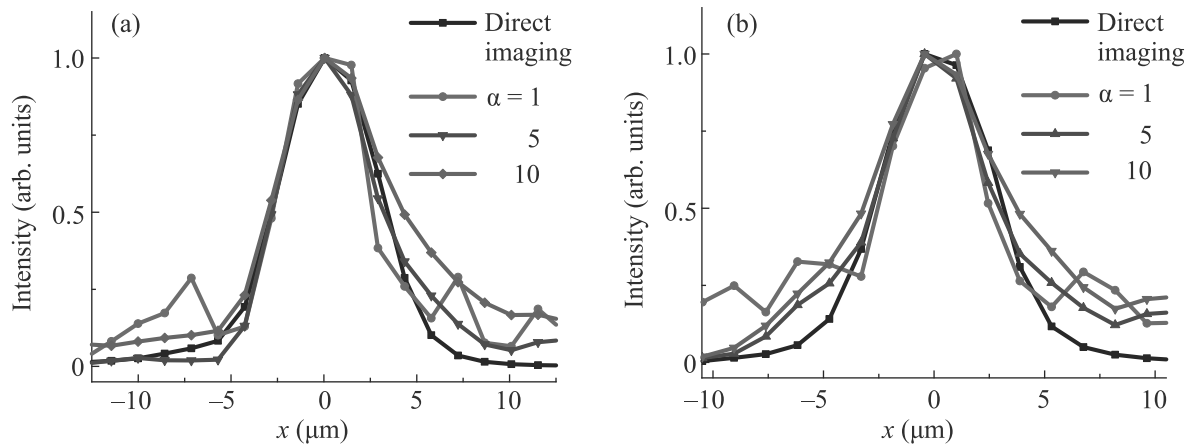


Рис. 5. (Цветной онлайн) Профили интенсивности на изображениях микроалмазов 1 (а) и 2 (б), построенные вдоль оси, показанной на рис. 4а. Изображения восстановлены путем решения обратной задачи с параметром регуляризации $\alpha = 1$ (красная линия), 5 (синяя линия), 10 (зеленая линия). Черная линия соответствует изображениям, полученным прямым методом

емых на основе решения обратной задачи рассеяния, на рис. 4b приведено пикселированное изображение этой же группы микрокристаллов алмаза, полученное в схеме прямого переноса изображения (рис. 2а). Количество пикселей на этом изображении, $N_x * N_y = 50 * 50 = 2500$, выбрано равным числу независимых спекл-картин, $N = 2500$, используемых в качестве базиса для восстановления изображений на фоне рассеяния (рис. 4с–f).

Как показывает сравнение рис. 4b и d, регуляризация с параметром $\alpha = 1$ оказывается недостаточной для адекватного подавления шумов. Уровень зашумленности получаемых в результате такой регуляризации изображений оказываются настолько высоким, что различить на этих изображениях можно лишь наиболее интенсивные из люминесцентных микрокристаллов. Увеличение параметра регуляризации до $\alpha = 10$ (рис. 4f) позволяет полностью подавить шумы. При этом оказывается возможным надежно зарегистрировать большое число люминесцентных микрокристаллов, которые хорошо различимы и на изображениях, полученных прямыми методами (рис. 4а, b) и которые были полностью скрыты за шумами на изображениях, восстановленных с параметром регуляризации $\alpha = 1$.

Сравнение рис. 4b и f, а также рис. 5а, b позволяет выявить характерные проявления обусловленной процедурой регуляризации диффузии изображений – значительную потерю пространственного разрешения и сильное размытие границ микрокристаллов на изображении, полученном путем решения обратной задачи. Уменьшение параметра регуляризации до $\alpha = 5$ позволяет существенно ослабить про-

явления диффузии изображений без потери устойчивости решения. Восстановленные на основе анализа картины рассеяния изображения люминесцентных микрокристаллов при этом оказываются практически идентичными изображениям, получаемыми прямыми методами (рис. 4b).

Таким образом, реализованная в настоящей работе экспериментальная схема регуляризируемого по Тихонову решения обратной задачи рассеяния представляет собой мощный ресурс лазерной микроскопии рассеивающих сред. Разработанная методика обеспечивает возможность быстрой автоматической подстройки размерности спекл-базиса для минимизации, обусловленной процедурой регуляризации диффузии изображений. На этой основе реализуется устойчивое, минимально диффузное восстановление изображений в схеме микроскопии рассеивающих сред с субмикронным пространственным разрешением.

Исследование выполнено при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты 19-02-00473, 18-29-20031, 19-29-12062), Российского научного фонда (проект 20-12-00088), а также Министерства науки и высшего образования РФ (госконтракт 075-15-2020-801 от 9 октября 2020).

1. A. Ishimaru, *Wave Propagation and Scattering in Random Media*, Academic, N.Y. (1978).
2. S. Chandrasekhar, *Radiative Transfer*, Dover, N.Y. (1960).
3. L. V. Doronina-Amitonova, I. V. Fedotov, A. B. Fedotov, K. V. Anokhin, and A. M. Zheltikov, *Phys.-Uspekhi* **58**, 345 (2015).

4. M.S. Pochechuev, M.A. Solotenkov, I.V. Fedotov, O.I. Ivashkina, K.V. Anokhin, and A.M. Zheltikov, *J. Biophotonics* **13**, e202000081 (2020).
5. Y.G. Ermakova, A.A. Lanin, I.V. Fedotov et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **8**, 15362 (2017).
6. А. В. Митрофанов, Д. А. Сидоров-Бирюков, А. А. Воронин, М. В. Рожко, П. Б. Глек, М. М. Назаров, Е. Е. Серебрянников, А. Б. Федотов, А. М. Желтиков, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 304 (2021).
7. S. Popoff, G. Lerosey, M. Fink, A. Boccarda, and S. Gigan, *Nat. Commun.* **1**, 81 (2010).
8. A. Mosk, A. Lagendijk, G. Lerosey, and M. Fink, *Nat. Photon* **6**, 283 (2012).
9. C. Moretti and S. Gigan, *Nature Photonics* **14**, 361 (2020).
10. D. Bouchet, S. Rotter, and A.P. Mosk, *Nature Phys.* **17**, 564 (2021).
11. G. Lerosey, J. de Rosny, A. Tourin, A. Derode, G. Montaldo, and M. Fink, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 193904 (2004).
12. Z. Yaqoob, D. Psaltis, M.S. Feld, and C. Yang, *Nature Photon.* **2**, 110 (2008).
13. M. Pascucci, S. Ganesan, A. Tripathi, O. Katz, V. Emiliani, and M. Guillon, *Nat. Commun.* **10**, 1327 (2019).
14. А. Н. Тихонов, В. Я. Арсенин, *Методы решения некорректных задач*, Наука, М. (1979).
15. M.W. Doherty, N.B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and L. C. L. Hollenberg, *Phys. Rep.* **528**, 1 (2013).
16. М. А. Смирнов, М. М. Миннегалиев, И. В. Федотов, С. А. Моисеев, А. М. Желтиков, *Письма ЖЭТФ* **113**, 3 (2021).
17. D. Li, L. Shao, B.-C. Chen, X. Zhang, M. Zhang, B. Moses, D.E. Milkie, J.R. Beach, J. A. Hammer III, M. Pasham, T. Kirchhausen, M.A. Baird, M.W. Davidson, P. Xu, and E. Betzig, *Science* **349**, aab3500 (2015).
18. Y. Wu and H. Shroff, *Nat. Methods* **15**, 1011 (2018).
19. A. Classen, X. Liu, A. M. Zheltikov, and G.S. Agarwal, *Opt. Lett.* **46**, 1554 (2021).
20. А. Н. Тихонов, *Докл. АН СССР* **151**, 501 (1963).
21. M. T. Nair, M. Hegland, and R. A. Anderssen, *Math. Comput.* **66**, 193 (1997).
22. G. W. Groetsch, *The Theory of Tikhonov Regularization for Fredholm Equations*, Pitman, Boston (1984).
23. В. А. Морозов, *Докл. АН СССР* **175**, 1225 (1967).

Резонансное усиление поперечного магнитооптического эффекта в плазмонных гетероструктурах опал/кобальт/серебро

И. А. Колмычек⁺¹⁾, А. М. Ромашкина⁺, А. И. Майдыковский⁺, С. А. Гусев*, Н. С. Гусев*,
М. С. Сапожников^{*×}, В. Г. Голубев[°], Т. В. Мурзина⁺

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

^{*} Институт физики микроструктур РАН, 603950 Н. Новгород, Россия

[×] Государственный университет им. Н. И. Лобачевского, 603022 Н. Новгород, Россия

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

Поступила в редакцию 20 сентября 2021 г.

После переработки 22 сентября 2021 г.

Принята к публикации 22 сентября 2021 г.

Исследованы магнитооптические эффекты в металл-диэлектрических наноструктурированных материалах на основе пленок опала, покрытых тонкой пленкой кобальт/серебро, поверхность которых представляет собой плотноупакованные гексагональные решетки металлических нанополусфер и нанотверстий. Экспериментально и теоретически показано, что в такой системе возбуждается широкий спектр мод бегущих поверхностных плазмон-поляритонов, что приводит к резонансному усилению магнитооптического эффекта в геометрии Войта.

DOI: 10.31857/S1234567821200040

Формирование нанообъектов различного дизайна и исследование их оптических свойств является актуальной и важной с точки зрения возможных применений задачей. Фундаментальный интерес представляет изучение механизмов взаимодействия света с нано- и микроструктурами, тогда как поиск инновационных методов управления параметрами света (интенсивностью, поляризацией, фазой) перспективен для широкого круга приложений. Плазмонные структуры играют важную роль в задачах нанофотоники вследствие реализации в них специфических амплитудно-частотной и фазо-частотной характеристик при взаимодействии с внешним электромагнитным полем и, как следствие, особых оптических свойств, не свойственных естественным материалам [1]. Поверхностные плазмон-поляритоны (ППП) – поверхностные волны, распространяющиеся вдоль границы раздела металла и диэлектрика или вакуума [2–4]. Возбуждение ППП приводит к резонансному усилению амплитуды электромагнитного поля в субволновой окрестности поверхности металла, что перспективно как для создания сенсоров [5, 6], так и для усиления оптических [7–10] и нелинейно-оптических эффектов [11]. Длина волнового вектора ППП, определяемая диэлектрически-

ми проницаемостями граничащих материалов, превышает величину волнового вектора световой волны в свободном пространстве, поэтому излучение, падающее на гладкую металлическую поверхность, не может напрямую возбудить плазмон-поляритон и необходимо использовать специальные оптические схемы, например, призмные (Кречмана, Отто). Однако периодическое структурирование металлической пленки позволяет возбуждать ППП за счет дифракции на ней падающего света; в этом случае условие квазисинхронизма (закон сохранения импульса) может быть выполнено за счет передачи части импульса в периодическую решетку [2, 12]. Этот подход привлекателен тем, что варьированием периода плазмонной решетки возможно подобрать положение ППП под требуемый спектральный диапазон.

Особый интерес представляют магнито-плазмонные структуры, в которых дисперсионными характеристиками ППП можно управлять за счет магнитного поля, модифицирующего оптический отклик среды [13–16]. Усиление магнитооптических эффектов вследствие возбуждения плазмон-поляритонов наблюдалось в 1D и 2D-периодических решетках различного дизайна [17–19], изготовленных методами литографии. В то же время, перспективным представляется использование альтернативных, более простых

¹⁾ e-mail: irisha@shg.ru

в реализации методов формирования высококачественных пространственно-периодических плазмонных структур для возбуждения ППП. Один из них состоит в напылении металла на поверхность коллоидного кристалла ПММА [20, 21] или искусственного опала [22]. Такая структура характеризуется периодическим поверхностным профилем металла с массивом отверстий, также образующих гексагональную решетку с периодом, пропорциональным размеру монодисперсных кремнеземных частиц, формирующих опаловую матрицу. Несомненными преимуществами такой метаповерхности является аномально высокое пропускание, обусловленное оптическим возбуждением ППП [23–26], а также возможность одновременной демонстрации фотоннокристаллических и плазмонных свойств [27, 28]. Если на поверхность опала или другого коллоидного кристалла нанести ферромагнитный металл, то такая структура будет демонстрировать магнитооптические свойства, наиболее ярко выраженные в спектральной окрестности ППП [29–31]. Минус такого подхода связан с относительной малой величиной добротности резонанса ППП в случае ферромагнитных металлов. Традиционное решение проблемы, а именно, сочетание в одной структуре ферромагнетика для гиротропии и благородного металла (золота или серебра) для возбуждения добротного резонанса, демонстрирует свою эффективность в магнитолазмонных структурах различного дизайна [32–34], однако до настоящего времени не было реализовано для композитных структур опал + металл. В данной работе впервые исследованы оптические и магнитооптические свойства структуры опал/кобальт/серебро и проанализирована роль поверхностных плазмон-поляритонов в формировании наблюдаемых эффектов.

Высокоупорядоченные пленки опала синтезировались методом жидкофазной коллоидной эпитаксии из водных и водно-спиртовых суспензий монодисперсных сферических частиц аморфного кремнезема [35, 36]. В качестве подложек использовались полированные с двух сторон пластинки плавленого кварца толщиной 0.5 мм. Частицы имели диаметр 520 нм, а среднеквадратическое отклонение их размеров не превышало 4 %. Толщины пленок составляли 10–15 монослоев плотноупакованных сферических частиц. Плоскость (111) гранецентрированной кубической упаковки сфер была ориентирована параллельно подложке. Выращенные опаловые пленки выдерживали длительный нагрев до 800 °С без изменения фотонно-кристаллических свойств и рас-

трескивания. Затем на их поверхность методом магнетронного распыления был нанесен слой кобальта, эффективная толщина которого составила около $d_{\text{Co}} = 50$ нм, а затем – слой серебра с эффективной толщиной $d_{\text{Ag}} = 10$ нм (рис. 1а). Под эффективной здесь имеется в виду толщина пленки, осажденной в том же самом процессе напыления на плоской подложке. Для опала с развитым рельефом поверхности реальная средняя толщина слоя металла, покрывающего сферы SiO_2 , примерно вдвое меньше. Таким образом, частицы SiO_2 были с одной стороны покрыты металлом, и образец можно рассматривать как двумерный периодический гексагональный массив нанотверстий между полусферами.

Характеризация магнитных свойств структуры была проведена путем измерения гистерезиса меридионального магнитооптического эффекта Керра, результаты представлены в работе [28]. Обнаружено, что поле насыщения при намагничивании в плоскости пленки составляет около 500 Гс, а при выключении внешнего магнитного поля наблюдается вихревое состояние намагниченности полусфер.

Оптические частотно-угловые спектры пропускания и отражения образца были измерены с использованием коллимированного пучка галогеновой лампы в качестве зондирующего излучения. Образец был помещен на гониометр, обеспечивающий точность определения угла падения около 1°. Прошедший (отраженный) через структуру свет детектировался спектрометром с разрешающей способностью около 1 нм. Магнитооптические измерения были проведены для внешнего поперечного магнитного поля с напряженностью около 1.5 кГс, которое является насыщающим в плоскости пленки для исследуемых структур (рис. 1а). Характеристикой эффекта является магнитный контраст, вычисляемый по формуле: $\rho(\theta, \lambda) = \frac{T_+(\theta, \lambda) - T_-(\theta, \lambda)}{T_+(\theta, \lambda) + T_-(\theta, \lambda)}$, где $T_+(\theta, \lambda)$ и $T_-(\theta, \lambda)$ – коэффициенты пропускания образца при противоположных направлениях внешнего магнитного поля. Эксперименты были проведены для двух азимутальных ориентаций образца относительно плоскости падения xOz – когда проекция волнового вектора на структуру $\mathbf{k}_x$ лежит вдоль одного из векторов обратной решетки $\mathbf{G}_1$ и $\mathbf{G}_2$ (рис. 1b) и вдоль биссектрисы угла между ними (рис. 2a).

Полученные частотно-угловые спектры пропускания представлены на рис. 1с, d и 2b, c. Все они демонстрируют максимум на длине волны около 680 нм при нормальном падении света на структуру. Спектры, измеренные для p -поляризованного излучения накачки, имеют V-образную форму области высокого пропускания, причем угол наклона “ветвей”

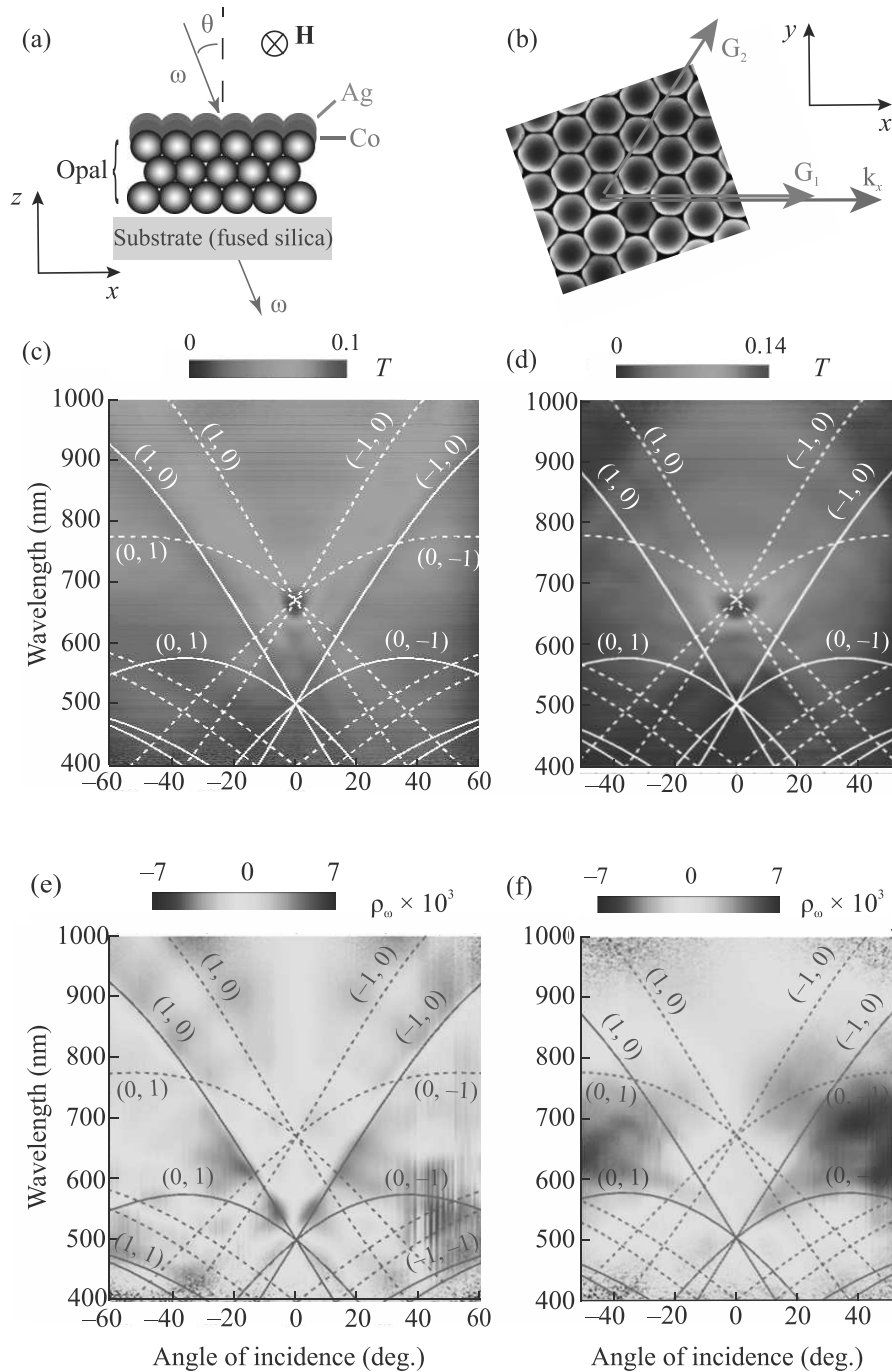


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Схема гетероструктуры и ход луча при исследовании ее магнитооптического отклика в геометрии Войта; (b) – азимутальное положение структуры относительно плоскости падения xOz , магнитное поле приложено вдоль оси Oy ; (c), (d) – частотно-угловые спектры пропускания при p - и s -поляризованном излучении накачки, соответственно; (e), (f) – частотно-угловые спектры магнитного контраста при p - и s -поляризованном излучении накачки соответственно

меняется при азимутальном повороте образца (см. рис. 1с и 2b), что будет обсуждено ниже. При s -поляризованном излучении накачки ярко выражен только максимум при $\theta = 0^\circ$.

В спектре отражения наблюдается область максимального значения коэффициента $R(\theta, \lambda)$ вблизи длин волн 600–800 нм, для которых коэффициент отражения достигает значения 0.15 (рис. 2d).

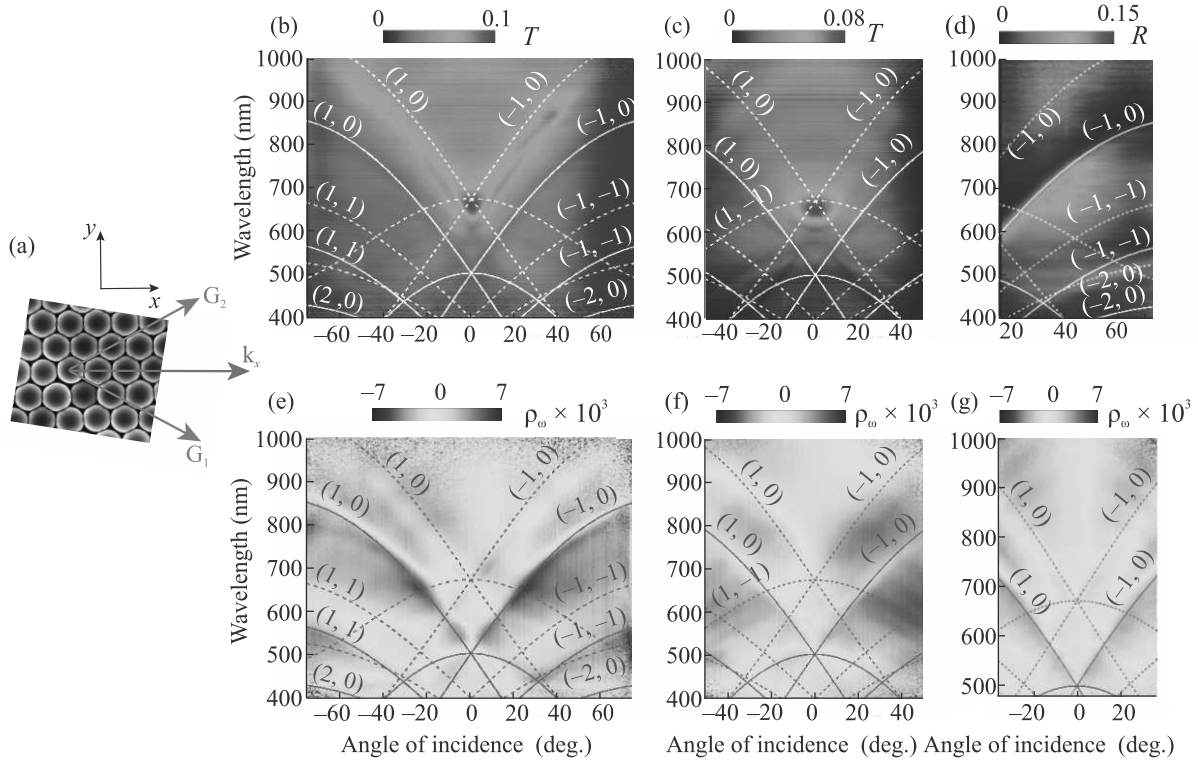


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Азимутальное положение структуры относительно плоскости падения xOz , магнитное поле приложено вдоль оси Oy ; (b), (c) – частотно-угловые спектры пропускания гетероструктуры опал/кобальт/серебро при p - и s -поляризованном излучении накачки, соответственно; (d) – частотно-угловой спектр отражения, p -поляризованное излучение накачки; (e), (f) – частотно-угловые спектры магнитного контраста при p - и s -поляризованном излучении накачки, соответственно; (g) – спектр магнитного контраста аналогичной структуры без серебра, p -поляризованное излучение накачки

Частотно-угловые спектры магнитного контраста (рис. 1e, f и 2e, f) демонстрируют сложное знакопеременное поведение, максимальная величина $\rho(\theta, \lambda)$ составляет $6.5 \cdot 10^{-3}$. Следует отметить, что $\rho(\theta, \lambda)$ является нечетной функцией угла падения (т.е. меняет знак при смене θ на $-\theta$), что характерно для магнитооптического эффекта в геометрии Войта [37].

Для расчетов дисперсионных кривых ППП была использована модель двумерной металлической решетки, граничащей с одной стороны с опалом, с другой – с воздухом. Закон сохранения импульса для волнового вектора ППП β в этом случае можно записать следующим образом [23]:

$$\beta = \mathbf{k}_x + m\mathbf{G}_1 + n\mathbf{G}_2, \quad (1)$$

где $\mathbf{k}_x$ – проекция волнового вектора на плоскость структуры, $|k_x| = k_x = k_0 \sin \theta$, $(m; n)$ – пара целых чисел, $|\mathbf{G}_1| = |\mathbf{G}_2| = G = \frac{4\pi}{\sqrt{3}d}$ – векторы обратной решетки для гексагонального массива с периодом d , оси координат указаны на рис. 1 а, б. Если проекция волнового вектора ориентирована вдоль одного из векторов обратной решетки (рис. 1b), т.е. $\mathbf{k}_x$

коллинеарен $\mathbf{G}_1$, то $\mathbf{G}_1 = G\mathbf{e}_x$, $\mathbf{G}_2 = G\mathbf{e}_x \cos(\pi/3) + G\mathbf{e}_y \sin(\pi/3)$ ($\mathbf{e}_x$ и $\mathbf{e}_y$ – орты вдоль соответствующих осей), а возведение в квадрат равенства (1) дает:

$$\beta^2 = \left(k_x + mG + \frac{nG}{2}\right)^2 + \left(\frac{nG\sqrt{3}}{2}\right)^2. \quad (2)$$

Если проекция плоскости падения ориентирована вдоль биссектрисы угла между векторами обратной решетки $\mathbf{G}_1$ и $\mathbf{G}_2$ (рис. 2a), то $\mathbf{G}_1 = G\mathbf{e}_x \cos(\pi/6) - G\mathbf{e}_y \sin(\pi/6)$, $\mathbf{G}_2 = G\mathbf{e}_x \cos(\pi/6) + G\mathbf{e}_y \sin(\pi/6)$, а возведение в квадрат равенства (1) дает:

$$\beta^2 = (k_x)^2 + G^2(m^2 + n^2 + mn) + \sqrt{3}Gk_x(m + n). \quad (3)$$

Таким образом, для различной ориентации плоскости падения зондирующего излучения относительно кристаллографических осей поверхностной металлической гексагональной решетки спектры ППП будут смещены друг относительно друга.

Толщины слоев металлов в наших образцах сравнимы с толщиной скин-слоя, т.е. с глубиной проникновения ППП, поэтому, строго говоря, Co/опал

и Ag/воздух не являются двумя независимыми интерфейсами [38]. Однако для упрощения расчетов будем рассматривать их по отдельности. Кроме того, поскольку реальная толщина пленки серебра на поверхности сфер опала составляет около 5 нм, то ей можно пренебречь и рассчитывать дисперсионные кривые для интерфейсов Co/опал и Co/воздух по формуле [12]:

$$\beta = k_0 \sqrt{\left| \frac{\epsilon_1 \epsilon_i}{\epsilon_1 + \epsilon_i} \right|}, \quad i = 2, 3, \quad (4)$$

где k_0 – модуль волнового вектора падающего света, ϵ_1 , ϵ_2 и ϵ_3 – диэлектрические проницаемости кобальта [39], опала [40] и воздуха соответственно. В зависимости от геометрии эксперимента, были взяты выражения (2) или (3) для β , подставлены в (4) и в пакете Wolfram Mathematica построены дисперсионные кривые для ППП (рис. 1, 2). Каждой паре целых чисел $(m; n)$ соответствуют два плазмона, возбуждаемые на границах раздела опал/Co (пунктирные кривые) и Co/воздух (сплошные кривые).

Положение узлов пучков дисперсионных кривых не зависит от азимутальной ориентации образца и определяется выражением $|\beta| = G\sqrt{m^2 + n^2 + mn}$ [20, 24]. Видно, что в исследуемой спектральной области есть два узла в окрестности длин волн 500 и 680 нм, и соответствующие таким наборам чисел $(m; n)$, что $\sqrt{m^2 + n^2 + mn} = 1$.

Сопоставляя экспериментальные и расчетные результаты, можно сделать вывод о том, что V-образные максимумы пропускания (рис. 1с и 2б) связаны с возбуждением ППП $(\pm 1; 0)$, что характерно для наноперфорированных структур [22, 24, 25]. Очевидно также, что спектральное положение максимумов $T(\theta, \lambda)$ при наклонном падении света на структуру существенно зависит от азимутальной ориентации образца, что соответствует формулам (2) и (3). Что касается величины пропускания в максимуме, она составляет $T_{abs} \sim 10\%$, а доля площади поверхности отверстий – $T_{eff} \sim 9\%$ (реально $T_{eff} < 9\%$ за счет “спекания” сфер диоксида кремния и зарастания отверстий металлом при напылении). Таким образом, можно говорить об аномальном пропускании, превышающем $T_{abs}/T_{eff} \sim 110\%$ [41]. Сопоставим экспериментальные спектры с аналогичными данными для образца без серебра [28]. Следует уточнить, что в работе [28] все спектры пропускания нормированы на сплошную пленку кобальта той же эффективной толщины. Для структуры с диаметром сфер 520 нм (образец “4” в работе [28]) максимальное относительное пропускание составляет около 4.5,

пропускание референсной сплошной пленки кобальта толщиной 52 нм – около 2% [39]. Следовательно, для структуры опал/кобальт абсолютное максимальное значение $T(\theta, \lambda) \sim 4.5 \cdot 2\% \sim 9\%$. Таким образом, можно сделать вывод, что ни спектральное положение максимумов пропускания не изменилось после напыления Ag, ни величина $T(\theta, \lambda)$ в спектральной окрестности ППП.

Усиление отражения в области длин волн 600–800 нм также связано с возбуждением ППП $(-1; 0)$ (рис. 2д). Аналогичный эффект наблюдался в серебряных пленках на опале в работе [27]. Также можно отметить слабое увеличение R вдоль дисперсионной кривой ППП $(-2; 0)$.

Магнитооптический отклик пленки в геометрии Войта возникает из-за разницы показателей преломления граничащих с ней сред, т.е. из-за разных коэффициентов отражения на верхней и нижней границах слоя кобальта [37]; в симметричной структуре этот эффект отсутствует. На частотно-угловых спектрах магнитного контраста наблюдается смена знака $\rho(\theta, \lambda)$ вдоль дисперсионных кривых ППП $(\pm 1; 0)$ (рис. 1е и 2е), что связано со спектральным сдвигом резонанса при приложении поперечного насыщающего магнитного поля, причем направление сдвига определяется направлением **H**. Связь спектрального поведения магнитного контраста с возбуждением ППП в коротковолновой области неочевидна из-за большого количества дисперсионных кривых в этом диапазоне.

Результат для $\rho(\theta, \lambda)$ (рис. 2е) следует также сравнить с данными для аналогичного образца без серебра (рис. 2г) в той же азимутальной ориентации. Качественно графики похожи, однако по величине магнитный контраст в образце с серебром в районе возбуждения ППП $(\pm 1; 0)$ примерно в 2 раза больше, чем в структуре без серебра. Более наглядно это показано на рис. 3, где представлены срезы рис. 2е и 2г при углах падения $\theta = \pm 25^\circ$. Максимум магнитного контраста $|\rho(\theta, \lambda)|$ достигается на длине волны около 650 нм и составляет по модулю $6 \cdot 10^{-3}$ для структуры опал/Co/Ag и $3 \cdot 10^{-3}$ для структуры опал/Co. Таким образом, присутствие в составе рассматриваемой гетероструктуры тонкой пленки серебра приводит к усилению магнитооптического отклика в 2 раза, при этом, как было отмечено выше, уменьшения пропускания структуры не наблюдается. Из-за сложной формы экспериментальных спектров $T(\theta, \lambda)$ невозможно напрямую оценить добротность наблюдаемых ППП, однако можно предположить, что наличие серебра приводит к возбуждению более высокодобротного резонанса, который участвует в формировании

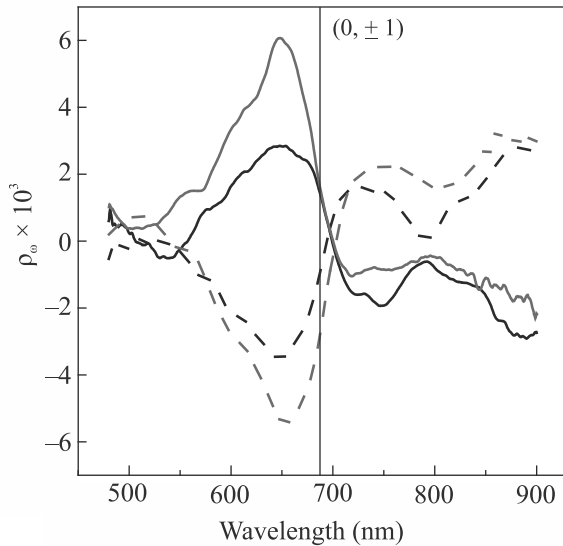


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры магнитного контраста образца опал/кобальт (черные линии) и опал/кобальт/серебро (красные линии), измеренные при p -поляризованном падающем излучении, при $\theta = 25^\circ$ (сплошные линии) и $\theta = -25^\circ$ (пунктирные линии). Серая линия соответствует спектральному положению ППП

и оптического (аномального пропускания), и магнитооптического отклика.

Что касается спектров, измеренных при s -поляризованном излучении накачки, то при ориентации волнового вектора вдоль $\mathbf{G}_1$ в силу граничных условий не возбуждаются ППП с $n = 0$, поэтому наиболее добротные ветви с $(\pm 1; 0)$ не проявлены ни в спектре $T(\theta, \lambda)$ (рис. 1d), ни в спектре $\rho(\theta, \lambda)$ (рис. 1f). Смена знака $\rho(\theta, \lambda)$ наблюдается вдоль кривой ППП $(0; \pm 1)$.

В случае, когда s -поляризованное излучение накачки падает так, что волновой вектор направлен вдоль вектора трансляции (рис. 2a), то наиболее заметно проявлены минимумы модуля магнитного контраста на ветвях $(\pm 1; 0)$ (сплошные линии на рис. 2f) без смены знака $\rho(\theta, \lambda)$. По-видимому, при этом происходит возбуждение двух близких по частоте ППП, распространяющихся под противоположными углами к $\mathbf{k}_x$ и, соответственно, проявляющих противоположные знаки магнитооптических эффектов. Следствием взаимодействия этих двух плазмонов, спектры магнитооптического эффекта которых различаются знаком, является наблюдающийся в эксперименте минимум модуля магнитного контраста.

Таким образом, разработан и изучен новый тип плазмонных структур опал/Co/Ag, не требующий использования методов литографии. В спектрах та-

ких структур обнаружены области, где наблюдается аномальное пропускание, превышающее 110 % и высокое отражение, обусловленные возбуждением ППП. При p -поляризованном излучении накачки наблюдается смена знака магнитного контраста в области резонансов, причем величина магнитного контраста $|\rho(\theta, \lambda)|$ достигает 0.65 %, что вдвое больше, чем в аналогичных структурах без серебра. В s -поляризованном зондирующем излучении обнаружен минимум магнитного контраста без смены знака в области резонансного возбуждения ППП. Выполненные исследования показывают, что возможна дальнейшая оптимизация плазмонных свойств гетероструктур на основе пленок опала, что позволяет рассматривать их как перспективные материалы нанопластики, способные управлять параметрами электромагнитного излучения путем изменения угла падения света, азимутальной ориентации взаимодействующей с ними структуры и приложения статического магнитного поля.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, грант # 19-72-20103, с использованием оборудования ЦКП "Физика и технология микро- и наноструктур". Разработка технологии получения термостойких опаловых пленок выполнена в рамках госзадания по теме 0040-2019-0012.

1. В. В. Климов, *Наноплазмоника*, ФИЗМАТЛИТ, М. (2009).
2. A. V. Zayats, I. I. Smolyaninov, and A. A. Maradudin, *Phys. Rep.* **408**, 131 (2005).
3. В. И. Альшиц, В. Н. Любимов, *Письма в ЖЭТФ* **112**(2), 127 (2020).
4. А. И. Якимов, А. А. Блошкин, А. В. Двуреченский, *Письма в ЖЭТФ* **110**(6), 393 (2019).
5. D. Jones, N. Liu, B. Corbett, P. Lovera, A. J. Quinn, and A. O'Riordan, *J. Phys. Conf. Ser.* **307**, 012005 (2011).
6. Z. Chen, P. Li, S. Zhang, Y. Chen, P. Liu, and H. Duan, *Nanotechnology* **30**, 335201 (2019).
7. S. Ushioda and Y. Sasaki, *Phys. Rev. B* **27**, 1401 (1983).
8. D. Q. Wang, X. L. Yu, and Q. M. Yu, *Nanotechnology* **23**, 405201 (2012).
9. V. Amendola, R. Pilot, M. Frascioni, O. M. Maragò, and M. A. Iatì, *J. Phys. Condens. Matter* **29**, 203002 (2017).
10. N. Maccaferri, I. Zubritskaya, I. Razdolski, I.-A. Chioar, V. Belotelov, V. Kapaklis, P. M. Oppeneer, and A. Dmitriev, *J. Appl. Phys.* **127**, 080903 (2020).
11. V. L. Krutyanskiy, A. L. Chekhov, V. A. Ketsko, A. I. Stognij, and T. V. Murzina, *Phys. Rev. B* **91**, 121411 (2015).
12. S. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*, Springer, Berlin/Heidelberg, Germany (2007).

13. V.I. Belotelov, D.A. Bykov, L.L. Doskolovich, A.N. Kalish, and A.K. Zvezdin, *J. Opt. Soc. Am B* **26** (8), 1594 (2009).
14. G. Armelles, A. Cebollada, A. Garcia-Martin, J.M. Garcia-Martin, M.U. Gonzales, J.B. Gonzalez-Diaz, E. Ferreira-Vila, and J.F. Torrado, *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **11**, 114023 (2009).
15. В.Б. Новиков, А.М. Ромашкина, Д.А. Езенкова, И.А. Родионов, К.Н. Афанасьев, А.В. Барышев, Т.В. Мурзина, *Оптика и спектроскопия* **128** (9), 1369 (2020).
16. S.A. Dyakov, I.M. Fradkin, N.A. Gippius, L. Klompmaker, F. Spitzer, E. Yalcin, I.A. Akimov, M. Bayer, D.A. Yavsin, S.I. Pavlov, A.B. Pevtsov, S.Y. Verbin, and S.G. Tikhodeev, *Phys. Rev. B* **100**, 214411 (2019).
17. Y.-Ch. Lan and Ch.-M. Chen, *Opt. Express* **18** (12), 12470 (2010).
18. G. Armelles, A. Cebollada, A. Garcia-Martin, and M.U. Gonzalez, *Adv. Opt. Mater.* **1**, 10 (2013).
19. А.А. Воронов, Д.О. Игнатъева, Д. Карки, М.А. Кожаяев, А.Н. Калиш, М. Леви, В.И. Белотелов, *Письма в ЖЭТФ* **112**(11), 759 (2020).
20. L. Landstrom, D. Brodoceanu, K. Piglmayer, and D. Bauerle, *Appl. Phys. A* **84**, 373 (2006).
21. C. Farcau and S. Astilean, *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **9**, S345 (2007).
22. S.G. Romanov, A.V. Korovin, A. Regensburger, and U. Peschel, *Adv. Mater.* **23**, 2515 (2011).
23. T.W. Ebbesen, H.J. Lezec, H.F. Ghaemi, T. Thio, and P.A. Wolff, *Nature* **391**(4), 667 (1998).
24. C. Genet and T.W. Ebbesen, *Nature* **445**, 39 (2007).
25. M. Schwind, B. Kasemo, and I. Zoric, *Nano Lett.* **13**, 1743 (2013).
26. I.A. Kolmychek, E.A. Mamonov, N.S. Gusev, M.V. Sapozhnikov, V.G. Golubev, and T.V. Murzina, *Opt. Lett.* **46**(13), 3087 (2021).
27. А.С. Романова, А.В. Коровин, С.Г. Романов, *Физика твердого тела* **55**(8), 1612 (2013).
28. I.A. Kolmychek, K.A. Lazareva, E.A. Mamonov, E.V. Skorokhodov, M.V. Sapozhnikov, V.G. Golubev, and T.V. Murzina, *Materials* **14**(13), 3481 (2021).
29. M.V. Sapozhnikov, S.A. Gusev, B.B. Troitskii, and L.V. Khokhlova, *Opt. Lett.* **36**(21), 4197 (2011).
30. M.V. Sapozhnikov, S.A. Gusev, V.V. Rogov, O.L. Ermolaeva, B.B. Troitskii, L.V. Khokhlova, and D.A. Smirnov, *Appl. Phys. Lett.* **96**(12), 122507 (2010).
31. Z. Liu, L. Shi, Z. Shi, X.H. Liu, J. Zi, S.M. Zhou, S.J. Wei, J. Li, X. Zhang, and Y.J. Xia, *Appl. Phys. Lett.* **95**(3), 032502 (2009).
32. I.A. Kolmychek, T.V. Murzina, A.A. Nikulin, E.A. Gan'shina, and O.A. Aktsipetrov, *JETP Lett.* **90**(7), 552 (2009).
33. J.B. Gonzalez-Diaz, A. Garcia-Martin, G. Armelles, J.M. Garcia-Martin, C. Clavero, A. Cebollada, R.A. Lukaszew, J.R. Skuza, D.P. Kumah, and R. Clarke, *Phys. Rev. B* **76**, 153402 (2007).
34. A.V. Baryshev, H. Uchida, and M. Inoue, *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 2371 (2013).
35. А.Б. Певцов, С.А. Грудинкин, А.Н. Поддубный, С.Ф. Каплан, Д.А. Курдюков, В.Г. Голубев, *ФТП* **44**(12), 1585 (2010).
36. Е.Ю. Трофимова, А.Е. Алексенский, С.А. Грудинкин, И.В. Коркин, Д.А. Курдюков, В.Г. Голубев, *Коллоидный журнал* **73**(4), 535 (2011).
37. А.К. Звездин, А.К. Котов, *Магнитооптика тонких пленок*, Наука, М. (1988), 192 с.
38. A. Degiron, H.J. Lezec, W.L. Barnes, and T.W. Ebbesen, *Appl. Phys. Lett.* **81**(23), 4327 (2002).
39. E.D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic, N.Y. (2012).
40. О.А. Кавтрева, А.В. Анкудинов, А.Г. Баженова, Ю.А. Кумзеров, М.Ф. Лимонов, К.Б. Самусев, А.В. Селькин, *Физика твердого тела* **4**, 674 (2007).
41. L. Martin-Moreno, F.J. Garcia-Vidal, H.J. Lezec, K.M. Pellerin, T. Thio, J.B. Pendry, and T.W. Ebbesen, *Phys. Rev. Lett.* **86**(6), 1114 (2001).

Полностью оптическая регистрация сверхтонких электронно-ядерных взаимодействий в спиновых центрах в кристаллах 6H-SiC с модифицированным изотопным составом ^{13}C

Р. А. Бабунц, А. Н. Анисимов, И. Д. Бреев, А. С. Гурин, А. П. Бундакова, М. В. Музафарова¹⁾, Е. Н. Мохов, П. Г. Баранов

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

Поступила в редакцию 13 сентября 2021 г.

После переработки 13 сентября 2021 г.

Принята к публикации 14 сентября 2021 г.

Оптически индуцированное выстраивание и поляризация электронных и ядерных спинов в центрах окраски с электронным спином $S = 3/2$, приводящее к гигантским изменениям фотолюминесценции в области антипересечения электронных и ядерных спиновых уровней, наблюдалось в кристаллах 6H-SiC, обогащенных изотопом ^{13}C . Идентифицированы электронные спиновые переходы с переворотом или сохранением проекции ядерного спина изотопа ^{13}C в точках антипересечения уровней в электронно-ядерной системе с $S = 3/2$ и $I = 1/2$, связанной сверхтонким взаимодействием.

DOI: 10.31857/S1234567821200052

В карбиде кремния (SiC) имеются два семейства спиновых центров окраски со спином $S = 1$ и $S = 3/2$ с уникальными магнитно-оптическими свойствами, которые позволяют рассматривать их в качестве материальной платформы для спинтроники, сенсорики, квантовой обработки информации, разработки гибридных квантовых систем [1–15]. SiC широко используется в электронных устройствах, с возможностью применения их в экстремальных условиях окружающей среды. Оптическое возбуждение приводит к выстраиванию спиновых состояний упомянутых центров окраски в SiC, при этом изменение этих состояний в результате воздействия резонансного микроволнового излучения или вследствие антипересечения спиновых уровней в магнитном поле вызывает сильные изменения интенсивности фотолюминесценции (ФЛ). Этот эффект позволяет осуществить оптическое детектирование магнитного резонанса (ОДМР) и оптическую регистрацию сигналов антипересечения спиновых уровней (*level anticrossing* – LAC), причем в последнем случае не требуется наличие микроволновой мощности. Когда два энергетических уровня спиновой системы пересекаются в зависимости от магнитного поля, физические свойства квантовой системы изменяются в области пересечения, при этом антипересечение уровней реализуется, если два состояния, которые в первом приближении должны пересекать-

ся, связаны дополнительным возмущением. Сигналы ОДМР и антипересечения уровней регистрировались при различных температурах, вплоть до комнатной температуры, с помощью синхронного детектирования при приложении постоянного магнитного поля и осциллирующего на низкой частоте переменного магнитного поля, направленных вдоль оси с кристалла.

Техника оптического детектирования спиновых переходов приводит к гигантскому увеличению чувствительности, вплоть до возможности регистрировать одиночные спины [9–11]. Спектроскопия антипересечения энергетических уровней спиновых центров с $S = 3/2$ в SiC является перспективным инструментом для создания сенсоров магнитного поля и температуры с возможностью пространственного разрешения в субмикронном диапазоне, а также для сенсоров магнитного поля, работающих в условиях высоких температур и радиации, включая космическое пространство [16]. До сих пор в виду малого природного содержания изотопа ^{13}C (1.1 %) не удавалось зарегистрировать сверхтонкое (СТ) взаимодействие с ядрами ^{13}C в сигналах антипересечения уровней, которое на порядок больше практически изотропного СТ взаимодействия с кремнием ^{29}Si и при этом обладает сильной анизотропией. Таким образом, реализуется уникальная система из электронного спина $S = 3/2$ и ядерного спина $I = 1/2$, связанных сильным анизотропным сверхтонким взаимодействием. При этом величины сверхтонкого взаимодействия и взаимодействия тонкой структуры одного порядка.

¹⁾e-mail: marina.muzafarova@mail.ioffe.ru

В данной работе представлены результаты исследования центров окраски со спином $3/2$ в гексагональном политипе 6H-SiC . Центры со спином $S = 3/2$ были введены в монокристаллы 6H-SiC с низкой концентрацией азота путем облучения кристалла электронами с энергией 2 МэВ и потоком $\sim 10^{18}\text{ см}^{-2}$. Исследовались кристаллы 6H-SiC , выращенные с модифицированным изотопным составом ^{13}C и ^{29}Si . Принято обозначать центры окраски со спином $S = 3/2$ по соответствующим нуль-фононным линиям ФЛ (*zero-phonon lines* – ZPLs), V1, V2, V3 центры в 6H-SiC . Эти центры окраски обладают аксиальной симметрией вдоль c оси кристалла, электронная структура центров со спином $3/2$ (spin- $3/2$ center) является дискуссионной, но однозначно установлено, что в основе этих центров находится отрицательно-заряженная вакансия кремния со спином $S = 3/2$. Аксиальная симметрия центра определяется как структурой кристалла, так и наличием возбуждения в виде собственного дефекта вдоль оси c [11, 13, 17, 18]. Все эксперименты сделаны на радиоспектроскопическом комплексе, созданном в ФТИ им. А. Ф. Иоффе, включающем высокочастотный спектрометр ЭПР/ОДМР с использованием магнитооптического криостата замкнутого цикла, с диапазоном рабочих температур $1.5\text{--}300\text{ К}$ и широким диапазоном изменения магнитных полей с переходом через нулевое значение. В комплекс также входит спектрометр ОДМР, выполненный на базе конфокального оптического микроскопа.

Спектр ЭПР спиновых центров с $S = 3/2$ описывается спиновым гамильтонианом:

$$H = g\mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} + D[S_z^2 - 1/3S(S+1)] + \mathbf{I} \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{S}, \quad (1)$$

где $\mathbf{B}$ – магнитное поле, g – изотропный g -фактор, равный 2.00 , μ_B – магнетон Бора, D – параметр тонкой структуры при аксиальном кристаллическом поле, $\mathbf{A}$ – тензор сверхтонкого взаимодействия с ядрами изотопа ^{13}C ($I = 1/2$), расположенными в ближайшем окружении вакансии кремния. Расщепления тонкой структуры для V2-центров в 6H-SiC $\Delta\nu = 2D = 42.7 \cdot 10^{-4}\text{ см}^{-1} = 128\text{ МГц} = 4.6\text{ мТл}$, $D = +2.3\text{ мТл}$; для V1 и V3 центров расщепления тонкой структуры считаются практически одинаковыми, поэтому в данной работе мы их будем обозначать как V1/V3, при этом однозначно установлено, что параметр D является отрицательным: $\Delta\nu = 2|D| = 9.3 \cdot 10^{-4}\text{ см}^{-1} = 28\text{ МГц} = 0.1\text{ мТл}$, $D = -0.05\text{ мТл}$. В соответствии с предложенной моделью спиновых центров с $S = 3/2$ основную роль играет вакансия кремния, в ближайшем окружении которой находятся четыре атома углерода,

один (1) расположен вдоль оси c кристалла и три атома (2–4) расположены в эквивалентных позициях вдоль связей, отвернутых на 70° от оси c . Эти атомы обычно обозначаются как C_{NN} (*nearest neighbor* – NN). Параметры СТ структуры для взаимодействия с ядерным магнитным моментом изотопа ^{13}C равны: $A_{\parallel} = 26.7 \cdot 10^{-4}\text{ см}^{-1} = 80.1\text{ МГц} = 2.86\text{ мТл}$; $A_{\perp} = 12.5 \cdot 10^{-4}\text{ см}^{-1} = 37.5\text{ МГц} = 1.34\text{ мТл}$ (параллельное направление вдоль оси c). Сверхтонкая структура для взаимодействия с ^{29}Si во второй координационной сфере относительно вакансии кремния (двенадцать атомов Si_{NNN} , где NNN – *next nearest neighbor*) составляет примерно 9 МГц ($\sim 0.3\text{ мТл}$) [19].

На рисунке 1 показаны спектры ОДМР, зарегистрированные на частоте 94 ГГц по люминесценции спиновых центров с $S = 3/2$ в монокристалле 6H-SiC , обогащенном изотопом ^{13}C до 15% , при нескольких температурах. Стрелками отмечены переходы для V2 и V1/V3 центров, а также для нескольких сверхтонких компонент переходов от взаимодействия с четырьмя ближайшими к вакансии кремния атомами углерода. На рисунке 1 видно, что в представленном температурном диапазоне для V1/V3 центров наблюдается переворот фазы сигнала ОДМР в области температуры $\sim 30\text{ К}$. Этот переворот условно показан инвертированием синего и красного цветов для сигналов выше и ниже этой температуры. Таким образом, для V1/V3 центров изменяется схема оптического выстраивания спиновых состояний электронов и ядер, при этом для V2 центров заметных изменений в спектрах ОДМР не происходит. На вставках приведены схемы энергетических уровней в магнитном поле и условно кружками показано оптически индуцированное выстраивание населенностей спиновых уровней для V2 и V1/V3 центров. Видна инвертированная система уровней для V1/V3 центров и изменение населенностей уровней при температурах выше 30 К и ниже этой температуры. Там же условно показаны ЭПР переходы, синий цвет соответствует поглощению микроволновой мощности, красный – излучению микроволновой мощности. Для V2 центров реализуется одна схема выстраивания при всех температурах, вплоть до комнатной температуры и выше. Внизу показаны зарегистрированные по электронному спиновому эху (ЭСЭ) ЭПР переходы [11, 20] на той же частоте 94 ГГц , видны инвертированные сигналы в низком магнитном поле, соответствующие излучению микроволновой мощности. Указаны значения сателлитов, обусловленные взаимодействием с ядром одного атома углерода, расположенным вдоль оси c и обозначенным (1), соответствует константе СТ взаимодействия $A_{\parallel}$, и ядром уг-

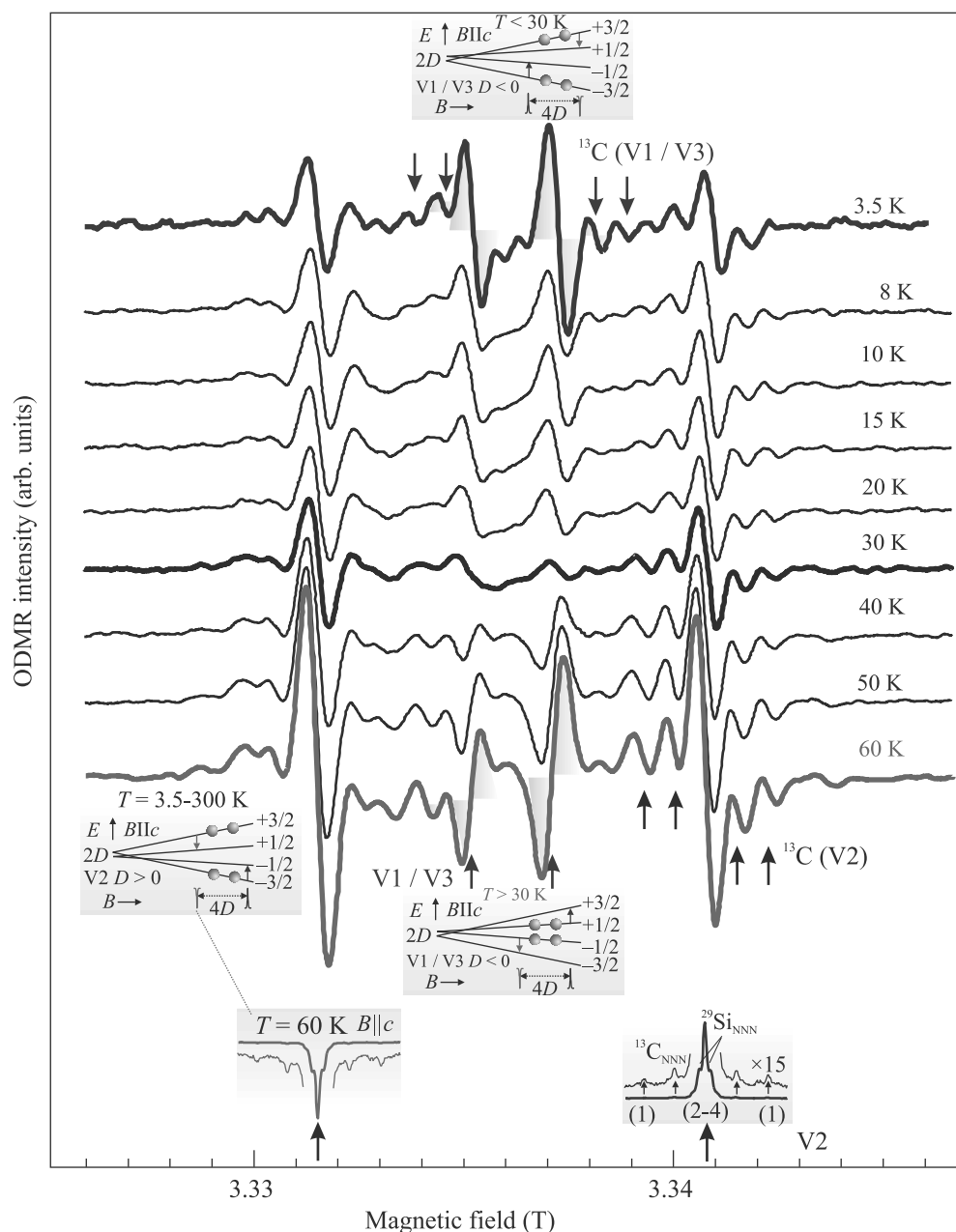


Рис. 1. (Цветной онлайн) Спектры ОДМР, зарегистрированные по люминесценции спиновых центров с $S = 3/2$ в монокристалле 6H-SiC, обогащенном изотопом ^{13}C ($\sim 15\%$) при нескольких температурах, частота 94 ГГц (возбуждение 808 нм, ориентация $B \parallel c$). Стрелками отмечены переходы для V2 и V1/V3 центров, а также для нескольких сверхтонких компонент переходов от взаимодействия с четырьмя ближайшими к вакансии кремния атомами углерода. Для центров V1/V3 перевернут фазы сигнала ОДМР в области температуры 30 К условно показан инвертированием синего и красного цветов для сигналов выше и ниже этой температуры. Внизу для сравнения показаны спектры ЭПР V2 центров, зарегистрированные в кристалле 6H-SiC (природное содержание изотопов) на частоте 94 ГГц по сигналу электронного спинового эха (ЭСЭ), возбуждение 808 нм, $B \parallel c$. На вставках представлены схемы энергетических уровней и типы оптически индуцированного выстраивания населенностей спиновых уровней для V2 и V1/V3 центров

лерода, располагающимся в одной из трех позиций эквивалентных атомов углерода (2–4), направление на которые отвернуто от оси c на 70° (110°), т.е. кон-

станта СТ взаимодействия определяется по формуле $A = (A_{\parallel}^2 \cos^2 \theta + A_{\perp}^2 \sin^2 \theta)^{1/2}$, $\theta = 70^\circ$. Изменение фазы в спектрах ОДМР для V1/V3 центров обусловлено

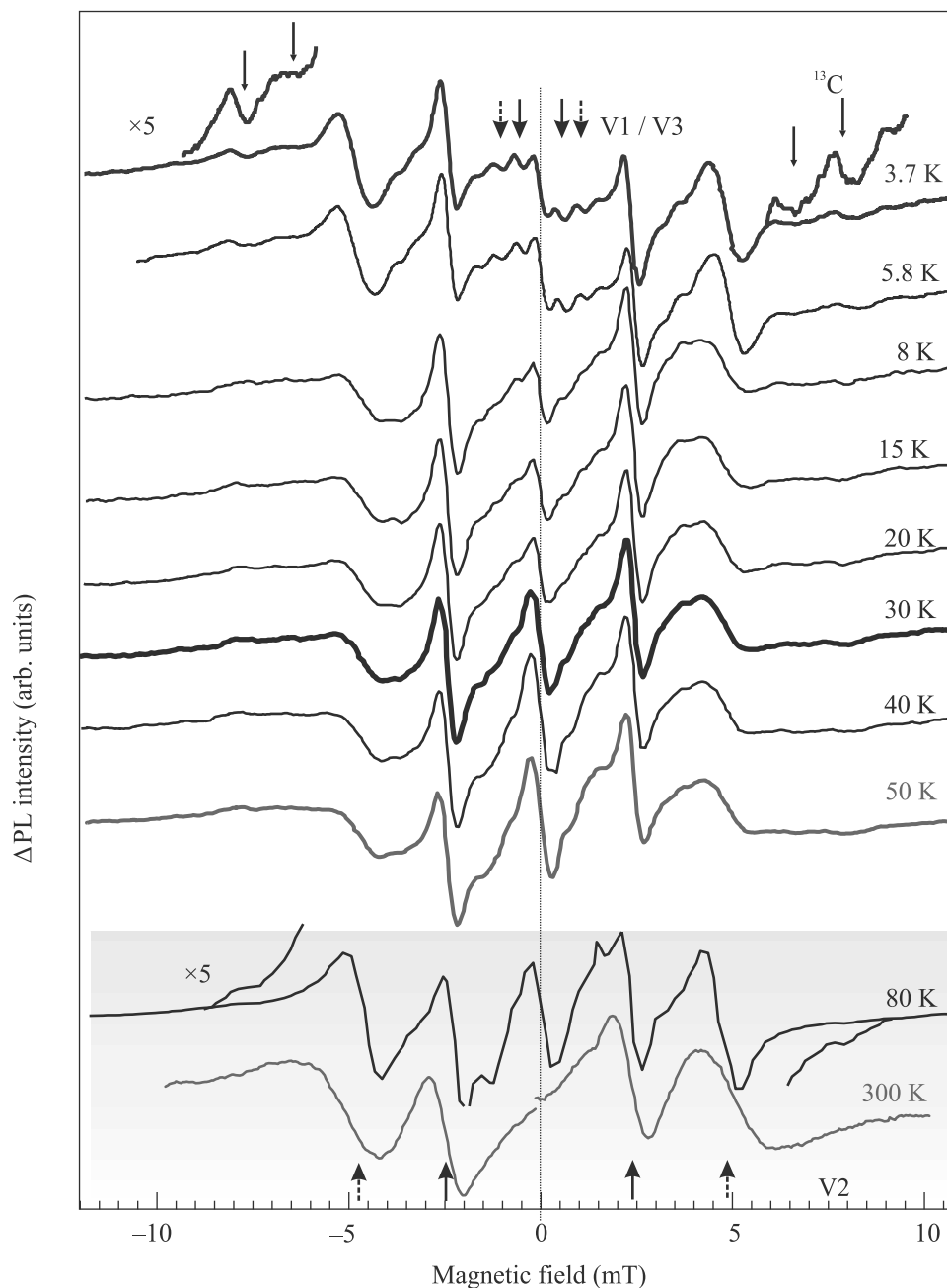


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сигналы антипересечения уровней, зарегистрированные по изменению интенсивности люминесценции спиновых центров с $S = 3/2$ в монокристалле 6H-SiC, обогащенном изотопом ^{13}C ($\sim 15\%$) при нескольких температурах (возбуждение 808 нм, ориентация $B\parallel c$). Стрелками отмечены переходы для V2 и V1/V3 центров, а также для нескольких сверхтонких компонент переходов от взаимодействия с четырьмя ближайшими к вакансии кремния атомами углерода. Внизу показаны два спектра антипересечения уровней, измеренные при двух температурах, 80 и 300 K, в кристалле с двойным измененным составом изотопов ^{29}Si (1%) и ^{13}C (4.7%). Видны сигналы только для V2 и центров

различием в схемах оптического выстраивания при разных температурах, как это показано на вставках. При этом в области переходной температуры населенности всех спиновых уровней выравниваются и

нет поглощения и излучения микроволновой мощности, а, следовательно, сигналы ОДМР исчезают. Фаза линий ОДМР одинакова для обоих переходов, хотя эти линии соответствуют поглощению и излу-

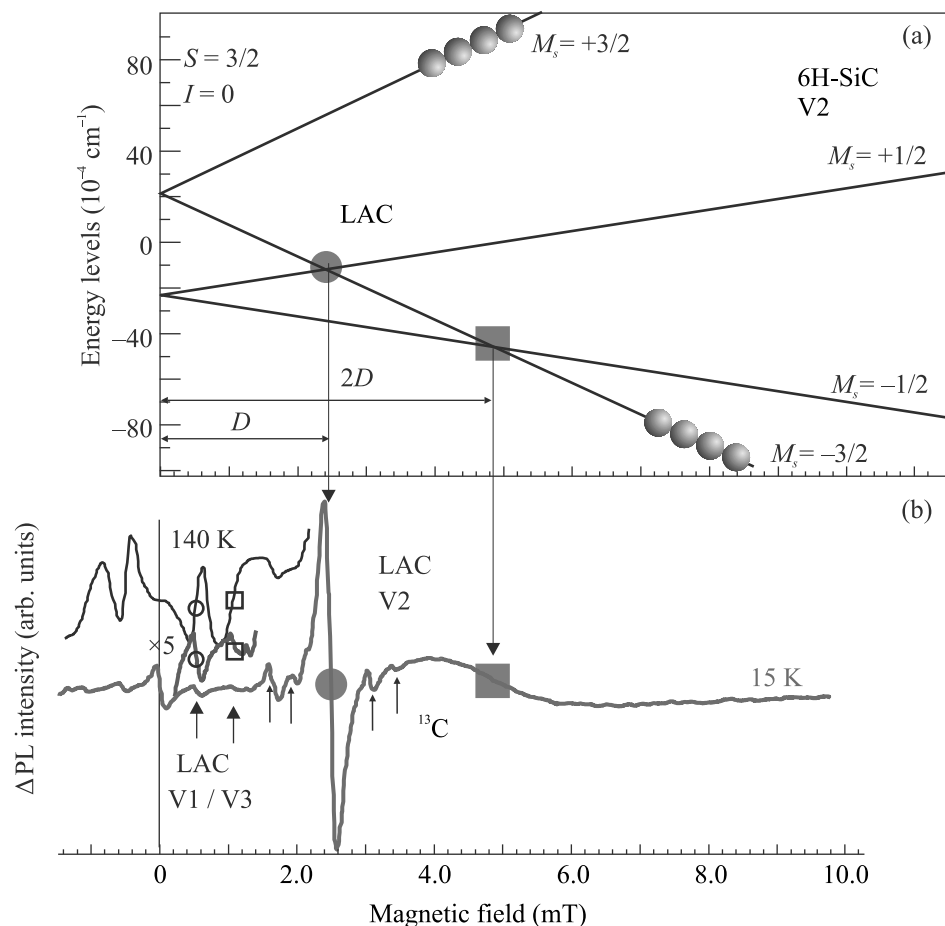


Рис. 3. (Цветной онлайн) Схема энергетических уровней в магнитном поле без учета сверхтонких взаимодействий и сигналы антипересечения уровней V2 центров в 6H-SiC, $B \parallel c$, возбуждение 808 нм, заполненными кружком и квадратом обозначены точки антипересечения уровней в основном состоянии, кружком обозначено первое антипересечение с изменением проекции электронного спина $\Delta M_s = \pm 2$, квадратом обозначено второе антипересечение с изменением проекции электронного спина $\Delta M_s = \pm 1$. (b) – Спектр антипересечения уровней, зарегистрированный в кристалле 6H-SiC, выращенном с обедненным содержанием изотопа ^{29}Si ($\sim 1\%$). Открытыми кружками и квадратами уменьшенных размеров показаны сигналы антипересечения уровней для V1/V3 центров

чению микроволнового излучения. Таким образом, поглощение и излучение микроволнового излучения приводят к одним и тем же изменениям фотолюминесценции спиновых центров. Теоретическое обоснование наблюдаемых эффектов представляет интерес, но это выходит за рамки настоящей работы. Отметим, что изменение фазы в ОДМР соответствует разному знаку изменения интенсивности фотолюминесценции в условиях резонанса [2, 5].

На рисунке 2 показаны сигналы антипересечения уровней в магнитном поле, зарегистрированные в основном состоянии спиновых центров с $S = 3/2$ по изменению интенсивности ФЛ в монокристалле 6H-SiC, обогащенном изотопом ^{13}C до $\sim 15\%$ при нескольких температурах, магнитное поле ориентировано вдоль оси симметрии спинового центра, т.е.

$B \parallel c$. Стрелками отмечены переходы для V2 и V1/V3 центров, а также для нескольких сверхтонких компонент переходов от взаимодействия с четырьмя ближайшими к вакансии кремния атомами углерода. Для подтверждения проявления СТ взаимодействий с ядрами ^{13}C , а также свидетельства возможности регистрации сигналов антипересечения уровней при комнатной температуре, проведены эксперименты в дополнительном образце, в кристалле 6H-SiC с двойным измененным составом изотопов ^{29}Si (уменьшенном до $\sim 1\%$) и ^{13}C (увеличенном до $\sim 4.7\%$), т.е. концентрации изотопов инвертированы по отношению к их природному содержанию. Внизу показаны два спектра антипересечения уровней, измеренные при двух температурах, 80 и 300 К. Сигналы антипересечения уровней для V2 центров при комнат-

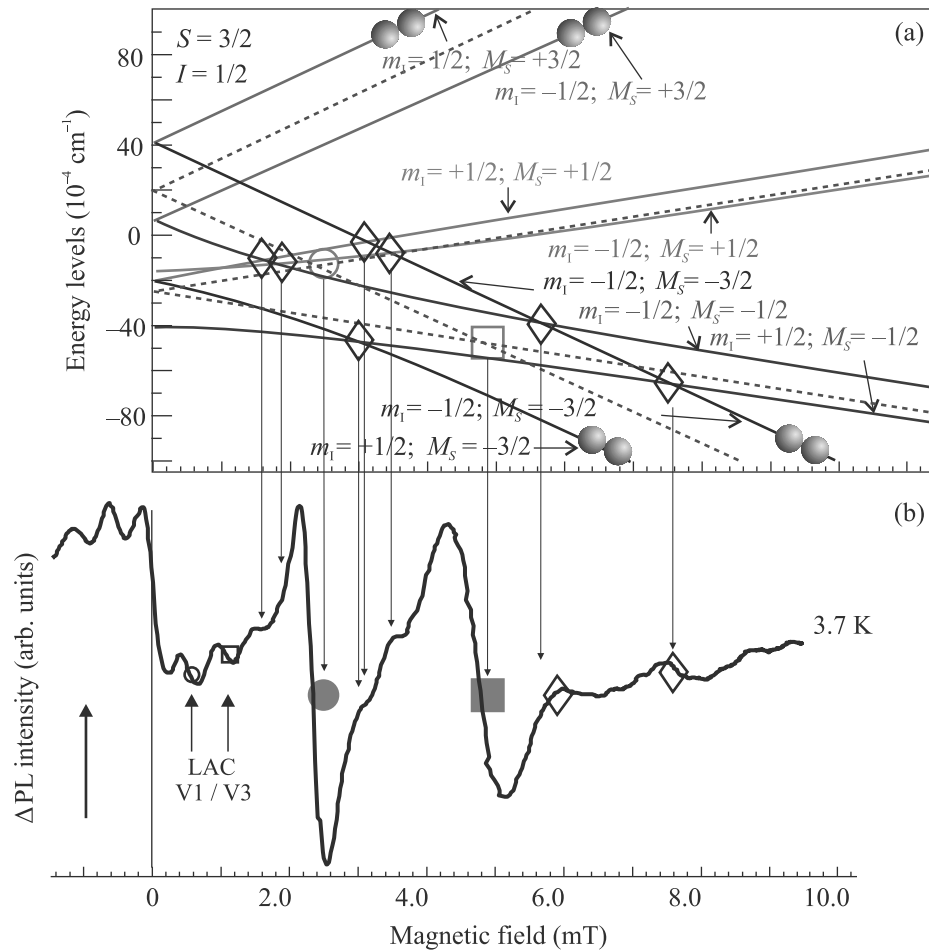


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Схема энергетических уровней в магнитном поле V2-центров с учетом сверхтонких взаимодействий с изотопом ^{13}C ($I = 1/2$), сигналы антипересечения отмечены открытыми ромбиками. Пунктиром показаны энергетические уровни согласно рис. 3а. (b) – Сигналы антипересечения уровней в кристалле 6H-SiC, выращенном с обогащенным содержанием изотопа ^{13}C ($\sim 15\%$)

ной температуре зарегистрированы с использованием конфокального оптического микроскопа в сфокусированном объеме возбуждающего лазерного луча примерно 1 мкм^3 .

Для объяснения наблюдаемых на рис. 2 сигналов антипересечения уровней, на рис. 3а и 4а представлены схемы энергетических уровней в ориентации $B \parallel c$ для V2 центров в кристалле 6H-SiC. На рисунке 3а приведены энергетические уровни в магнитном поле для V2-центров без учета сверхтонких взаимодействий, заполненными кружком и квадратом обозначены точки антипересечения энергетических уровней в основном состоянии, кружком обозначено первое антипересечение с изменением проекции электронного спина $\Delta M_S = \pm 2$, так называемый “запрещенный” переход, квадратом обозначено второе антипересечение с изменением проекции электронного спина $\Delta M_S = \pm 1$, так называемый “разрешен-

ный” переход. Серыми кружками условно показаны оптически индуцированные заселенности уровней с $M_S = \pm 3/2$, при этом уровни с $M_S = \pm 1/2$ практически не заселены. Спектр антипересечения уровней, зарегистрированный в кристалле 6H-SiC, выращенном с обедненным содержанием изотопа ^{29}Si ($\sim 1\%$) и природным содержанием ^{13}C , показан на рис. 3б. Уменьшение содержания изотопа ^{29}Si (природное содержание 4.7%) позволило существенно уменьшить ширину сигналов антипересечения уровней и выделить взаимодействия с изотопом ^{13}C . Наряду с сигналами антипересечения энергетических уровней, соответствующих “запрещенному” и “разрешенному” переходам видны линии меньшей интенсивности, которые мы относим к проявлению сверхтонких взаимодействий с ядрами ^{13}C . Энергетические уровни в магнитном поле для V2-центров с учетом сверхтонких взаимодействий с изотопом ^{13}C ($I = 1/2$) по-

казаны на рис. 4а, открытыми ромбиками обозначены различные антипересечения электронных и ядерных состояний. Серыми кружками условно показаны оптически индуцированные заселенности уровней с $M_S = \pm 3/2$ для каждой проекции ядерного магнитного момента, при этом уровни с $M_S = \pm 1/2$ практически не заселены. Для сравнения пунктиром на схему наложены уровни и точки антипересечения уровней из рис. 3а. Соответствующие сигналы антипересечения уровней, зарегистрированные в кристалле 6Н-SiC, выращенном с обогащенным содержанием изотопа ^{13}C ($\sim 15\%$) и природным содержанием изотопа ^{29}Si (4.7%) представлены на рис. 4б. На рисунках 3б и 4б открытыми кружками и квадратами уменьшенных размеров показаны сигналы антипересечения уровней для V1/V3 центров, при этом на рис. 3б приведены сигналы, зарегистрированные при двух температурах: 15 и 140 К, т.е. ниже и выше критической температуры 30 К, при которой, как было рассмотрено выше, изменяется характер оптически индуцированной населенности спиновых уровней. В результате повышения температуры фаза сигналов антипересечения уровней для V1/V3 центров изменилась на противоположную.

Обозначим на рис. 4б магнитные поля при антипересечении уровней с учетом сверхтонких взаимодействий с ядром ^{13}C последовательностью цифр по направлению увеличения магнитного поля. 1) $M_S = -1/2, m_I = -1/2 \leftrightarrow M_S = +1/2, m_I = +1/2$ (*разрешенный* электронный спиновый переход с переворотом ядерного спина); 2) $M_S = -1/2, m_I = -1/2 \leftrightarrow M_S = +1/2, m_I = -1/2$ (*разрешенный* электронный спиновый переход без переворота ядерного спина); 3) $M_S = -3/2, m_I = -1/2 \leftrightarrow M_S = +1/2, m_I = +1/2$ (*запрещенный* электронный спиновый переход с переворотом ядерного спина); 4) $M_S = -3/2, m_I = +1/2 \leftrightarrow M_S = -1/2, m_I = +1/2$ (*разрешенный* электронный спиновый переход без переворота ядерного спина); 5) $M_S = -3/2, m_I = -1/2 \leftrightarrow M_S = +1/2, m_I = -1/2$ (*запрещенный* электронный спиновый переход без переворота ядерного спина); 6) $M_S = -3/2, m_I = -1/2 \leftrightarrow M_S = -1/2, m_I = -1/2$ (*запрещенный* электронный спиновый переход без переворота ядерного спина); 7) $M_S = -3/2, m_I = -1/2 \leftrightarrow M_S = -1/2, m_I = +1/2$ (*запрещенный* электронный спиновый переход с переворотом ядерного спина). Оптическое проявление сигналов антипересечения уровней с переворотом и без переворота ядерного спина позволяет судить о выстраивании ядерных спиновых состояний под действием оптического возбуждения. Для нахождения контрастности сигналов антипересечения уровней, регистри-

руемых по изменению ФЛ при разных электронно-ядерных переходах, необходимо рассматривать волновые функции для соответствующих спиновых состояний $|M_S, m_I\rangle$, которые рассчитываются в различных пакетах программ, где определяются вероятности ЭПР переходов. Расчет этих волновых функций не входил в задачу настоящей работы, мы только констатируем, что при теоретическом рассмотрении манипуляций с электронными и ядерными спинами в спектрах ОДМР и антипересечения уровней такие расчеты будут чрезвычайно важными.

Закключение. В работе продемонстрирована возможность осуществлять оптически индуцированные спиновые манипуляции на электронах и ядрах ^{13}C в центрах окраски со спином $S = 3/2$. Спиновые манипуляции выполняются с использованием оптического детектирования магнитного резонанса и эффектов антипересечения уровней в основном состоянии. Идентифицированы переходы с переворотом электронных и ядерных спинов в спектрах ОДМР и антипересечения уровней. Полностью оптическим методом без использования микроволновой мощности определены сверхтонкие взаимодействия с ядрами изотопа ^{13}C .

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований # 19-52-12058 и Научно-исследовательского сообщества Германии (DFG) ICRC TRR160 (Project C7).

1. P. G. Baranov, I. V. Il'in, E. N. Mokhov, M. V. Muzafarova, S. B. Orlinskii, and J. Schmidt, JETP Lett. **82**, 441 (2005).
2. P. G. Baranov, A. P. Bundakova, I. V. Borovykh, S. B. Orlinskii, R. Zondervan, and J. Schmidt, JETP Lett. **86**, 202 (2007).
3. J. R. Weber, W. F. Koehl, J. B. Varley, A. Janotti, B. B. Buckley, C. G. van de Walle, and D. D. Awschalom, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **107**, 8513 (2010).
4. W. F. Koehl, B. B. Buckley, F. J. Heremans, G. Calusine, and D. D. Awschalom, Nature **479**, 84 (2011).
5. P. G. Baranov, A. P. Bundakova, A. A. Soltamova, S. B. Orlinskii, I. V. Borovykh, R. Zondervan, R. Verberk, and J. Schmidt, Phys. Rev. B **83**, 125203 (2011).
6. V. A. Soltamov, A. A. Soltamova, P. G. Baranov, and I. I. Proskuryakov, Phys. Rev. Lett. **108**, 226402 (2012).
7. D. Riedel, F. Fuchs, H. Kraus, S. V  th, A. Sperlich, V. Dyakonov, A. A. Soltamova, P. G. Baranov, V. A. Ilyin, and G. V. Astakhov, Phys. Rev. Lett. **109**, 226402 (2012).
8. H. Kraus, V. A. Soltamov, D. Riedel, S. V  th, F. Fuchs, A. Sperlich, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, Nature Phys. **10**, 157 (2014).

9. D. J. Christle, A. L. Falk, P. Andrich, P. V. Klimov, J. U. Hassan, N. T. Son, E. Janzen, T. Ohshima, and D. D. Awschalom, *Nature Mater.* **14**, 160 (2015).
10. M. Widmann, S.-Y. Lee, T. Rendler, N. T. Son, H. Fedder, S. Paik, L.-P. Yang, N. Zhao, S. Yang, I. Booker, A. Denisenko, M. Jamali, S. A. Momenzadeh, I. Gerhardt, T. Ohshima, A. Gali, E. Janzén, and J. Wrachtrup, *Nature Mater.* **14**, 164 (2015).
11. P. G. Baranov, H.-J. von Bardeleben, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, *Magnetic Resonance of Semiconductors and Their Nanostructures: Basic and Advanced Applications*, Springer Series in Materials Science, Springer-Verlag GmbH Austria (2017), ch. 6, v. 253.
12. V. A. Soltamov, B. V. Yavkin, D. O. Tolmachev, R. A. Babunts, A. G. Badalyan, V. Yu. Davydov, E. N. Mokhov, I. I. Proskuryakov, S. B. Orlinskii, and P. G. Baranov, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 247602 (2015).
13. S. A. Tarasenko, A. V. Poshakinskiy, D. Simin, V. A. Soltamov, E. N. Mokhov, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, *Phys. Status Solidi B* **255**, 1700258 (2018).
14. V. A. Soltamov, C. Kasper, A. V. Poshakinskiy, A. N. Anisimov, E. N. Mokhov, A. Sperlich, S. A. Tarasenko, P. G. Baranov, G. V. Astakhov, and V. Dyakonov, *Nat. Commun.* **10**, 678 (2019).
15. H. Singh, A. N. Anisimov, S. S. Nagalyuk, E. N. Mokhov, P. G. Baranov, and D. Suter, *Phys. Rev. B* **101**, 134110 (2020).
16. C. J. Cochrane, J. Blacksberg, M. A. Anders, and P. M. Lenahan, *Sci. Rep.* **6**, 37077 (2016).
17. V. Ivády, J. Davidsson, N. T. Son, T. Ohshima, I. Abrikosov, and A. Gali, *Phys. Rev. B* **96**, 161114(R) (2017).
18. A. Csóre, N. T. Son, and A. Gali, *Phys. Rev. B* **104**, 035207 (2021).
19. M. Wagner, N. Q. Thinh, N. T. Son, W. M. Chen, E. Janzén, P. G. Baranov, E. N. Mokhov, C. Hallin, and J. L. Lindström, *Phys. Rev. B* **66**, 155214 (2002).
20. V. A. Soltamov, B. V. Yavkin, A. N. Anisimov, H. Singh, A. P. Bundakova, G. V. Mamin, S. B. Orlinskii, E. N. Mokhov, D. Suter, and P. G. Baranov, *Phys. Rev. B* **103**, 195201 (2021).

Новые фазовые превращения под давлением в висмутине

В. В. Бражкин¹⁾, Т. И. Дюжева, И. П. Зибров

Институт физики высоких давлений РАН, 142190 Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 сентября 2021 г.

После переработки 13 сентября 2021 г.

Принята к публикации 13 сентября 2021 г.

При исследовании влияния высоких давления (ВД) и температуры (ВТ) на кристаллическую структуру Bi_2S_3 обнаружено, что Bi_2S_3 при $p = 6\text{--}8\text{ ГПа}$ и $T = 625\text{--}1050^\circ\text{C}$ претерпевает химическое разложение по реакции $\text{Bi}_2\text{S}_3 \rightarrow \text{BiS}_2 + \text{Bi} + \text{S}$ с образованием $\text{BiS}_2 - \text{I}$ ($a = 15.74 \pm 0.01 \text{ \AA}$; $b = 4.026 \pm 0.004 \text{ \AA}$; $c = 11.34 \pm 0.01 \text{ \AA}$; $\beta = 127.51^\circ$; $D_x = 6.36 \text{ г/см}^3$; $V/Z = 71.31 \text{ \AA}^3$), а в области $p = 8\text{--}8.5\text{ ГПа}$ и $T \geq 1100\text{--}1300^\circ\text{C}$ возникает новая метастабильная фаза ВД $\text{BiS}_2 - \text{II}$ с симметрией mmm ($a = 8.45 \pm 0.01 \text{ \AA}$; $b = 10.26 \pm 0.01 \text{ \AA}$; $c = 5.87 \pm 0.007 \text{ \AA}$; $V/Z = 63.695 \text{ \AA}^3$; $D_x = 7.12 \text{ г/см}^3$; $\Delta V/V_0 = 0.11$). Фаза $\text{BiS}_2 - \text{II}$ в смеси с $\text{BiS}_2 - \text{I}$ образуется также на составе $\text{Bi} + \text{S}(1:2)$ при тех же значениях давления и температуры. Халькогениды состава V_2VI_3 ($\text{V} \equiv \text{As, Sb, Bi}$; $\text{VI} \equiv \text{S, Se}$) демонстрируют явную тенденцию к термодинамической нестабильности с образованием халькогенидов с “неправильной” стехиометрией состава VVI_2 , а, именно, AsS_2 , AsSe_2 , $\text{BiS}_2 - \text{I}$, $\text{BiS}_2 - \text{II}$, BiSe_2 , но при этом слоистые структуры этих метастабильных фаз ВД различны. Можно предположить, что реакции разложения под давлением на соединения с “неправильной” стехиометрией $\text{V}_2\text{VI}_3 \rightarrow \text{VVI}_2 + \text{VVI}$ и $\text{V}_2\text{VI}_3 \rightarrow \text{VVI}_2 + \text{V} + \text{VI}$ являются общей закономерностью.

DOI: 10.31857/S1234567821200064

Сульфид висмута Bi_2S_3 (минерал висмутин) относится к большому семейству слоистых халькогенидов A_2B_3 ($\text{A} \equiv \text{As, Sb, Bi}$; $\text{B} \equiv \text{S, Se, Te}$). Интенсивное изучение этих соединений обусловлено их необычными термоэлектрическими свойствами [1–3]. Воздействие давления на кристаллическую структуру может приводить к драматическим изменениям атомной и электронной структур. Вследствие чего возникают такие нетривиальные явления, как электронные топологические переходы, структурные фазовые переходы, металлизация, сверхпроводимость. Кроме того, многие члены этого семейства относятся к простейшим 3d топологическим изоляторам – нового класса материалов, открытие которого является одним из ярких событий физики конденсированного состояния [4–6] и это, по-прежнему, остается “горячей” темой исследований в физике и материаловедении при высоком давлении (ВД). Кроме того, легирование халькогенидов A_2B_3 приводит к появлению уникальных магнитных свойств топологических изоляторов [7, 8].

В нормальных условиях семейство слоистых халькогенидов A_2B_3 образует два структурных класса, что объясняется большим различием размеров ковалентных радиусов атомов металла и халькогеновых атомов. Так, соединения Bi_2S_3 ,

Sb_2S_3 , Sb_2Se_3 кристаллизуются в ромбической структуре стибнита Sb_2S_3 ($Pnma$; $Z = 4$). Соединения Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3 кристаллизуются в гексагональной структуре тетрадимита ($R\bar{3}m$; $Z = 3$), в основе которой лежит 9-слойная плотнейшая упаковка атомов Bi, занимающих 2/3 октаэдров слоями так, чтобы плотноупакованный слой из халькогеновых атомов был общим для двух заполненных Bi октаэдрических слоев. Примечательно, что ромбоэдрические соединения со структурой тетрадимита не обнаруживают фазового перехода в более плотную модификацию стибнита под давлением, за исключением Bi_2Se_3 , который принимает эту структуру при одновременном воздействии ВД и высоких температур (ВТ) [9], а также в результате аморфизации при ВД и комнатной температуре с последующей кристаллизацией в фазу со структурой стибнита [10]. Интенсивное изучение фазовых переходов соединений A_2B_3 различными методами обнаружило целый ряд структурных превращений при ВД [11–16], из анализа которых можно предположить последовательность этих превращений для соединений со структурой тетрадимита:

$$\begin{aligned} \text{фаза-I}(\alpha) &\xrightarrow{\sim 2\%} \text{фаза-II}(\beta) \xrightarrow{\sim 5\%} \text{фаза-III}(\gamma) \xrightarrow{\sim 15\%} \\ &\xrightarrow{\sim 15\%} \text{фаза-IV}'(\sigma') \text{ или фаза-IV}(\sigma), \end{aligned} \quad (1)$$

где фаза-I(α) – исходная фаза $R\bar{3}m$, $Z = 4$; фаза-

¹⁾e-mail: brazhkin@hppi.troitsk.ru

$\text{II}(\beta)$ – моноклинная $C12/m1$, $Z = 4$; фаза-III(γ) – моноклинная $C12/c1$, $Z = 4$; фаза-IV(σ) – куб, $Z = 2$; фаза-IV'(σ') – новая моноклинная $C12/c1$, $Z = 4$ с координационным числом для атомов Bi 9/10 и $\Delta V/V_0 = 15\%$. Сразу заметим, что эта последовательность реализуется полностью только для Bi_2Se_3 [16] и Sb_2Te_3 [10, 11], при этом фазы ВД для этих соединений различны, а для Sb_2Se_3 обнаружен лишь один переход в кубическую фазу при 51 ГПа [15]. Структуры новых фаз ВД Bi_2Te_3 ; Sb_2Te_3 ; Bi_2Se_3 были предсказаны теоретически с помощью техники “*partical swam optimization*” [17]. Экспериментальные дифракционные данные, полученные в алмазных камерах ВД, уточнены методом Ритвельда. Достоверность моделей структур может подвергаться сомнению, так как эти моноклинные структуры являются многопараметрическими, а экспериментальный набор дифракционных отражений в алмазных камерах ВД существенно ограничен.

Фазовая диаграмма Bi – S при нормальных условиях содержит лишь одно соединение Bi_2S_3 . Однако известна почти забытая работа [18], в которой обнаружено существование фазы BiS_2 , полученной при $p = 4.6$ ГПа и $T = 1250^\circ\text{C}$. Структура этой фазы определена в работе [19]. В работе [20] изучена сжимаемость BiS_2 до 30 ГПа и обнаружен вялотекущий фазовый переход в фазу с неустановленной структурой при давлениях свыше 35 ГПа. В работе [21] в алмазной камере ВД с лазерным нагревом представлены данные, что Bi_2S_3 претерпевает разложение по реакции $\text{Bi}_2\text{S}_3 \rightarrow \text{BiS}_2 + \text{BiS}$, которые вызывают некоторое сомнение. При комнатной температуре соединение Bi_2S_3 изучено до 65 ГПа [22, 23]. Установлено, что исходная структура стабильна до 55 ГПа, а дальнейшее увеличение давления приводит к структурному беспорядку или аморфизации.

Цель настоящей работы – исследование структурных превращений и фазовой диаграммы Bi_2S_3 в области давлений до 10 ГПа и температур до 1300°C . В работе использованы камеры ВД типа “Конак” и “Тороид”, позволяющие создавать давление до 9 ГПа и температуру до 2000°C . При исследовании структурных превращений использовался метод закалки. После 10 ÷ 20-минутной выдержки в условиях высокого давления резко сбрасывалась температура, а затем уменьшалось давление до атмосферного.

Кроме того, в некоторых экспериментах при $p = 6\text{--}8$ ГПа температура уменьшалась в интервале $1300\text{--}800^\circ\text{C}$ со скоростью 4 К/мин, после чего происходила закалка. Исходные образцы помещались в цилиндрический контейнер из горячепрессованно-

го гексагонального нитрида бора. Косвенный нагрев осуществлялся графитовым нагревателем.

Конечные продукты исследовались с помощью камеры Imaging Plate Guinier Camera G670 (Huber $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ -излучение), сканирующего микроскопа JEOL JSM 6390 LD и монокристалльных камер Лауэ и Буржера.

В экспериментах в качестве исходного образца использовалась стехиометрическая смесь висмута и серы с химической чистотой 99.99 %. Из этой смеси было синтезировано соединение Bi_2S_3 со структурой стибнита с параметрами: $a = 3.977 \pm 0.006 \text{ \AA}$; $b = 11.23 \pm 0.02 \text{ \AA}$; $c = 11.25 \pm 0.06 \text{ \AA}$; $V/4 = 125.5 \text{ \AA}^3$; $D_x = 6.8 \text{ г/см}^3$.

Для исследования структурных превращений в Bi_2S_3 была проведена серия экспериментов при $6 \text{ ГПа} \leq p \leq 8.5 \text{ ГПа}$. После вскрытия контейнера образец представлял собой хорошо кристаллизованную массу серебристого цвета с металлическим блеском и размером зерен от 3 до 100 мкм. Образцы, полученные при $p \sim 8 \text{ ГПа}$ и $T \sim 800\text{--}1300^\circ\text{C}$, содержали монокристаллические включения черного цвета с алмазным блеском и размером $5 \div 200 \text{ мкм}$ (рис. 1).

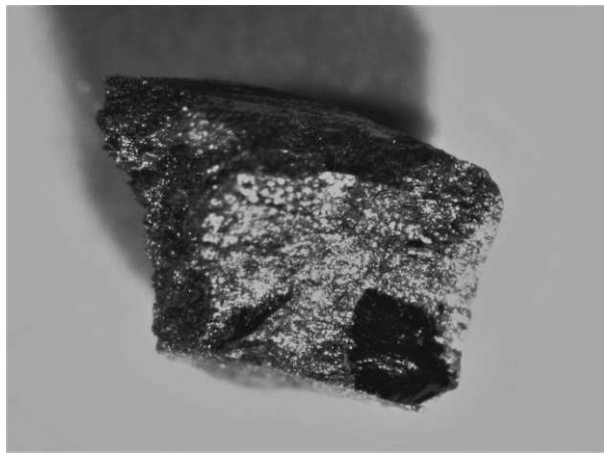


Рис. 1. Образец Bi_2S_3 , полученный при $p \sim 8 \text{ ГПа}$ и $T \sim 1300 \rightarrow 800^\circ\text{C}$

Рентгенофазовый анализ и сканирующая электронная микроскопия образцов выявила, что соединение Bi_2S_3 в условиях ВД и ВТ является неустойчивым и претерпевает химическое разложение с образованием фазы BiS_2 по реакции $\text{Bi}_2\text{S}_3 \rightarrow \text{BiS}_2 + \text{Bi} + \text{S}$.

На рисунке 2а представлена микрофотография кристаллов BiS_2 , синтезированных при $p = 6 \text{ ГПа}$ и $T = 1050^\circ\text{C}$. Химический состав: $\text{S} = 66.3 \pm 0.2 \text{ ат. \%}$; $\text{Bi} = 33.7 \pm 0.2 \text{ ат. \%}$. Образец Bi_2S_3 получен при $p = 8 \text{ ГПа}$ и $T = 1050^\circ\text{C}$ (рис. 2б). Химический состав:

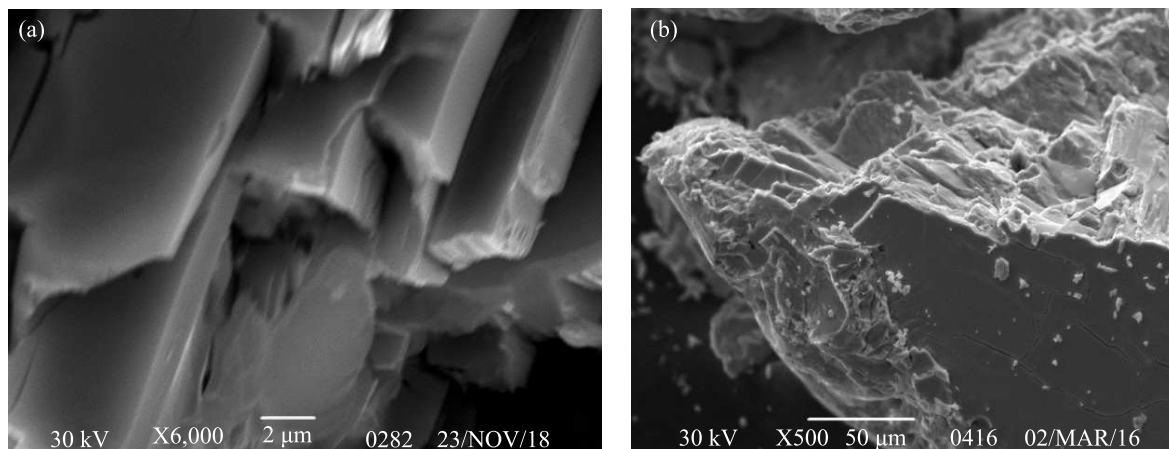


Рис. 2. Микрофотографии кристаллов BiS_2 (a) и Bi_2S_3 (b). (a) – BiS_2 , полученный при $p = 6$ ГПа и $T = 1050$ °C (# 5 из табл. 1). (b) – Bi_2S_3 , полученный при $p = 8$ ГПа и $T = 1050$ °C (# 6 из табл. 1)

Таблица 1. Области стабильности Bi_2S_3 и BiS_2

	#	T (°C)	Состав + *
$p = 6$ ГПа	1	500	Нет синтеза
	2	625	$\text{Bi}_2\text{S}_3 + \text{BiS}_2$
	3	750	$\text{Bi}_2\text{S}_3 + \text{BiS}_2$
	4	900	$\text{Bi}_2\text{S}_3 + \text{BiS}_2$
	5	1050	$\text{BiS}_2 + \text{Bi}_2\text{S}_3$
$p = 8\text{--}8.5$ ГПа	6	1050	$\text{BiS}_2 + \text{Bi}_2\text{S}_3$
	7	$1100 \rightarrow 800$ (охл. 2 ч)	$\text{BiS}_2 +$ новая метастабильная фаза BiS_2
	8	$1100 \rightarrow 830$ (охл. 2 ч)	$\text{BiS}_2 +$ новая метастабильная фаза BiS_2
	9	$1200 \rightarrow 800$ (охл. 1 ч)	$\text{BiS}_2 +$ новая метастабильная фаза BiS_2
	10	1300 (охл. 1 ч)	$\text{BiS}_2 +$ новая метастабильная фаза BiS_2

* – линии S и Bi

$S = 58.5 \pm 0.2$ ат. %; $\text{Bi} = 41.5 \pm 0.2$ ат. %. В таблице 1 приведены области стабильности Bi_2S_3 и BiS_2 .

На рентгенограммах от образцов, полученных закалкой при $p = 8\text{--}8.5$ ГПа и $T = 1100\text{--}1300$ °C, помимо рефлексов от уже известной модификации BiS_2 -I [19, 21] ($a = 15.74 \pm 0.01$ Å; $b = 4.026 \pm 0.004$ Å; $c = 11.34 \pm 0.01$ Å; $\beta = 127.51^\circ$; $D_x = 6.36$ г/см³; $V/Z = 71.31$ Å³) обнаружена система линий, свидетельствующая об образовании новой метастабильной фазы ВД BiS_2 -II. Для подтверждения этого факта был проведен эксперимент по закалке при $p = 8.5$ ГПа и $T = 1100$ °C на составе Bi–S (1 : 2). На рисунке 3 приведены рентгенограммы от образцов составов Bi_2S_3 и BiS_2 .

Совершенно очевидно, что дифрактограммы идентичны и содержат 2 системы линий: одна

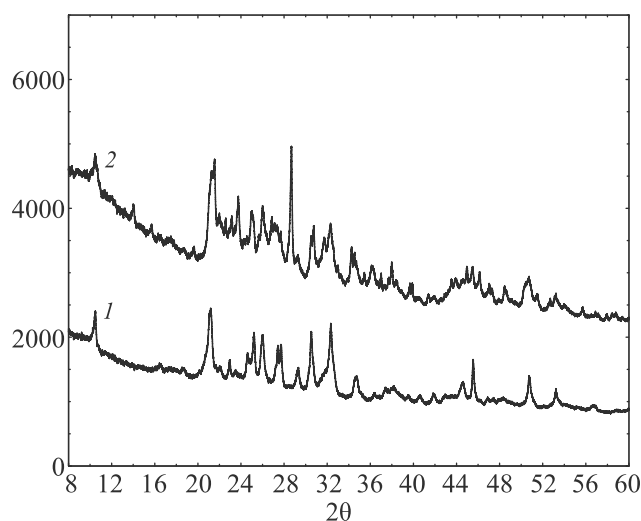
принадлежит BiS_2 -I [17, 19], другая – новой метастабильной фазе ВД BiS_2 -II.

Изучение монокристаллических сростков черного цвета с металлическим блеском из образцов # 8 и # 10 (табл. 1) в камере Бургера позволило определить симметрию и параметры ромбической элементарной ячейки BiS_2 -II, уточненных по порошковым данным. В таблице 2 приведены параметры элементарных ячеек BiS_2 -I и BiS_2 -II.

Из слоевых ($h0l$) и ($0kl$), полученных в камере Бургера на $\text{Mo}_{k\alpha}$ -излучении, симметрия фазы BiS_2 -II принадлежит к классу mmm . Однако из-за отсутствия рефлексов (hkl) нельзя однозначно выбрать пространственную группу симметрии. Полное определение атомной структуры фазы BiS_2 -II – предмет следующей публикации.

Таблица 2. Параметры элементарных ячеек BiS₂-I и BiS₂-II

Состав	p , T -условия	a (Å)	b (Å)	c (Å)	β (град)	$V/8$ (Å ³)	$\Delta V/V_0$	D_x (г/см ³)
BiS ₂ -I [17]	Нормальные условия	15.7879	4.0361	11.3330	127.562	71.38		6.35
BiS ₂ -I Наши данные	Нормальные условия	15.73	4.026	11.34	127.5	71.31		6.36
BiS ₂ -II Наши данные	Нормальные условия	8.45	10.26	5.874		63.70	0.11	7.12

Рис. 3. Рентгенограммы от образцов составов Bi₂S₃ (1) и BiS₂ (2). 1 – закалка при $p = 8$ ГПа, $T = 1300$ °C. 2 – закалка при $p = 8.5$ ГПа, $T = 1100$ °C

Следует отметить, что влияние ВД на кристаллическую структуру стибнита Bi₂S₃ из семейства соединений V₂VI₃ (V ≡ As, Sb, Bi; VI ≡ S, Se, Te), существенно отличается от того, что экспериментально наблюдается для других членов этого семейства со структурой тетрадимита [11–16], для которых найдена последовательность структурных превращений (1) при ВД, характеризующаяся перманентным моноклинным искажением исходной структуры тетрадимита и последовательным увеличением КЧ с 6 до 10. Для соединения Bi₂S₃ не обнаружено подобных фазовых переходов, а структура стибнита остается устойчивой вплоть до давлений 50–65 ГПа [15–17], при этом на рентгенограммах при $p \geq 35$ ГПа линии Bi₂S₃ ослабевают и значительно уширяются, что интерпретируется как изоструктурный переход 2-го рода или рост структурного беспорядка.

В настоящей работе обнаружено, что Bi₂S₃ при $p = 6$ –8 ГПа и $T = 625$ –1050 °C претерпевает химическое разложение с образованием BiS₂-I, а в обла-

сти $p = 8$ –8.5 ГПа и $T \geq 1100$ –1300 °C образуется новая метастабильная фаза ВД BiS₂-II с симметрией mmm . Заметим также, что халькогениды V₂VI₃ (V ≡ As, Sb, Bi; VI ≡ S, Se) демонстрируют явную тенденцию к термодинамической нестабильности с образованием халькогенидов с “неправильной” стехиометрией состава VVI₂, а, именно, AsS₂ [24], AsSe₂ [25], BiS₂-I [19], BiS₂-II [наши данные], BiSe₂ [19], но при этом слоистые структуры этих метастабильных фаз ВД различны. Можно предположить, что реакции разложения под давлением на соединения с “неправильной” стехиометрией V₂VI₃ → VVI₂ + VVI и V₂VI₃ → VVI₂ + V + VI являются общей закономерностью. Это семейство халькогенидов открывает широкие возможности для материаловедения при ВД по поиску новых перспективных материалов, в том числе новых термоэлектрических материалов и новых топологических изоляторов.

Авторы очень признательны сотрудникам Института – Н. Ф. Боровикову, Л. Ф. Куликовой, Л. М. Литягиной, Н. А. Николаеву за помощь в экспериментах при ВД.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (РНФ), грант # 19-12-00111.

1. В. В. Бражкин, А. И. Орлов, Письма в ЖЭТФ **99**(5), 325 (2014).
2. S. V. Ovsyannikov, V. V. Shchennikov, G. V. Vorontsov, A. Y. Manakov, A. Y. Likhacheva, and V. A. Kulbachinskii, J. Appl. Phys. **104**, 053713 (2008).
3. H. Zhang, C.-X. Liu, X.-L. Qi, X. Dai, Z. Fang, and C.-C. Zhang, Nature Phys. **5**, 438 (2009).
4. J. E. Moore, Nature **464**, 194 (2010).
5. M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010).
6. J. E. Moore and C. L. Kane, PhysicsWorld **24**, 32 (2011).
7. V. Sakhin, E. Kukovitsky, A. Kiiamov, R. Khasanov, Yu. Talanova, and G. Teitel'baum, JETP Lett. **109**(7), 479 (2019).

8. С. О. Фильнов, Ю. А. Сурнин, А. В. Королева, И. И. Климовских, Д. А. Естюнин, А. Ю. Варыхалов, К. А. Бокай, К. А. Кох, О. Е. Терещенко, В. А. Голяшов, Е. В. Шевченко, А. М. Шикин, *ЖЭТФ* **156**(3), 483 (2019).
9. Э. А. Атабаева, С. А. Машков, С. В. Попова, *Кристаллография* **18**, 173 (1973).
10. J. Zhao, H. Liu, L. Ehm, D. Dong, Z. Chen, and G. Gu, *J. Phys. Condens. Matter* **25**, 125602 (2013).
11. Z. Li, W. Yanchao, Lv. Jian, Y. Ma, Y. Cui, and G. Zou, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 145501 (2011).
12. Y. Ma, G. Linu, P. Zhu, H. Wang, Q. Cui, J. Liu, and Y. Ma, *J. Phys. Condens. Matter* **24**, 475403 (2012).
13. S. M. Souza, C. M. Pobbo, D. M. Triches, J. C. de Lima, T. A. Grandi, A. Polian, and M. Gauthier, *Physica B* **407**, 3781 (2012).
14. G. Liu, Zhu Li, Y. Ma, Ch. Lin, J. Liu, and Y. Ma, *J. Phys. Chem.* **117**(19), 10045 (2013).
15. I. Efthimiopoulos, J. Zhang, M. Kucway, C. Park, R. C. Ewing, and Y. Wang, *Sci. Rep.* doi: 10/1038/step 02665.
16. Z. Yu, L. Wang, Q. Hu, J. Zhao, S. Yan, K. Yang, S. Sinogeikin, G. Gu, and H.-k. Mao, *Sci. Rep.* doi: 10.1038/step 15939.
17. Y. C. Wang, Lv. Jian, L. Zhu, and Y. Ma, *Phys. Rev. B* **82**, 094116 (2010).
18. M. S. Silverman, *Inorg. Chem.* **3**, 1041 (1964).
19. A. Yamamoto, D. Hashizume, M. S. Bahramy, and Y. Tokura, *Inorg. Chem.* **54**(8), 4114 (2015); DOI: 10.1021/acs.inorgchem.5b00349.
20. S. M. Kevy, M. B. Nielsen, L. F. Lundegaard, D. Ceresoli, Y.-S. Chen, H. Reardon, P. Parisiades, and M. Bremholm, *J. Alloys Compd.* **789**, 588 (2019); DOI: 10.1016/j.jallcom.2019.03.023.
21. G. Liu, Z. Yu, H. Liu, S. A. T. Redfern, X. Feng, X. Li, Y. Ye, K. Yang, N. Hirao, S. I. Kawaguchi, X. Li, L. Wang, and Y. Ma, *J. Phys. Chem. Lett.* **9**(19), 5785 (2018).
22. I. Efthimiopoulos, J. Kemichick, X. Zhou, S. V. Khare, D. Ikuta, and Y. Wang, *J. Phys. Chem. A* **118**, 1713 (2014).
23. C. Li, J. Zhao, Q. Hu, Z. Liu, Z. Yu, and H. Yan, *J. Alloys Compd.* **688**, 329 (2016).
24. N. B. Bolotina, V. V. Brazhkin, T. I. Dyuzeva, L. M. Lityagina, L. F. Kulikova, N. A. Nikolaev, and I. A. Verin, *Crystallography Reports* **58**(1), 61 (2013).
25. L. M. Lityagina, L. F. Kulikova, I. P. Zibrov, T. I. Dyuzheva, N. A. Nikolaev, and V. V. Brazhkin, *J. Alloys Compd.* **644**, 799 (2015).

Электронные состояния ионов кобальта в слоистых кобальтитах $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$

М. С. Удинцева⁺¹⁾, А. В. Ефремов⁺, Д. Смирнов^{*}, А. Макарова[×], С. В. Наумов⁺, С. Н. Шамин⁺,
В. Р. Галахов⁺

⁺Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения РАН, 620137 Екатеринбург, Россия

^{*}Institute of Solid State and Material Physics, Dresden University of Technology, 01062 Dresden, Germany

[×]Physikalische Chemie Institut für Chemie und Biochemie, Freie Universität Berlin, 14195 Berlin, Germany

Поступила в редакцию 22 сентября 2021 г.

После переработки 22 сентября 2021 г.

Принята к публикации 23 сентября 2021 г.

В работе представлены результаты измерения рентгеновских абсорбционных K -спектров кислорода кобальтитов: $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52\pm 0.02}$ и $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24\pm 0.02}$ при температурах 300 и 440 К, что соответственно ниже и выше температуры перехода металл–изолятор. Найден эффект замещения части ионов Co^{3+} ионами Co^{2+} при уменьшении содержания кислорода в химической формуле кобальтита и, следовательно, увеличение относительной доли CoO_5 -пирамид по отношению к числу CoO_6 -октаэдров, как найдено из спектров, проявляющийся в возрастании величины энергетической щели примерно на 0.3 эВ. Линеаризованным методом маффин-тин-орбиталей в приближении локальной плотности с учетом локального кулоновского взаимодействия рассчитана зонная структура $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ и найдено, что в CoO_6 -октаэдрах $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ реализуется низкоспиновое состояние Co^{3+} -ионов, в то время как для ионов кобальта в пирамидах характерно высокоспиновое состояние.

DOI: 10.31857/S1234567821200076

Кобальтиты $\text{LnBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$ (Ln — редкоземельный элемент; $0 \leq \delta \leq 1$) характеризуются магнитными и структурными фазовыми переходами, переходами металл–изолятор и проявляют эффект магнитного сопротивления [1–3]. В оксидах кобальта ионы кобальта способны реализовать различные зарядовые и спиновые состояния в зависимости от температуры, кислородной нестехиометрии, легирования и пр. Состояния окисления (зарядовые состояния) и спиновые состояния ионов переходных элементов определяют физические, в том числе, и магнитные свойства материалов [4].

Следующие спиновые конфигурации возможны для трехвалентных ионов кобальта в октаэдрическом поле лигандов: (1) низкоспиновая (LS , $t_{2g\uparrow}^3 t_{2g\downarrow}^3 e_g^0$); (2) промежуточно спиновая (IS , $t_{2g\uparrow}^3 t_{2g\downarrow}^2 e_{g\uparrow}^1$); (3) высокоспиновая (HS , $t_{2g\uparrow}^3 t_{2g\downarrow}^1 e_{g\uparrow}^2$). Имеется корреляция между температурой спинового перехода (кроссовера) и температурой перехода металл–изолятор.

В слоистых кобальтитах $\text{LnBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ ионы Co^{3+} находятся как в CoO_6 -октаэдрах, так и CoO_5 -пирамидах. При уменьшении содержания кислорода (кобальтиты $\text{LnBaCo}_2\text{O}_{5.0}$) структурными элемента-

ми остаются лишь пирамиды, в которых находятся ионы Co^{2+} и Co^{3+} . Проблема спиновых состояний трехвалентных ионов кобальта в октаэдрах и пирамидах кобальтитов выше и ниже температуры перехода металл–изолятор является предметом интенсивной дискуссии. Обзор результатов исследований спиновых состояний представлен в наших работах [5, 6]. Основное противоречие относится к вопросу о спиновых состояниях Co^{3+} -ионов в пирамидах. Из магнитных измерений следует практически однозначный вывод о промежуточно спиновом характере Co^{3+} -ионов в пирамидах слоистых кобальтитов. Однако измерения рентгеновских абсорбционных спектров для $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ указывают на высокоспиновый характер Co^{3+} -ионов в пирамидах [7].

В настоящей работе мы сфокусировались на измерениях рентгеновских абсорбционных K -спектров кислорода двух кобальтитов: $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52\pm 0.02}$ (обозначенный как S1) и $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24\pm 0.02}$ (S2). Измерения выполнены при температурах 300 и 440 К, что соответственно ниже и выше температуры перехода металл–изолятор, составляющей для $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ 360 К [8, 1]. Следует отметить, что спин-кроссовер имеет место в определенном

¹⁾e-mail: udintseva_m@mail.ru

температурном диапазоне. Невозможно зафиксировать точную температуру изменения спинового состояния, а можно говорить только об изменении числа электронов на ионах кобальта со спиновым состоянием, отличным от исходного.

Поликристаллические образцы $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$, $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ и EuCoO_3 синтезированы твердофазным методом. Исходными компонентами для синтеза $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$ были $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$, Eu_2O_3 , BaCO_3 и Co_3O_4 . Образцы подвергали ступенчатому отжигу в интервале температур 900–1150 °C с промежуточным диспергированием. По окончании синтеза образцы медленно охлаждали в печи (со скоростью 1°/мин). Абсолютное содержание кислорода определяли методом восстановления образцов в атмосфере водорода до исходных оксидов Eu_2O_3 , BaO и металлического кобальта. Фазовый состав и кристаллическую структуру образцов устанавливали с помощью рентгеновской дифракции (дифрактометр ДРОН-2, $\text{Cr } K\alpha$ -излучение) при комнатной температуре. Кислородный индекс образца $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$, охлаждаемого вместе с печью, составил 5.52 ± 0.02 ($\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52 \pm 0.02}$). Для получения образца $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24 \pm 0.02}$ исходный порошок $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52 \pm 0.02}$ был отожжен при температуре 530 °C в течение 6 ч с последующей закалкой на воздухе.

В соответствии с данными рентгенодифракционных исследований синтезированный образец $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52 \pm 0.02}$ имеет орторомбическую структуру (пространственная группа $Pnmm$, #47); параметры кристаллической ячейки этого соединения: $a = 3.880(1) \text{ \AA}$, $b = 7.824(1) \text{ \AA}$, $c = 7.539(7) \text{ \AA}$. Образец $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24 \pm 0.02}$ тетрагонален, пространственная группа P_4/mmm , #123 и характеризуется параметрами $a = 3.902(6) \text{ \AA}$ и $c = 7.536(7) \text{ \AA}$.

Образец $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ получен из SrCO_3 , Co_3O_4 и SrCl_2 при температуре 830 °C в соответствии с данными работы [9]. $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ тетрагонален (пространственная группа P_4/nmm , #129) с параметрами $a = 3.901(2) \text{ \AA}$ и $c = 14.341(3) \text{ \AA}$.

Образец EuCoO_3 синтезирован из Eu_2O_3 и Co_3O_4 при ступенчатом отжиге в температурном интервале 900–1140 °C. Полученный образец орторомбический (пространственная группа $Pnma$, #62), параметры образца $a = 5.372(1) \text{ \AA}$, $b = 7.488(4) \text{ \AA}$ и $c = 5.259(6) \text{ \AA}$.

Рентгеновские абсорбционные O K-спектры измерены на Российско-Германской линии накопительного кольца BESSY-II в режиме полного выхода фотоэлектронов. Измерения выполнены при комнатной температуре и температуре 440 К. Спектраль-

ные интенсивности нормированы на силу тока пучка электронов в накопительном кольце. Для исключения влияния загрязнений деталей спектрометра кислород-содержащими субстанциями O K-спектры изучаемых образцов нормированы на спектр кислорода от золотой фольги, измеренный в том же энергетическом интервале.

Зонная структура $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ вычислена линейаризованным методом маффин-тин-орбиталей [10] в приближении локальной плотности с учетом локального кулоновского взаимодействия (LSDA + U) [11]. Аналогичный расчет для $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ был проведен в работе [12]. Интегрирование по зоне Бриллюэна проводилось по сетке из 48 точек в неприводимой части зоны. В базисный набор были включены следующие электронные состояния: Co (4s, 4p, 3d), O (2s, 2p, 3d), Ba (6s, 6p, 5d) и Eu (6s, 6p, 5d, 4f). Координаты атомов $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ были взяты из [13]. Локальная энергия кулоновского отталкивания U и энергия внутриатомного обмена J_H были такими же, как в [12] – 7.00 и 0.99 эВ соответственно.

На рисунке 1 показаны рентгеновские абсорбционные O K-спектры образцов кобальтитов

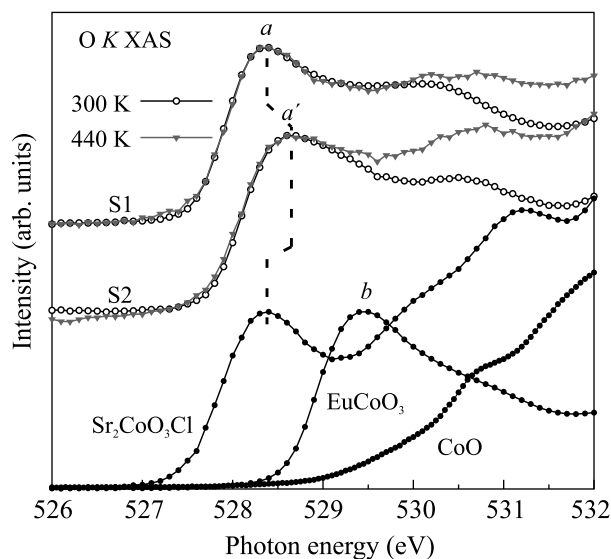


Рис. 1. Рентгеновские абсорбционные O K-спектры $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52 \pm 0.02}$ (S1) и $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24 \pm 0.02}$ (S2), измеренные при комнатной температуре и при температуре около 440 К. Для сравнения приведены спектры эталонных соединений: $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ (HS- Co^{3+} -ионы в пирамидах), EuCoO_3 (LS- Co^{3+} -ионы в октаэдрах) и CoO (HS- Co^{2+} -ионы в октаэдрах)

$\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52 \pm 0.02}$ (S1) и $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24 \pm 0.02}$ (S2), измеренные при комнатной температуре и при 440 К – температуре, значительно выше, чем темпе-

ратура перехода металл–изолятор для $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ (360 К [1]). Для сравнения приведены спектры эталонных соединений: $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$, EuCoO_3 и CoO . Рентгеновские абсорбционные O K -спектры возникают вследствие электронного перехода $\text{O } 1s \rightarrow 2p$. Вследствие смешивания $3d$ -состояний переходного элемента и $2p$ -состояний кислорода в абсорбционном O K -спектре отображаются вакантные $3d$ -состояния кобальта.

Соединение $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ имеет структуру Руддлсдена–Поппера [14]. Искаженные октаэдры CoO_5Cl из-за сравнительно больших расстояний Co–Cl (по сравнению с расстоянием Co–O) могут быть отнесены к квадратным пирамидам CoO_5 [14]. Высокоспиновый характер Co^{3+} -ионов в пирамидах $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ установлен по рентгеновским абсорбционным $\text{Co L}_{2,3}$ - и O K -спектрам [15, 16, 7]. Следовательно, структура O K -спектра от 528 до 533 эВ обусловлена переходом электронов с внутренних $\text{O } 1s$ -орбиталей на $\text{O } 2p$ -орбитали, и низкоэнергетический пик a в спектре $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ следует приписать $\text{Co } 3d_{xz}, 3d_{yz}, 3d_{xy}$ -орбиталям, проявляющимся в O K -спектрах примешивания их к $\text{O } 2p$ -орбиталям. В октаэдрах кобальтите EuCoO_3 ионы Co^{3+} , согласно работе [15], находятся в низкоспиновом состоянии, поэтому первый максимум спектра O K -поглощения b должен отображать незанятые e_g -состояния ($3d_{x^2-y^2}, 3d_{3z^2-r^2}$) [15, 16, 7]. Спектр CoO , отображающий высокоспиновые состояния ионов Co^{2+} в октаэдрах, занимает область энергий фотонов достаточно высоко относительно O K -края поглощения кобальтитов.

Пик a в спектре образца S1 совпадает по энергии с соответствующим пиком спектра $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$. Уменьшение содержания кислорода в кобальтитах (возрастание относительной доли пирамид CoO_5 по отношению к октаэдрам CoO_6) находит отклик в рентгеновских спектрах: максимум a' спектра образца S2 смещен в сторону высоких энергий примерно на 0.3 эВ относительно максимума a спектра образца S1. Подобный эффект — сдвиг максимума O K -спектра в высокоэнергетическую сторону с уменьшением содержания кислорода в кобальтитах — был обнаружен для системы $\text{PrBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$ в работе [17] при изменении δ от 0.74 до 0.5 и в работе [18] (от $\delta = 0.802$ до $\delta = 0.432$) и был объяснен изменением степени гибридизации состояний Co–O [17].

Можно предположить, что сдвиг пика поглощения O K -спектра при уменьшении относительного содержания кислорода (появление ионов Co^{2+} и увеличение относительной доли структурных фрагментов CoO_5) связан с изменением положения дна поло-

сы проводимости кобальтитов. Из оптических экспериментов для кобальтита $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ найдена энергетическая щель 0.05 эВ [19]. Для родственных кобальтитов $\text{PrBaCo}_2\text{O}_{5.5}$, и $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ из оптических экспериментов, найдены размеры щелей 0.26 эВ соответственно для [12]. Авторы работы [12] считают, что различие в величинах щели обусловлено разным качеством монокристаллов, применяемых в эксперименте. С учетом величины энергетической щели $E_{\text{gap}} \simeq 0.05$ эВ и сдвига максимума a' O K -спектра $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24 \pm 0.02}$ относительно максимума a в спектре $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52 \pm 0.02}$ на 0.30 эВ можно полагать, что энергетическая щель в дефектных по кислороду кобальтитах возрастает: для $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.25}$ $E_{\text{gap}} \simeq 0.35 \pm 0.05$ эВ.

Обратимся теперь к температурным эффектам в спектрах поглощения. В работе [7] найдено, что O K -спектр кислорода $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ с ростом температуры от 300 до 400 К незначительно меняется: сдвигается в область низких энергий примерно на 0.1 эВ. В наших экспериментах температурные изменения спектров образцов S1 и S2, как следует из рис. 1, отсутствуют. Это означает, что практически нет изменений спиновых состояний ионов кобальта. Это и не удивительно, поскольку лишь малая доля ионов Co^{3+} вовлечена в спиновый переход в этой температурной области, и изменения спиновых состояний ионов слишком малы, чтобы их можно было бы зафиксировать экспериментально с помощью спектров. Отметим, что имеет место и различие спиновых состояний ионов кобальта в PrCoO_3 и EuCoO_3 — в системах, к которым Co^{3+} -ионы находятся в кислородных октаэдрах CoO_6 . Ионы кобальта Co^{3+} в PrCoO_3 при комнатной температуре находятся в высокоспиновом состоянии [20], в то время как в EuCoO_3 Co^{3+} -ионы имеют низкоспиновый характер [15].

Для интерпретации экспериментальных результатов воспользуемся первопринципными расчетами электронной плотности состояний. На рисунке 2 показаны парциальные $\text{Co } 3d$ - и $\text{O } 2p$ -плотности электронных состояний для октаэдров и пирамид $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$. Величина энергетической щели согласно расчету составляет 0.04 эВ. Отметим, что в работе [12] для родственного кобальтита $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ величина щели, оцененная из расчетов $\text{LDA}+U$, равна 0.24 эВ. Вблизи дна зоны проводимости (незанятых электронных состояний) находятся главным образом смешанные $\text{O } 2p$ – $\text{Co } 3d$ состояния пирамид. Вклад состояний октаэдров незначителен. Величина магнитного спинового момента ионов кобальта в пирамидах, определенная из расчета плотности состояний, составляет 2.3 μ_B . Это близко к ожидаемой

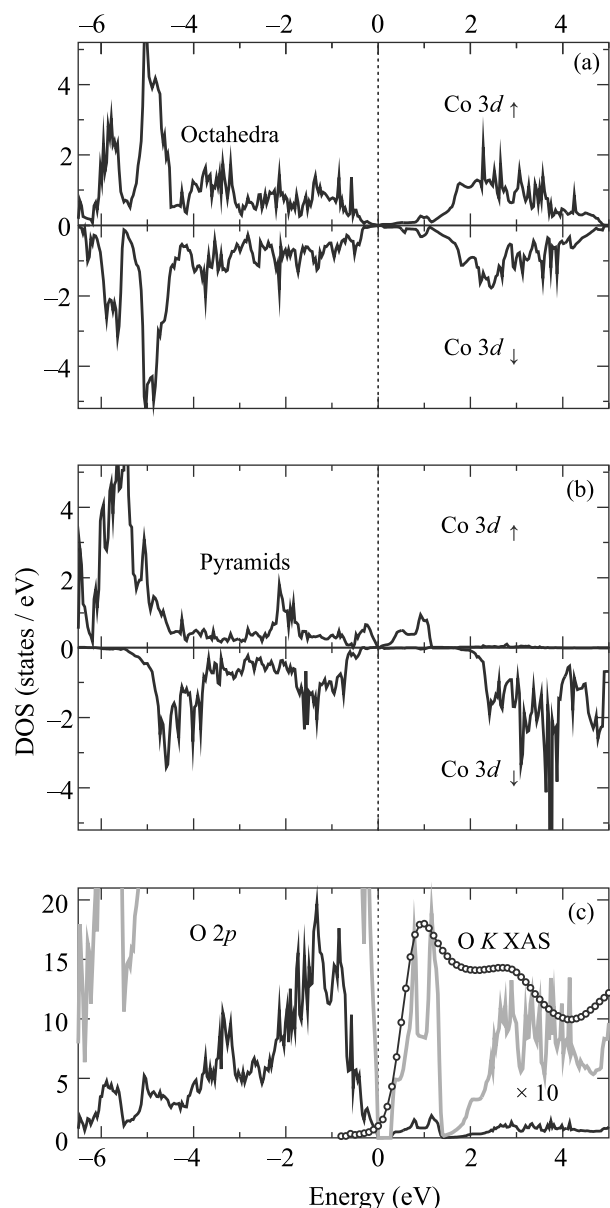


Рис. 2. Парциальные $\text{Co } 3d$ - и $\text{O } 2p$ -плотности электронных состояний $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$. $\text{Co } 3d_{\uparrow}$ и $\text{Co } 3d_{\downarrow}$ показывают плотности состояний для различной ориентации спинов и приведены для октаэдров и пирамид. Для сравнения приведен экспериментальный $\text{O } K$ -спектр $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52\pm 0.02}$, измеренный при комнатной температуре. Спектр построен в общей энергетической шкале после подгонки по энергии максимумов спектра и плотности вакантных $\text{O } 2p$ -состояний

величине $2.0 \mu_B$ для высокоспинового состояния системы Co^{3+} -ионов. В октаэдрах магнитный момент равен нулю, что означает низкоспиновое состояние.

Таким образом, с помощью рентгеновских абсорбционных K -спектров кислорода исследованы электронные состояния ионов кобальта в кобальтатах

$\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.52\pm 0.02}$ и $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.24\pm 0.02}$. Измерения выполнены при температурах 300 и 440 К, что соответственно ниже и выше температуры перехода металл–изолятор. Замещение части ионов Co^{3+} ионами Co^{2+} при уменьшении содержания кислорода в химической формуле кобальтита и, следовательно, увеличение относительной доли CoO_5 -пирамид по отношению к числу CoO_6 -октаэдров, как найдено из спектров, сопровождается возрастанием величины энергетической щели примерно на 0.3 эВ. Влияние температуры на спектры практически отсутствует. Линеаризованным методом маффин-тин-орбиталей в приближении локальной плотности с учетом локального кулоновского взаимодействия рассчитана зонная структура $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$. Найдено, что в CoO_6 -октаэдрах $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5.5}$ реализуется низкоспиновое состояние Co^{3+} -ионов, в то время как для ионов кобальта в пирамидах характерно высокоспиновое состояние.

Работа выполнена в рамках государственного задания МИНОБРНАУКИ России (темы “Электрон”, # АААА-А18-118020190098-5 и “Спин”, # АААА-А18-118020290104-2) при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, проект # 20-02-00461. Измерения рентгеновских спектров выполнены при частичной финансовой поддержке двухсторонней программы “Российско-Германская лаборатория на BESSY”. М. С. Удинцева благодарит ИФМ УрО РАН за финансовую поддержку в рамках проекта М 8-21.

1. A. Maignan, C. Martin, D. Pelloquin, N. Nguyen, and B. Raveau, *J. Solid State Chem.* **142**, 247 (1999).
2. V. P. Plakhty, Y. P. Chernenkov, S. N. Barilo, A. Podlesnyak, E. Pomjakushina, E. V. Moskvina, and S. V. Gavrilov, *Phys. Rev. B* **71**, 214407 (2005).
3. S. Roy, I. S. Dubenko, M. Khan, E. M. Condon, J. Craig, N. Ali, W. Liu, and B. S. Mitchell, *Phys. Rev. B* **71**, 024419 (2005).
4. E.-L. Rautama and M. Karppinen, *J. Solid State Chem.* **183**, 1102 (2010).
5. S. V. Naumov, V. I. Voronin, I. F. Berger, M. S. Udintseva, V. V. Mesilov, B. A. Gizhevskii, S. V. Telegin, and V. R. Galakhov, *J. Alloys Compd.* **817**, 152775 (2020).
6. В. Р. Галахов, *Физика металлов и металловедение* **10**, 91 (2021).
7. Z. Hu, H. Wu, T. C. Koethe, S. N. Barilo et al. (Collaboration), *New J. Physics* **14**, 123025 (2012).
8. C. Martin, A. Maignan, D. Pelloquin, N. Nguyen, and B. Raveau, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1421 (1997).
9. S. M. Loureiro, C. Felser, Q. Huang, and R. J. Cava, *Chem. Mater.* **12**, 3181 (2000).

10. O.K. Andersen and O. Jepsen, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2571 (1984).
11. V.I. Anisimov, J. Zaanen, and O.K. Andersen, *Phys. Rev. B* **44**, 943 (1991).
12. А. А. Махнев, Л. В. Номерованная, С. В. Стрельцов, В. И. Анисимов, С. Н. Барило, С. В. Ширяев, *Физика твердого тела* **51**, 493 (2009).
13. Z. Shi, T. Xia, F. Meng, J. Wang, J. Lian, H. Zhao, J.-M. Bassat, J.-C. Grenier, and J. Meng, *Fuel Cells* **14**, 979 (2014).
14. N. McGlothlin, D. Ho, and R. J. Cava, *Mater. Res. Bull.* **35**, 1035 (2000).
15. Z. Hu, H. Wu, M. W. Haverkort, H. H. Hsieh, H. J. Lin, T. Lorenz, J. Baier, A. Reichl, I. Bonn, C. Felser, A. Tanaka, C. T. Chen, and L. H. Tjeng, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 207402 (2004).
16. C. F. Chang, Z. Hu, H. Wu, T. Burnus, N. Hollmann, M. Benomar, T. Lorenz, A. Tanaka, H.-J. Lin, H. H. Hsieh, C. T. Chen, and L. H. Tjeng, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 116401 (2009).
17. P. Miao, X. Lin, S. Lee, Y. Ishikawa, S. Torii, M. Yonemura, T. Ueno, N. Inami, K. Ono, Y. Wang, and T. Kamiyama, *Phys. Rev. B* **95**, 125123 (2017).
18. E. Marelli, J. Gazquez, E. Poghosyan, E. Müller, D. J. Gawryluk, E. Pomjakushina, D. Sheptyakov, C. Piamonteze, D. Aegerter, T. J. Schmidt, M. Medarde, and E. Fabbri, *Angewandte Chemie International Edition* **60**, 14609 (2021).
19. А. А. Махнев, Л. В. Номерованная, А. О. Ташлыков, С. Н. Барило, С. В. Ширяев, *Физика твердого тела* **49**, 849 (2007).
20. Y. Ren, J.-Q. Yan, J.-S. Zhou, J. B. Goodenough, J. D. Jorgensen, S. Short, H. Kim, T. Proffen, S. Chang, and R. J. McQueeney, *Phys. Rev. B* **84**, 214409 (2011).

Reentrant orbital effect against superconductivity in the quasi-two-dimensional superconductor NbS₂

A. G. Lebed¹⁾

Department of Physics, University of Arizona, 1118 E. 4-th Street, Tucson, AZ 85721, USA

L. D. Landau Institute for Theoretical Physics, Russian Academy of Sciences, 117334 Moscow, Russia

Submitted 2 September 2021
Resubmitted 22 September 2021
Accepted 22 September 2021

DOI: 10.31857/S1234567821200088

It is well known that superconductivity at zero temperature is usually destroyed in any superconductor by either the upper orbital critical magnetic field, $H_{c2}(0)$, or the so-called Clogston paramagnetic limiting field, H_p [1]. These are due to the fact that, in the traditional singlet Cooper pair, the electrons possess opposite momenta and opposite spins. By present moment, there are also known several superconducting phases, which can exist above $H_{c2}(0)$ and H_p . Indeed, the paramagnetic limit, H_p , can be absent for some triplet superconductors (see, for example, UTe₂ [2–5]). Alternatively, for singlet superconductivity, the superconducting phase can exceed the Clogston limit by creating the non-homogeneous Fulde–Ferrell–Larkin–Ovchinnikov (FFLO or LOFF phase) [6, 7]. On the other hand, if $H_{c2}(0)$ tries to destroy superconductivity, then quantum effects of electron motion in a magnetic field can, in principle, restore it as the Reentrant Superconducting (RS) phase [8–17]. Although there are numerous experimental results, confirming the existence of the FFLO phase in several Q2D superconductors, there exist only a few experimental works [2–5], where the presumably RS phase revives in ultrahigh magnetic fields due to quantum effects of electron motion in a magnetic field in one compound – UTe₂. On the other hand, the above mentioned unique RS phenomenon has been theoretically predicted for a variety of Fermi surfaces: for Q1D [8–10], for isotropic 3D [11], and for Q2D superconductors [12–17].

Recently, the FFLO phase has been found by Lortz and collaborators in the Q2D compound NbS₂ in a parallel magnetic field [18]. The peculiarity of this work is that at relatively low magnetic fields (i.e., in the Ginzburg–Landau (GL) area [1]) the orbital effect of the field partially destroys superconductivity but, at high magnetic fields, everything looks like there is no

any orbital effect against superconductivity. The aim of our paper is to show that these happen due to the reentrant nature of the quantum effects of electron motion in a parallel magnetic field, theoretically predicted and considered in [12–17]. To this end, we derive the so-called gap equation, determining the upper critical field in slightly inclined magnetic field, which directly takes into account quantum effects of electron motion in a parallel magnetic field. The physical origin of the above mentioned quantum effects [8, 12] is related to the Bragg reflections from the Brillouin zone boundaries during electron motion in a parallel magnetic field. To compare the obtained results with the existing experimental data, we derive the gap equation both for a strictly parallel magnetic field and for a magnetic field with some perpendicular component. The latter is derived, for the best of our knowledge, for the first time. We use comparison of these equations with experimental data [18] to extract the so-called GL coherence lengths and in-plane Fermi velocity. These allow us to show that, indeed, in the magnetic fields range, $H \simeq 15$ T, quantum effects are very strong and completely suppress the orbital effect against superconductivity. As a result, the FFLO phase appears with the transition temperature value like for a pure 2D superconductor, which satisfies the experimental situation in NbS₂ [18]. In our opinion, this is the first firm demonstration of a reentrant nature of the orbital effect against superconductivity [8–17].

Below, we consider a Q2D conductor with the following electron spectrum, which is an isotropic one within the conducting plane:

$$\epsilon(\mathbf{p}) = \frac{(p_x^2 + p_y^2)}{2m} - 2t_{\perp} \cos(p_z d), \quad t_{\perp} \ll \epsilon_F = \frac{p_F^2}{2m}, \quad (1)$$

where m is the in-plane electron mass, $t_{\perp}$ is the integral of the overlapping of electron wave functions in a perpendicular to the conducting planes direction; ϵ_F and p_F are the Fermi energy and Fermi momentum, respec-

¹⁾e-mail: lebed@arizona.edu

tively; $\hbar \equiv 1$. Let us consider slightly inclined with respect to the conducting planes magnetic field,

$$\mathbf{H} = (0, H_{\parallel}, H_{\perp}), \quad (2)$$

since the experiments in [18] are done both for the parallel and the slightly inclined fields. For our calculations, it is convenient to choose the following gauge, where the vector-potential of the magnetic field (2) depends only on coordinate x :

$$\mathbf{A} = (0, H_{\perp}x, -H_{\parallel}x). \quad (3)$$

We apply the Gor'kov's formulation [19] of the BCS theory of superconductivity and find the following gap equation, determining the upper critical magnetic field:

$$\begin{aligned} \Delta(x) = & U \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\phi}{2\pi} \int_{|x-x_1| > \tilde{d}} \cos \phi \left[\frac{2\pi T d x_1}{v_F |\cos \phi| \sinh \left[\frac{2\pi T |x-x_1|}{v_F |\cos \phi|} \right]} \right. \\ & \times J_0 \left\{ \frac{8t_{\perp}}{\omega_{\parallel} |\cos \phi|} \sin \left[\frac{\omega_{\parallel}(x-x_1)}{2v_F} \right] \sin \left[\frac{\omega_{\parallel}(x+x_1)}{2v_F} \right] \right\} \\ & \times \cos \left[\frac{\omega_{\perp} p_F \sin \phi (x^2 - x_1^2)}{v_F \cos(\phi)} \right] \cos \left[\frac{2\mu_B H (x-x_1)}{v_F \cos(\phi)} \right] \Delta(x_1), \quad (4) \end{aligned}$$

where μ_B is the Bohr magneton, $\tilde{d}$ is a cut-off distance, U is electron-electron interactions constant; $\omega_{\perp} = eH_{\perp}/mc$, $\omega_{\parallel} = eH_{\parallel}/mc$, $H = \sqrt{H_{\parallel}^2 + H_{\perp}^2}$.

In low magnetic fields, Eq. (4) gives the GL behavior of the upper critical magnetic field, whereas at high magnetic fields, it results in the following correction, H_{FFLO}^* , to the FFLO critical magnetic field:

$$\begin{aligned} \frac{H_{\text{FFLO}} - H_{\text{FFLO}}^*}{H_{\text{FFLO}}} = & 2 \frac{l_{\perp}^2}{d^2} \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\phi}{2\pi} \int_0^{\infty} \frac{dz}{z} \\ & \times \frac{\sin^2 \left[\frac{\omega_{\parallel} z \cos \phi}{4v_F} \right]}{\cos^2(\phi)} \cos \left(\frac{2\mu_B H z}{v_F} \right) \cos \left(\frac{2\mu_B H z \cos \phi}{v_F} \right), \quad (5) \end{aligned}$$

where $l_{\perp} = 2t_{\perp}/\omega_{\parallel}(H)$, $H_{\text{FFLO}} = \pi T_c / 2\gamma \mu_B$. Numerical integration of Eq. (5) for $\omega_{\parallel}(H = 1T) = 2K$ and $2\mu_B H(H = 1T) = 1.35K$ gives the following result:

$$\frac{H_{\text{FFLO}}^* - H_{\text{FFLO}}}{H_{\text{FFLO}}} = -0.2 \frac{l_{\perp}^2}{d^2}. \quad (6)$$

Finally, taking into account that, at $H \simeq 15T$, $l_{\perp}/d \simeq 0.27$, we find that the relative change of the critical field of the appearance of the FFLO phase is very small:

$$\frac{H_{\text{FFLO}}^* - H_{\text{FFLO}}}{H_{\text{FFLO}}} = -0.015. \quad (7)$$

The author is thankful to N.N. Bagmet (Lebed), Rolf Lortz, and V. P. Mineev for useful discussions.

This is an excerpt of the article “Reentrant orbital effect against superconductivity in the quasi-two-dimensional superconductor NbS₂”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364021200017

1. A. A. Abrikosov, *Fundamentals of Theory of Metals*, Elsevier Science, Amsterdam (1988).
2. S. Ran, C. Eckberg, Q.-P. Ding, Y. Furukawa, T. Metz, S. R. Saha, I.-L. Liu, V. Zic, H. Kim, J. Paglione, and N. P. Butch, *Science* **365**, 684 (2019).
3. S. Ran, I.-L. Liu, Y. S. Eo, D. J. Campbell, P. M. Neves, W. T. Fuhrman, S. R. Saha, C. Eckberg, H. Kim, D. Graf, F. Balakirev, J. Singleton, J. Paglione, and N. P. Butch, *Nature Phys.* **15**, 1250 (2019).
4. D. Aoki, A. Nakamura, F. Honda, D. X. Li, Y. Homma, Y. Shimizu, Y. J. Sato, G. Knebel, J.-P. Brison, A. Pourret, D. Braithwaite, G. Lapertot, Q. Niu, M. Valiska, H. Harima, and J. Flouquet, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 043702 (2019).
5. G. Knebel, W. Knafo, A. Pourret, Q. Niu, M. Valiska, D. Braithwaite, G. Lapertot, M. Nardone, A. Zitouni, S. Mishra, I. Sheikin, G. Seyfarth, J.-P. Brison, D. Aoki, and J. Flouquet, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 063707 (2019).
6. A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, *Sov. Phys. JETP* **20**, 762 (1965).
7. P. Fulde and R. A. Ferrell, *Phys. Rev.* **135**, A550 (1964).
8. A. G. Lebed, *JETP Lett.* **44**, 114 (1986).
9. N. Dupuis, G. Montambaux, and C. A. R. Sa de Melo, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2613 (1993).
10. A. G. Lebed and O. Sepper, *Phys. Rev. B* **90**, 024510 (2014).
11. M. Razolt and Z. Tesanovic, *Rev. Mod. Phys.* **64**, 709 (1992).
12. A. G. Lebed and K. Yamaji *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2697 (1998).
13. A. G. Lebed, *J. of Supercond.* **12**, 453 (1999).
14. M. Miyazaki, K. Kishigi, and Y. Hasegawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **67**, L2618 (1998).
15. V. P. Mineev, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 3371 (2000).
16. V. P. Mineev, *JETP Lett.* **111**, 715 (2020) [*Pis'ma v ZhETF* **111**, 833 (2020)].
17. A. G. Lebed, *Mod. Phys. Lett. B* **34**, 2030007 (2020).
18. C.-w. Cho, J. Lyu, C. Y. Ng, J. J. He, T. A. Abdel-Baset, M. Abdel-Hafiez, and R. Lortz, *Nat. Commun.*, accepted; preprint arXiv: 2011.04880 (2020).
19. A. A. Abrikosov, L. P. Gor'kov, and I. E. Dzyaloshinskii, *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Mechanics*, Dover, N.Y. (1963).

Оптимизация достоверности считывания квантового состояния оптического кубита в ионе иттербия $^{171}\text{Yb}^+$

Н. В. Семенин^{*+1)}, А. С. Борисенко^{*+}, И. В. Заливако^{*}, И. А. Семериков^{*}, К. Ю. Хабарова^{*×+},
Н. Н. Колачевский^{*×}

⁺Московский физико-технический институт
(национальный исследовательский университет), 141701 Долгопрудный, Россия

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

[×]Российский квантовый центр, 121205 Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 сентября 2021

После переработки 21 сентября 2021 г.

Принята к публикации 22 сентября 2021 г.

Рассмотрена схема детектирования состояния оптического кубита в ионе иттербия $^{171}\text{Yb}^+$, построенная на основе лазерной системы для охлаждения. Получены аналитические выражения для достоверности считывания с учетом засветки. Произведена численная оптимизация параметров эксперимента для достижения минимальной ошибки считывания. Обнаружена верхняя граница достоверности, равная 99.4%, связанная с переходным процессом в начале измерительной процедуры. Приведены характерные значения параметров детектирования, обеспечивающие достаточную близость к максимальному значению.

DOI: 10.31857/S123456782120009X

1. Введение. Прогресс в области создания лазерных источников, более совершенных методов лазерного охлаждения [1–4], а также создания ионных ловушек Пауля с низким уровнем нагрева [5] и возможностью реконфигурации захваченных ионных кристаллов [6] привел к растущему интересу к ультрахолодным ионам как с точки зрения фундаментальной физики, так и прикладных областей. Ионы, например, лежат в основе одних из самых точных оптических атомных часов [7], используются для поиска дрейфа фундаментальных констант и проверки других фундаментальных теорий [8–10], а также являются одной из наиболее перспективных платформ для создания квантовых вычислителей и симуляторов [6, 11–13]. Причиной тому являются ярко выраженные квантовые свойства одиночных ионов, сильное кулоновское взаимодействие захваченных частиц друг с другом, что обеспечивает удобный способ их квантового перепутывания, а также удобство удержания и перемещения заряженных частиц при помощи переменных и статических электрических полей.

Ион $^{171}\text{Yb}^+$ сегодня является одним из наиболее распространенных ионов в области стандартов частоты как микроволнового [14], так и оптического

диапазона [15–17], а также лежит в основе многих прототипов квантовых вычислителей [6, 11]. Это определяется его электронной структурой, в которой присутствует как удобный микроволновый переход на частоте 12.6 ГГц, позволяющий эффективно кодировать квантовую информацию и служить частотной опорой, так и два узких оптических перехода на длинах волн 435 нм (E2) и 467 нм (E3), которые могут служить для тех же целей. При этом, лазерные источники для охлаждения и считывания квантового состояния этого иона, а также для возбуждения указанных выше переходов, являются относительно простыми и доступны коммерчески. С точки зрения квантовых вычислений большинство современных исследователей используют именно микроволновый переход между сверхтонкими компонентами основного состояния иона в качестве кубита, в то время как в области метрологии активно используются как микроволновый, так и оба упомянутых оптических перехода.

Наша группа ведет исследование квадрупольного перехода $^2S_{1/2}(F=0, m_F=0) \rightarrow ^2D_{3/2}(F=2, m_F=0)$ в ионе $^{171}\text{Yb}^+$ на длине волны 435 нм и имеющего естественную ширину 3 Гц. В частности, был разработан транспортируемый оптический стандарт частоты на данном переходе [17], а также предложено кодирование квантовой информации в

¹⁾e-mail: semeninnv@gmail.com

нем [18] и проведены первые эксперименты по осуществлению однокубитных операций. При этом одной из важных экспериментальных процедур, необходимых как для реализации квантового вычислителя, так и часов, является считывание состояния иона после возбуждения этого перехода [19]. Обычно достоверность считывания оптических кубитов превышает достоверность микроволновых кубитов за счет отсутствия вклада нерезонансных эффектов [20], однако в данном ионе ряд нерезонансных эффектов тем не менее может приводить к дополнительным ошибкам этой операции, что обуславливает важность исследования данного процесса. Достоверность этой операции вносит вклад как в общую достоверность результата выполнения квантового алгоритма в случае квантового компьютера (особенно при наличии в алгоритме промежуточных измерений [21]), так и в стабильность сигнала оптического стандарта частоты.

В данной работе мы теоретически исследуем достоверность процедуры считывания состояния оптического кубита на квадрупольном переходе в ионе $^{171}\text{Yb}^+$ в зависимости от различных параметров эксперимента, таких как эффективность сбора фотонов, время считывания, уровень паразитной засветки, определяем достижимые при разумных параметрах значения ошибок, а также вычисляем фундаментальный предел достоверности этой операции, проистекающий из особенностей процедуры считывания в этом ионе. Нами был расширен формализм исследования достоверности считывания, описанный в [22], что позволило учесть также явления засветки, а также ошибки, возникающие в начальный момент установления равновесной населенности уровней, вносящие существенный вклад в итоговую достоверность.

Полученные результаты верны не только для оптического кубита на ионе иттербия, но и для более сложных методов кодирования квантовой информации, например – оптического кудита [23] на базе квадрупольного перехода в этом ионе. Процедура считывания такого кудита практически идентична считыванию кубита, за исключением того, что она повторяется несколько раз с приложением дополнительных промежуточных лазерных импульсов.

2. Теоретическая модель. Оптический кубит в ионе иттербия основан на квадрупольном оптическом переходе $^2S_{1/2}(F=0) \rightarrow ^2D_{3/2}(F=2)$ с длиной волны 435 нм. Процедура детектирования состояния представлена на схеме уровней (рис. 1). Охлаждающий лазерный пучок с длиной волны 369 нм имеет две частотные компоненты, связывающие сверхтон-

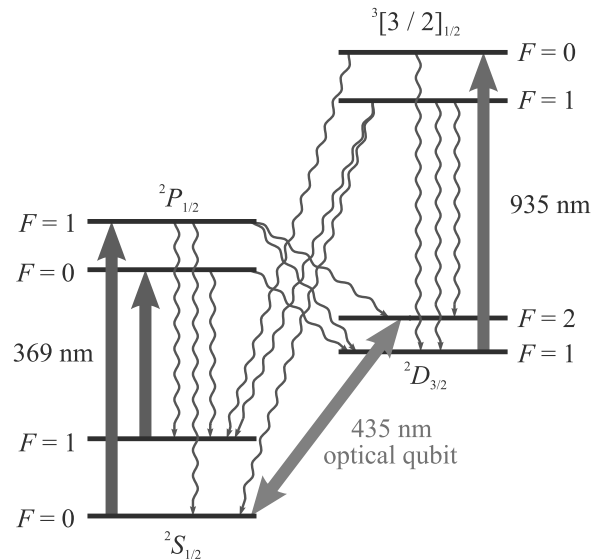


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема детектирования состояния кубита в ионе $^{171}\text{Yb}^+$. Волнистые линии обозначают разрешенные спонтанные переходы

кие уровни состояний $^2S_{1/2}$ и $^2P_{1/2}$. Перекачивающий пучок с длиной волны 935 нм связывает состояния $^2D_{3/2}(F=1)$ и $^3[3/2]_{1/2}(F=0)$ для предотвращения заселения уровня $^2D_{3/2}(F=1)$. Если кубит в начале процедуры считывания находился в состоянии $^2S_{1/2}$, ион начнет эффективно рассеивать фотоны с длиной волны 369 нм. В случае же, если кубит был в состоянии $^2D_{3/2}$, рассеяние происходить не будет. Поэтому нижнее и верхнее состояния кубита называются соответственно светлым (bright) и темным (dark). Фотоны флуоресценции во время этой операции собираются некоторой оптической системой и регистрируются при помощи высокочувствительного детектора, после чего на основании количества обнаруженных фотонов принимается решение о результате измерения. Это чаще всего делается обычным сравнением зарегистрированного количества фотонов с некоторым пороговым значением – дискриминатором.

Дальнейшее описание динамики процесса детектирования основано на формализме скоростных уравнений. Такое рассмотрение справедливо в том случае, когда когерентными эффектами можно пренебречь. В частности, образование лямбда-схем из магнитных подуровней перехода $^2S_{1/2}(F=1) \rightarrow ^2P_{1/2}(F=0)$ приводит в общем случае к возникновению эффекта когерентного пленения населенности между ними и, соответственно, снижению эффективности охлаждения и сигнала флуоресценции. По этой причине в экспериментах с данным ионом он обычно находится в магнитном поле с индукцией около

5 Гс, которое дестабилизирует суперпозиционные состояния и подавляет когерентные эффекты [24, 25]. Будем считать, что это условие выполнено. Помимо этого, примем предположение о равномерном распределении интенсивности волны лазеров по всем поляризациям.

Пусть ион изначально находится в светлом состоянии $^2S_{1/2}(F = 0)$. В дальнейшем для краткости будем обозначать термы и их сверхтонкие компоненты символами L и $L(F)$ соответственно, где L и F взяты из соответствующих стандартных обозначений. Рассмотрим ситуации, в которых ион из светлого состояния самопроизвольно переходит в темное, что приводит к возникновению ошибок считывания. Установление равновесия в системе после приложения лазерных полей можно рассмотреть в два этапа. Первый этап – взаимодействие с охлаждающим лазером, в результате которого практически вся населенность переносится на уровни $S(1)$ и $P(0)$ за время порядка $1/\Gamma_P$, где Γ_P – ширина уровня P . В главном порядке на данном этапе пренебрежем распадом в состояние D , который происходит с относительной вероятностью $\alpha_P = 0.5\%$, а также нерезонансными переходами. Это приближение справедливо, если параметр насыщения охлаждающего пучка сравним с единицей. Поскольку состояние $P(1)$ является единственным сверхтонким уровнем терма P , с которого разрешен переход в темное состояние $D(2)$, а его населенность на данном этапе сначала меняется от нуля до некоторого предельного значения, затем снова падает до нуля за счет распада в $S(1)$, существует конечная вероятность по окончании первого этапа оказаться в темном состоянии. Вероятности переходов между сверхтонкими уровнями $F \rightarrow F'$ выражаются через полную вероятность перехода $J \rightarrow J'$ по формуле [26]

$$\Gamma_{FF'} = (2F' + 1)(2J + 1) \left\{ \begin{matrix} J & F & I \\ F' & J' & 1 \end{matrix} \right\}^2 \Gamma_{JJ'}, \quad (1)$$

где $I = 1/2$ – спин ядра изотопа ^{171}Yb . С учетом (1) вышеупомянутая вероятность представляется в виде

$$p_{bd} = \frac{5}{6} \alpha_P \Gamma_P \int_0^{+\infty} \rho_{P(1)}(t) dt, \quad (2)$$

где под $\rho_{L(F)}$ подразумевается населенность уровня $L(F)$. Для вычисления этого интеграла достаточно записать скоростное уравнение для суммарной населенности $S(0)$ и $P(1)$:

$$\dot{\rho}_{P(1)} + \dot{\rho}_{S(0)} = -\frac{2}{3} \Gamma_P \rho_{P(1)} \quad (3)$$

и проинтегрировать его по времени с учетом граничных условий $\rho_{P(1)}(0) = \rho_{P(1)}(+\infty) = \rho_{S(0)}(+\infty) = 0$, $\rho_{S(0)}(0) = 1$:

$$-1 = -\frac{2}{3} \Gamma_P \int_0^{+\infty} \rho_{P(1)}(t) dt, \quad (4)$$

отсюда

$$p_{bd} = \frac{5}{4} \alpha_P. \quad (5)$$

Второй этап – установление равновесия в циклической системе уровней $S(1)$, $P(0)$, $D(1)$ и $[3/2](0)$ с учетом перекачивающего излучения. Скоростные уравнения для этого случая имеют вид:

$$\dot{\rho}_{S(1)} = \Gamma_{UV} \left(\rho_{P(0)} - \frac{\rho_{S(1)}}{3} \right) + (1 - \alpha_P) \Gamma_P \rho_{P(0)} + (1 - \alpha_{[3/2]}) \Gamma_{[3/2]} \rho_{[3/2](0)}; \quad (6)$$

$$\dot{\rho}_{P(0)} = \Gamma_{UV} \left(\frac{\rho_{S(1)}}{3} - \rho_{P(0)} \right) - \Gamma_P \rho_{P(0)}; \quad (7)$$

$$\dot{\rho}_{D(1)} = \Gamma_{IR} \left(\rho_{[3/2](0)} - \frac{\rho_{D(1)}}{3} \right) + \alpha_P \Gamma_P \rho_{P(0)} + \alpha_{[3/2]} \Gamma_{[3/2]} \rho_{[3/2](0)}; \quad (8)$$

$$\dot{\rho}_{[3/2](0)} = \Gamma_{IR} \left(\frac{\rho_{D(1)}}{3} - \rho_{[3/2](0)} \right) - \Gamma_{[3/2]} \rho_{[3/2](0)}. \quad (9)$$

Коэффициенты $1/3$ учитывают статвеса состояний с $F = 1$. В данных уравнениях $\Gamma_{[3/2]}$ – ширина уровня $[3/2]$, $\alpha_{[3/2]} = 1.8\%$ – относительная вероятность перехода $[3/2] \rightarrow D$, а скорости накачки Γ_{UV} и Γ_{IR} определяются следующими формулами:

$$\Gamma_{UV} = \Gamma_P \frac{s_{UV}}{3} \frac{(\Gamma_P/2)^2}{(\Gamma_P/2)^2 + \delta_{UV}^2}, \quad (10)$$

$$\Gamma_{IR} = \alpha_{[3/2]} \Gamma_{[3/2]} \frac{s_{IR}}{3} \frac{(\Gamma_{[3/2]}/2)^2}{(\Gamma_{[3/2]}/2)^2 + \delta_{IR}^2}, \quad (11)$$

где s_{UV} , s_{IR} – параметры насыщения охлаждающего и перекачивающего пучков соответственно, δ_{UV} , δ_{IR} – их отстройки от центра линии. Коэффициенты $1/3$ учитывают равномерное распределение интенсивности лазерных полей по поляризациям. В равновесии при нулевых отстройках населенности уровней $S(1)$ и $D(1)$, в приближении $\alpha_P, \alpha_{[3/2]} \ll 1$, равны

$$\rho_{S(1)} = \frac{9 + 3s_{UV}}{9 + 4s_{UV} + \varepsilon}, \quad (12)$$

$$\rho_{D(1)} = \frac{\varepsilon}{9 + 4s_{UV} + \varepsilon}, \quad (13)$$

где ε – поправка на перекачивающее излучение, равная

$$\varepsilon = 9 \frac{\alpha_P}{\alpha_{[3/2]}} \frac{\Gamma_P}{\Gamma_{[3/2]}} \frac{s_{UV}}{s_{IR}}. \quad (14)$$

Потеря иона из основного цикла осуществляется через нерезонансно заселяющиеся состояния $P(1)$ и $[3/2](1)$, населенность которых можно получить из формул (10) и (11), подставив отстройки, равные сверхтонким расщеплениям соответствующих термов (Δ_P и $\Delta_{[3/2]}$), и воспользовавшись приближениями $\Delta_P \gg \Gamma_P$, $\Delta_{[3/2]} \gg \Gamma_{[3/2]}$:

$$\rho_{P(1)} = \rho_{S(1)} \frac{\Gamma_{UV}}{\Gamma_P} \left(\frac{\Gamma_P}{2\Delta_P} \right)^2, \quad (15)$$

$$\rho_{[3/2](1)} = \rho_{D(1)} \frac{\Gamma_{IR}}{\Gamma_{[3/2]}} \left(\frac{\Gamma_{[3/2]}}{2\Delta_{[3/2]}} \right)^2. \quad (16)$$

Скорость ухода из цикла тогда будет равна

$$\begin{aligned} \gamma_b &= \frac{5}{6} (\alpha_P \Gamma_P \rho_{P(1)} + \alpha_{[3/2]} \Gamma_{[3/2]} \rho_{[3/2](1)}) = \\ &= \frac{5}{6} \frac{\alpha_P \Gamma_P s_{UV}}{9 + 4s_{UV} + \varepsilon} \left[(3 + s_{UV}) \left(\frac{\Gamma_P}{2\Delta_P} \right)^2 + \right. \\ &\quad \left. + 3\alpha_{[3/2]} \left(\frac{\Gamma_{[3/2]}}{2\Delta_{[3/2]}} \right)^2 \right]. \end{aligned} \quad (17)$$

Теперь пусть ион изначально находится в темном состоянии $D(2)$. Существует два механизма ухода иона из него. Первый из них – нерезонансное возбуждение уровня $[3/2](1)$ с последующим уходом в основной цикл. Этот процесс происходит со скоростью

$$\Gamma_{IR} \left(\frac{\Gamma_{[3/2]}}{2(\Delta_{[3/2]} + \Delta_D)} \right)^2. \quad (18)$$

Второй механизм – прямой квадрупольный распад, происходящий со скоростью Γ_Q . Таким образом, для скорости распада темного состояния получаем

$$\gamma_d = \Gamma_Q + \frac{s_{IR}}{3} \alpha_{[3/2]} \Gamma_{[3/2]} \left(\frac{\Gamma_{[3/2]}}{2(\Delta_{[3/2]} + \Delta_D)} \right)^2. \quad (19)$$

Пусть полная эффективность сбора фотонов равна η , а время детектирования – τ_D . В модели экспоненциального распада состояния статистика фотонов для темного ($p_d(n)$) и светлого ($p_b(n)$) состояний была найдена в [22]. Модификация этой статистики с учетом (5) имеет вид:

$$\begin{aligned} p_d(n) &= e^{-\alpha_d \lambda_0} \left[\delta_n + \right. \\ &\quad \left. + \frac{\alpha_d}{(1 - \alpha_d)^{n+1}} I(n + 1, (1 - \alpha_d) \lambda_0) \right], \end{aligned} \quad (20)$$

$$\begin{aligned} p_b(n) &= \frac{5}{4} \alpha_P p_d(n) + \left(1 - \frac{5}{4} \alpha_P \right) \left[\frac{e^{-(1+\alpha_b) \lambda_0} \lambda_0^n}{n!} + \right. \\ &\quad \left. + \frac{\alpha_b}{(1 + \alpha_b)^{n+1}} I(n + 1, (1 + \alpha_b) \lambda_0) \right], \end{aligned} \quad (21)$$

где $\lambda_0 \propto \tau_D$ – среднее количество собранных фотонов на длине волны охлаждающего лазера для случая, когда ион все время τ_D находится в основном цикле, $\alpha_b = \gamma_b \tau_D / \lambda_0$, $\alpha_d = \gamma_d \tau_D / \lambda_0$, а функция I – нормализованная нижняя неполная гамма-функция, равная по определению

$$I(z, a) = \frac{1}{\Gamma(z)} \int_0^a t^{z-1} e^{-t} dt. \quad (22)$$

В присутствие засветки, статистика которой принимается пуассоновской со средним $\lambda_{DC} \propto \tau_D$, итоговая статистика будет представлять собой свертку:

$$p'_d(n) = \sum_{m=0}^n p_d(m) \frac{e^{-\lambda_{DC}} \lambda_{DC}^{n-m}}{(n-m)!}, \quad (23)$$

аналогичная формула верна и для светлого состояния. Для выражений (20) и (21) эта свертка принимает вид

$$\begin{aligned} p'_d(n) &= e^{-\alpha_d \lambda_0} \left[\frac{e^{-\lambda_{DC}} \lambda_{DC}^n}{n!} + \frac{\alpha_d e^{-\alpha_d \lambda_{DC}}}{(1 - \alpha_d)^{n+1}} \times \right. \\ &\quad \left. \times Q(n + 1, (1 - \alpha_d) \lambda_{DC}, (1 - \alpha_d)(\lambda_{DC} + \lambda_0)) \right], \end{aligned} \quad (24)$$

$$\begin{aligned} p'_b(n) &= \frac{5}{4} \alpha_P p'_d(n) + \\ &+ \left(1 - \frac{5}{4} \alpha_P \right) \left[\frac{e^{-(1+\alpha_b) \lambda_0 - \lambda_{DC}} (\lambda_{DC} + \lambda_0)^n}{n!} + \right. \\ &\quad \left. + \frac{\alpha_b e^{\alpha_b \lambda_{DC}}}{(1 + \alpha_b)^{n+1}} \times \right. \\ &\quad \left. \times Q(n + 1, (1 + \alpha_b) \lambda_{DC}, (1 + \alpha_b)(\lambda_{DC} + \lambda_0)) \right], \end{aligned} \quad (25)$$

где функция Q определяется как

$$Q(z, a, b) = \frac{1}{\Gamma(z)} \int_a^b t^{z-1} e^{-t} dt. \quad (26)$$

На практике для определения состояния иона, в котором он находился перед началом процесса детектирования, подсчитывается количество фотонов, зарегистрированных за время измерения τ_D , и сравнивается с дискриминатором – пороговым числом D собранных фотонов, выше которого состояние классифицируется как светлое, в противном случае – как темное. Тогда теоретическая достоверность корректной идентификации начального состояния кубита выражается формулой

$$F_d = \sum_{n=0}^D p'_d(n) \quad (27)$$

для темного состояния и

$$F_b = 1 - \sum_{n=0}^D p'_b(n) \quad (28)$$

для светлого. Окончательные выражения после подстановки (24) и (25) принимают вид

$$F_d = e^{-\alpha_d \lambda_0} \left[e^{\alpha_d \lambda_0} \tilde{Q}(D+1, \lambda_{DC} + \lambda_0) + \frac{e^{-\alpha_d \lambda_{DC}}}{(1 - \alpha_d)^{D+1}} \times \right. \\ \left. \times Q(D+1, (1 - \alpha_d) \lambda_{DC}, (1 - \alpha_d)(\lambda_{DC} + \lambda_0)) \right], \quad (29)$$

$$F_b = 1 - \frac{5}{4} \alpha_P F_d - \left(1 - \frac{5}{4} \alpha_P \right) \left[\tilde{Q}(D+1, \lambda_{DC}) - \frac{e^{\alpha_b \lambda_{DC}}}{(1 + \alpha_b)^{D+1}} \times \right. \\ \left. \times Q(D+1, (1 + \alpha_b) \lambda_{DC}, (1 + \alpha_b)(\lambda_{DC} + \lambda_0)) \right], \quad (30)$$

где

$$\tilde{Q}(z, a) = \frac{1}{\Gamma(z)} \int_a^{+\infty} t^{z-1} e^{-t} dt. \quad (31)$$

3. Численная оптимизация параметров считывания. Среднее число считанных фотонов за время τ_D пропорционально населенности уровня P_0 :

$$\lambda_0 = \eta \tau_D \Gamma_P \rho_{P(0)} = \eta \tau_D \Gamma_P \frac{s_{UV}}{9 + 4s_{UV} + \varepsilon}. \quad (32)$$

Отсюда находим α_b и α_d :

$$\alpha_b = \frac{5}{6} \frac{\alpha_P}{\eta} \left[(3 + s_{UV}) \left(\frac{\Gamma_P}{2\Delta_P} \right)^2 + 3\alpha_{[3/2]} \times \right. \\ \left. \times \left(\frac{\Gamma_{[3/2]}}{2\Delta_{[3/2]}} \right)^2 \right], \quad (33)$$

$$\alpha_d = \frac{9 + 4s_{UV} + \varepsilon}{\eta \Gamma_P s_{UV}} \left[\Gamma_Q + \frac{s_{IR}}{3} \alpha_{[3/2]} \Gamma_{[3/2]} \times \right. \\ \left. \times \left(\frac{\Gamma_{[3/2]}}{2(\Delta_{[3/2]} + \Delta_D)} \right)^2 \right]. \quad (34)$$

Засветку будем характеризовать коэффициентом засветки N , равным отношению λ_{DC}/λ_0 :

$$\lambda_{DC} = N \lambda_0. \quad (35)$$

Поскольку оба количества фотонов пропорциональны времени детектирования, N от него не зависит.

Численные значения атомных параметров:

$$\Gamma_P = 2\pi \cdot 19.6 \text{ МГц}, \quad \Gamma_{[3/2]} = 2\pi \cdot 4.2 \text{ МГц}; \\ \alpha_P = 0.5 \cdot 10^{-2}, \quad \alpha_{[3/2]} = 1.8 \cdot 10^{-2}; \\ \Delta_P = 2\pi \cdot 2.105 \text{ ГГц}, \quad \Delta_{[3/2]} = 2\pi \cdot 4.2 \text{ ГГц}; \\ \Gamma_Q = 2\pi \cdot 3.02 \text{ Гц}, \quad \Delta_D = 2\pi \cdot 0.86 \text{ ГГц}.$$

Для характерных значений параметров насыщения $s_{UV}, s_{IR} = 1$ и эффективности считывания $\eta = 10^{-3}$ выражения (33) и (34) равны соответственно

$$\alpha_b = 4 \cdot 10^{-4}, \quad \alpha_d = 4 \cdot 10^{-3}. \quad (36)$$

Результаты численной оптимизации, изложенной далее, слабо зависят от параметров насыщения (при условии, что они не слишком малы), поэтому в дальнейшем примем их значения постоянными и равными $s_{UV}, s_{IR} = 1$.

Общая достоверность считывания равна минимальной из двух достоверностей (29), (30) и достигает оптимального значения при их равенстве:

$$F_d = F_b. \quad (37)$$

Данное уравнение можно численно решить относительно τ_D при фиксированном D , а затем максимизировать F_d или F_b по D при оптимальном времени $\tau_D(D)$, либо, что то же самое, минимизировать ошибку $1 - F_{b(d)}$. Существование оптимального значения D при конечной засветке следует из рис. 2, на

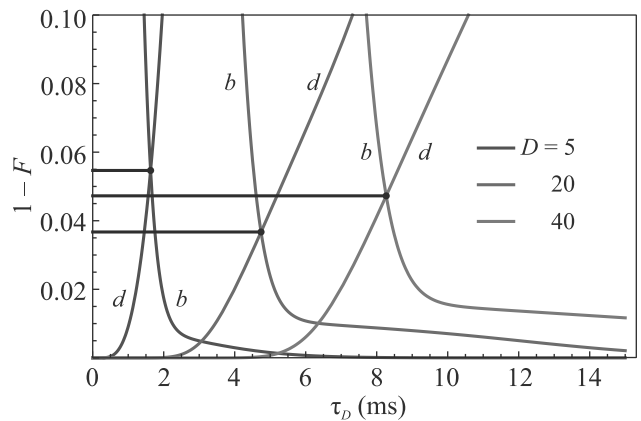


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость ошибки считывания от τ_D при различных значениях D . Буквы b и d указывают на графики для светлого и темного состояний соответственно. Точки пересечения графиков — оптимальные ошибки

котором видна немонотонная зависимость оптимальной (по τ_D) ошибки от D . При построении взяты следующие значения параметров: $\eta = 10^{-3}, N = 0.3$.

Таким образом можно для каждого η и N выбрать оптимальную пару (τ_D, D) и вычислить минимальную для данного набора параметров величину $1 - F$. Результаты оптимизации представлены на рис. 3–5.

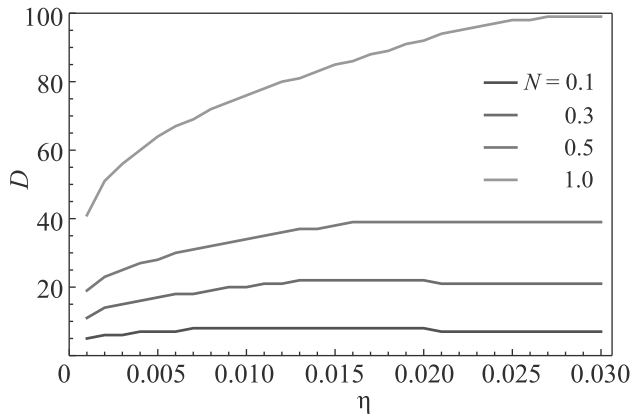


Рис. 3. (Цветной онлайн) Оптимальные значения порога дискриминатора

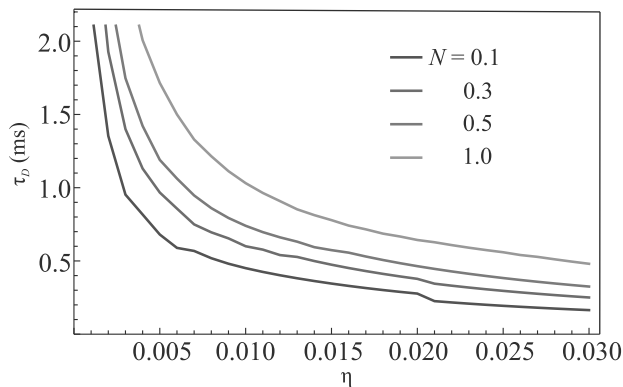


Рис. 4. (Цветной онлайн) Оптимальные значения времени детектирования

Из графиков на рис. 3, 4 следует особенность, заключающаяся в том, что при повышении η оптимальный порог дискриминатора выходит на постоянное значение, зависящее только от N , а время детектирования уменьшается таким образом, чтобы оно компенсировало увеличение η , и среднее количество собранных фотонов оставалось примерно постоянным. При увеличении уровня засветки монотонно увеличивается как порог дискриминатора, так и оптимальное время, что находится в согласии с тем рассуждением, что при увеличении λ_{DS} необходимо большее время детектирования, чтобы “разнести” пики распределения на уровнях λ_{DS} и $\lambda_{DS} + \lambda_0$ для темного и светлого состояний соответственно (см. слагаемые вида распределения Пуассона в формулах (24)

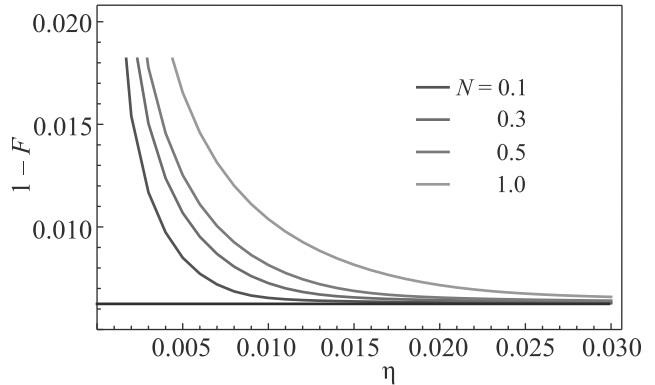


Рис. 5. (Цветной онлайн) Оптимальные значения ошибки детектирования. Пунктирной линией обозначен уровень $p_{bd} = 0.6\%$

и (25)), и, следовательно, больший порог дискриминатора.

Анализ графиков на рис. 5 позволяет указать на два момента. Первый – существование верхней границы оптимальной достоверности, соответствующей вероятности p_{bd} . Таким образом, при данной схеме считывания эта вероятность представляет собой фундаментальное ограничение. Второй момент – эта граница достигается достаточно быстро в терминах эффективности сбора в стандартных условиях засветки (при уровне засветки $N = 0.5$ и эффективности сбора $\eta = 1\%$ ошибка составляет 0.8% при граничном значении $p_{bd} = 0.6\%$). Однако и при больших засветках ошибка остается на уровне меньше процента, если эффективность сбора больше процента.

4. Заключение. В данной работе было проанализировано, что несмотря на небольшое естественное время жизни верхнего кубитного состояния и нерезонансные процессы, возможно достижение достоверности считывания оптического кубита на квадрупольном переходе в ионе иттербия больше 99% при разумных параметрах эксперимента. Было также показано, что при данной технике считывания, повсеместно используемой сегодня в оптических часах на этом переходе, а также в экспериментах по квантовым вычислениям на оптическом кубите, на начальном этапе процедуры происходит нежелательное накачивание светлого состояния в темное, что определяет предельную достижимую достоверность считывания в 99.4% . При необходимости дальнейшего увеличения достоверности эту проблему можно решить, например, переводя перед считыванием населенность из уровня $^2S_{1/2}(F=0)$ в $^2S_{1/2}(F=1)$ при помощи микроволнового импульса методом быстрого адиабатического прохода (rapid adiabatic passage), что не накладывает каких-либо серьезных требо-

ваний на стабильность частоты и амплитуды прикладываемого поля и не сильно усложняет установку. Также эти результаты могут использоваться для оценки достоверности считывания не только кубита, но и кудита на базе данного перехода.

Оптимизация и исследование зависимости достоверности от различных параметров эксперимента были выполнены А.С.Борисенко при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках научного проекта #20-32-90020. Разработка теоретической модели процедуры считывания была осуществлена остальными соавторами при финансовой поддержке Российского научного фонда в рамках гранта #19-12-00274.

1. R. Lechner, C. Maier, C. Hempel, P. Jurcevic, B.P. Lanyon, T. Monz, M. Brownnutt, R. Blatt, and C.F. Roos, *Phys. Rev. A* **93**, 1 (2016).
2. L.A. Akopyan, I.V. Zalivako, K.E. Lakhmanskii, K.Y. Khabarova, and N.N. Kolachevsky, *JETP Lett.* **112**, 585 (2020).
3. J.S. Chen, K. Wright, N.C. Pienti, D. Murphy, K.M. Beck, K. Landsman, J.M. Amini, and Y. Nam, *Phys. Rev. A* **102**, 43110 (2020).
4. M.K. Joshi, A. Fabre, C. Maier, T. Brydges, D. Kiesenhofer, H. Hainzer, R. Blatt, and C.F. Roos, *New J. Phys.* **22**, 103013 (2020).
5. M. Niedermayr, K. Lakhmanskii, M. Kumph, S. Partel, J. Edlinger, M. Brownnutt, and R. Blatt, *New J. Phys.* **16** (2014).
6. J.M. Pino, J.M. Dreiling, C. Figgatt, J.P. Gaebler, S.A. Moses, M.S. Allman, C.H. Baldwin, M. Foss-Feig, D. Hayes, K. Mayer, C. Ryan-Anderson, and B. Neyenhuis, *Nature* **592**, 209 (2021).
7. S.M. Brewer, J.S. Chen, A.M. Hankin, E.R. Clements, C.W. Chou, D.J. Wineland, D.B. Hume, and D.R. Leibbrandt, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 1 (2019).
8. T. Rosenband, D.B. Hume, P.O. Schmidt et al. (Collaboration), *Science* **319**, 1808 (2008).
9. R. Lange, N. Huntemann, J.M. Rahm, C. Sanner, H. Shao, B. Lipphardt, C. Tamm, S. Weyers, and E. Peik, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 11102 (2021).
10. V.A. Dzuba, V.V. Flambaum, M.S. Safronova, S.G. Porsev, T. Pruttivarasin, M.A. Hohensee, and H. Häffner, *Nat. Phys.* **12**, 465 (2016).
11. K. Wright, K.M. Beck, S. Debnath et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **10**, 1 (2019).
12. J. Zhang, G. Pagano, P.W. Hess, A. Kyprianidis, P. Becker, H. Kaplan, A.V. Gorshkov, Z.X. Gong, and C. Monroe, *Nature* **551**, 601 (2017).
13. I. Pogorelov, T. Feldker, C.D. Marciniak et al. (Collaboration), *PRX Quantum* **2**, 1 (2021).
14. P.D.D. Schwindt, Y.Y. Jau, H. Partner, A. Casias, A.R. Wagner, M. Moorman, R.P. Manginell, J.R. Kellogg, and J.D. Prestage, *Rev. Sci. Instrum.* **87**, 053112 (2016).
15. T. Schneider, E. Peik, and C. Tamm, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 230801 (2005).
16. N. Huntemann, C. Sanner, B. Lipphardt, C. Tamm, and E. Peik, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 063001 (2016).
17. I.A. Semerikov, K.Y. Khabarova, I.V. Zalivako, A.S. Borisenko, and N.N. Kolachevsky, *Bull. Lebedev Phys. Inst.* **45**, 337 (2018).
18. I.V. Zalivako, I.A. Semerikov, A.S. Borisenko, M.D. Aksenov, K.Y. Khabarova, and N.N. Kolachevsky, *JETP Lett.* **114**, 53 (2021).
19. B.I. Bantysh, A.Y. Chernyavskiy, and Y.I. Bogdanov, *JETP Lett.* **111**, 512 (2020).
20. T.P. Harty, D.T. Allcock, C.J. Ballance, L. Guidoni, H.A. Janacek, N.M. Linke, D.N. Stacey, and D.M. Lucas, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 2 (2014).
21. J.P. Gaebler, C.H. Baldwin, S.A. Moses, J.M. Dreiling, C. Figgatt, M. Foss-Feig, D. Hayes, and J.M. Pino, *Suppression of mid-circuit measurement crosstalk errors with micromotion* (2021), URL <http://arxiv.org/abs/2108.10932>.
22. M. Acton, K.A. Brickman, P.C. Haljan, P.J. Lee, L. Deslauriers, and C. Monroe, *Quantum Information and Computation* **6**, 465 (2006).
23. P.J. Low, B.M. White, A.A. Cox, M.L. Day, and C. Senko, *Phys. Rev. Research* **2**, 033128 (2020).
24. S. Ejtemaee, R. Thomas, and P.C. Haljan, *Physical Review A – Atomic, Molecular, and Optical Physics* **82**, 1 (2010).
25. D.J. Berkeland and M.G. Boshier, *Physical Review A – Atomic, Molecular, and Optical Physics* **65**, 13 (2002).
26. I.I. Sobelman, *Atomic spectra and radiative transitions*, Springer Science & Business Media, Berlin (2012).

О возможности значительного увеличения времени хранения ультрахолодных нейтронов в ловушках, покрытых пленкой жидкого гелия

П. Д. Григорьев^{+,*1)}, А. М. Дюгаев⁺, Т. И. Могилюк[×], А. Д. Григорьев

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

^{*}Национальный исследовательский технологический университет (НИТУ) “МИСиС”, 119049 Москва, Россия

[×]Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 сентября 2021 г.

После переработки 23 сентября 2021 г.

Принята к публикации 23 сентября 2021 г.

Показано, что шероховатые внутренние стенки ловушки ультрахолодных нейтронов (УХН) возможно покрыть пленкой сверхтекучего гелия толщиной много больше, чем глубина проникновения УХН в гелий. Это должно на порядки уменьшить скорость потерь УХН из-за поглощения в стенках ловушки. Показано, что треугольная шероховатость более эффективна для уменьшения скорости потерь УХН, чем прямоугольная. Она также легче реализуема технически, и подобные дифракционные решетки уже производятся в промышленных масштабах. Предложены другие методы увеличения толщины защитной пленки гелия.

DOI: 10.31857/S1234567821200106

1. Введение. Изучение свойств свободного нейтрона и его взаимодействия с известными или гипотетическими полями дает ценную информацию об элементарных частицах и их взаимодействиях [1–5]. Точные измерения времени жизни нейтрона τ_n позволяют определить величину константы связи слабых взаимодействий, что важно для физики элементарных частиц, астрофизики и космологии [1–5]. Измерения асимметрии β -распада нейтрона дают информацию об отношении векторной и аксиально-векторной констант слабой связи [6–8]. Поиск отличного от нуля электрического дипольного момента нейтронов [9–11] накладывает ограничения на нарушение СР-инвариантности. Резонансные переходы между дискретными квантовыми уровнями энергии нейтронов в гравитационном поле Земли [12, 13] позволяют исследовать гравитационное поле на микронном масштабе и накладывают ограничения на темную материю. Дифракция нейтронов на кристаллах может быть использована для поиска новых межнуклонных взаимодействий [14, 15].

На данный момент наилучшая точность измерений времени жизни нейтрона достигнута с помощью специальных ловушек для ультрахолодных нейтронов (УХН) [16–19]. В таких ловушках УХН удержи-

ваются сверху гравитационным полем Земли, а снизу и по краям материалом, слабо поглощающим нейтроны и создающим потенциальный барьер высотой $V_0 \lesssim 300$ нэВ [7, 8, 10–12, 16–23]. Последние измерения с помощью таких ловушек дают значение [19] $\tau_n = (881.5 \pm 0.7 [\text{stat}] \pm 0.6 [\text{syst}])$ с. Из-за магнитного момента нейтрона 60 нэВ/Тл возможен также магнито-гравитационный захват УХН [24–28]. Время жизни нейтрона, наиболее точно измеренное этим методом, составляет [28] $\tau_n = (877.7 \pm 0.7 [\text{stat}] + 0.4 / - 0.2 [\text{syst}])$ с. Согласно оценкам [19, 28], погрешности этих методов не превышают 1 с, но соответствующие τ_n расходятся почти на 4 с. Вероятно, такое большое расхождение появляется из-за неучтенных или недооцененных потерь УХН в магнитных ловушках. Основной альтернативой использованию УХН для измерения времени жизни нейтрона является пучок холодных нейтронов [29–31], дающий $\tau_n = (887.7 \pm 1.2 [\text{stat}] \pm 1.9 [\text{syst}])$ с. Здесь расхождение с другими методами еще больше, что является известной и пока не разрешенной загадкой. Поиск возможных причин этого расхождения активно ведется [32] от неучтенных погрешностей экспериментов с нейтронными пучками [33] до новых каналов распада нейтрона [31] или даже темной материи [34].

Погрешность современных экспериментов с ловушками УХН также может оказаться выше полу-

¹⁾e-mail: grigorev@itp.ac.ru

ченной оценки $\lesssim 1$ с, поскольку процедура определения τ_n из экспериментальных данных предполагает их экстраполяцию на величину больше 15 с к пределу “нулевых потерь” нейтронов в ловушках. Одной из многих возможных причин неправильной экстраполяции является приближение об изотропном, т.е. равномерно распределенном по направлениям, ударе нейтронов о поверхность ловушки при вычислении скорости потерь. В действительности распределение направления скорости УХН не является изотропным и меняется с высотой: из-за земной гравитации, чем больше высота над дном ловушки, тем меньше вертикальная составляющая скорости УХН. Это может влиять как на геометрическую, так и на температурную экстраполяцию. В принципе, этот эффект можно учесть в расчетах Монте-Карло, если каждый раз определять нормальную составляющую скорости нейтрона при его ударе о стенку. Шероховатость поверхности также влияет на скорость потерь [20, 21], но ее эффект сложнее рассчитать. Интервал экстраполяции ~ 15 с [16, 19], хотя и является огромным достижением последних 15 лет, довольно велик и не позволяет далее существенно повысить точность измерений τ_n . Чтобы уменьшить интервал экстраполяции, нужно еще уменьшить скорость потерь УХН. Основным источником этих потерь является взаимодействие со стенками ловушек, которые хоть и слабо, но поглощают нейтроны.

Одним из принципиальных решений проблемы поглощения нейтронов стенками ловушки является их покрытие жидким ^4He , который совсем не поглощает нейтроны. Сверхтекучий ^4He покрывает все стенки сосуда тонкой пленкой из-за притяжения Ван-дер-Ваальса. Толщина этой пленки d_{He} , однако, слишком мала. Поскольку нейтроны с энергией меньше потенциального барьера $V_0^{\text{He}} = 18.5$ нэВ поднимаются на максимальную высоту $h_{\text{max}} = V_0^{\text{He}}/(m_n g) \approx 18$ см, то нас интересует высота над уровнем гелия много больше капиллярной длины $a_{\text{He}} = \sqrt{\sigma_{\text{He}}/(g\rho_{\text{He}})} = 0.5$ мм, где $\sigma_{\text{He}} = 0.354$ дин/см – коэффициент поверхностного натяжения ^4He , $g = 9.8$ м/с², и плотность жидкого ^4He $\rho_{\text{He}} \approx 0.145$ г/см³. На такой высоте толщина пленки $d_{\text{He}} \approx 10$ нм, что существенно меньше глубины проникновения $\kappa_{0\text{He}}^{-1} = \hbar/\sqrt{2m_n V_0^{\text{He}}} \approx 33.5$ нм нейтронов в ^4He . Поэтому такая пленка почти не защищает нейтроны от поглощения внутри стенки ловушки.

Отметим, что проблема увеличения толщины пленки гелия важна только для вертикальных (боковых) стенок ловушек УХН. Дно ловушки может быть легко покрыто пленкой гелия требуемой толщи-

ны $d_{\text{He}} \gg \kappa_{0\text{He}}^{-1} \approx 33.5$ нм, а сверху нейтроны удерживаются гравитационным полем Земли. Только снизу, на высоте $h < a_{\text{He}}\sqrt{2} \ll h_{\text{max}}$ боковые стенки покрыты мениском толщиной $d_{\text{He}} \sim a_{\text{He}} \gg \kappa_{0\text{He}}^{-1}$. Для увеличения толщины пленки гелия на боковых стенках ловушки выше капиллярной длины была предложена идея хранения нейтронов во вращающемся сосуде с гелием [35, 36]. Но отражение нейтронов от движущейся поверхности приводит к постепенному увеличению их кинетической энергии, которая в конечном итоге превысит потенциальный барьер $V_0^{\text{He}} = 18.5$ нэВ, и нейтрон покинет ловушку. Кроме того, вращающаяся жидкость генерирует дополнительные объемные и поверхностные возбуждения, что приводит к росту скорости неупругого рассеяния нейтронов. Следовательно, требуется не зависящее от времени покрытие стенок ловушки жидким ^4He .

Недавно мы предложили [37], что толщина пленки гелия на неровной поверхности стенки ловушки УХН увеличивается из-за капиллярных эффектов. Шероховатость стенки, как правило, увеличивает в 2–3 раза потери нейтронов из-за поглощения внутри стенок ловушки, поскольку эта шероховатость делает усредненный потенциал отталкивания стенок более гладким, так что волновая функция нейтрона проникает глубже внутрь стенки [20, 21]. Однако, если такую шероховатую стенку покрыть пленкой гелия, то средняя толщина этой пленки может быть значительно увеличена по сравнению с гладкой поверхностью из-за капиллярных эффектов, тем самым уменьшая потери нейтронов. Действительно, шероховатость стенки увеличивает ее площадь, повышая роль капиллярных эффектов. Если масштаб шероховатости поверхности $l_R \ll a_{\text{He}}$, чтобы минимизировать энергию поверхностного натяжения, пленка He даже на шероховатой стенке должна иметь почти плоскую границу раздела с вакуумом. Следовательно, сверхтекучий гелий заполняет все небольшие полости размером $l_R \lesssim a_{\text{He}}$ в стенке.

В данной работе мы развиваем эту идею и предлагаем реализуемые варианты боковых стенок ловушки, для которых толщина пленки гелия велика и скорость потерь УХН из-за поглощения в стенках ловушки уменьшается на порядки.

2. Пленка гелия на неровной поверхности: общие формулы. Для описания профиля гелиевой пленки на неровной поверхности необходимо минимизировать функционал энергии этой пленки

$$E_{\text{tot}} = V_g + E_s + V_W. \quad (1)$$

Здесь гравитационный член равен

$$V_g = \rho_{\text{He}} g \int z d_{\text{He}}(\mathbf{r}_{\parallel}) d^2 \mathbf{r}_{\parallel}, \quad (2)$$

где $\mathbf{r}_{\parallel} = \{x, z\}$ – это двумерный вектор координат вдоль стенки, x и z – соответственно горизонтальная и вертикальная координаты вдоль стенки,

$$d_{\text{He}}(\mathbf{r}_{\parallel}) = \xi(\mathbf{r}_{\parallel}) - \xi_W(\mathbf{r}_{\parallel}) \quad (3)$$

– толщина пленки He, зависящая от координаты, а функции $\xi(\mathbf{r}_{\parallel})$ и $\xi_W(\mathbf{r}_{\parallel})$ описывают профили поверхности He и стенки ловушки. Гравитационный член всегда уменьшает толщину пленки гелия. Ниже мы рассмотрим шероховатость стенки с характерным масштабом длины $\lesssim a_{\text{He}} \ll h_{\text{max}}$. Изменением координаты z на этом малом масштабе длины можно пренебречь по сравнению с ее средним значением $\langle z \rangle$, равным высоте $h = \langle z \rangle$ шероховатости над уровнем гелия в сосуде. Следовательно, в формуле (2) координату z можно заменить на высоту h .

Второй член в уравнении (1), описывающий энергию поверхностного натяжения, дается выражением

$$E_s = \sigma_{\text{He}} \int \sqrt{1 + [\nabla \xi(\mathbf{r}_{\parallel})]^2} d^2 \mathbf{r}_{\parallel}. \quad (4)$$

Его корневая зависимость усложняет задачу нахождения точного профиля поверхности $\xi(\mathbf{r}_{\parallel})$. Обычно ее аналитическое решение доступно только в пределе малого искривления поверхности $|\nabla \xi(\mathbf{r}_{\parallel})| \ll 1$, когда можно использовать разложение $\sqrt{1 + [\nabla \xi(\mathbf{r}_{\parallel})]^2} \approx 1 + [\nabla \xi(\mathbf{r}_{\parallel})]^2 / 2$. В нашей задаче условие $|\nabla \xi(\mathbf{r}_{\parallel})| \ll 1$ не всегда выполнено, поэтому для наших качественных оценок мы не будем пользоваться этим разложением. Вместо этого мы будем искать минимум исходного функционала (1)–(4) в классе пробных функций.

Гравитация и поверхностное натяжение, т.е. первые два члена в уравнении (1), важны на макроскопическом масштабе длины $\gtrsim a_{\text{He}}$. Последний член Ван-дер-Ваальса V_W , описывающий притяжение гелия к материалу стенки, заметно действует только на гораздо меньшем расстоянии $\lesssim d_{\text{He}}^{\text{min}} \approx 10 \text{ нм} \ll a_{\text{He}}$. У нас очень удачная ситуация для теоретического анализа, потому что масштаб длины действия сил Ван-дер-Ваальса $\sim d_{\text{He}}^{\text{min}}$ на пять порядков меньше капиллярной длины a_{He} . Следовательно, влиянием силы тяжести и поверхностного натяжения свободной поверхности He на V_W можно пренебречь. Для ровной стенки ван-дер-ваальсовый потенциал V_W зависит только от материала стенки и от толщины пленки: $V_W = V_W(d_{\text{He}})$. Без поверхностного натяжения это привело бы к покрытию шероховатой поверхности пленкой He толщиной $d_{\text{He}} \sim d_{\text{He}}^{\text{min}}$, которая почти повторяет профиль стенки, если масштаб

шероховатости $l_R \gg d_{\text{He}}^{\text{min}}$. Таким образом, можно оставить только два первых члена в функционале $E_{\text{tot}}[\xi(\mathbf{r}_{\parallel})]$ в уравнении (1), сводя эффект ван-дер-ваальсова члена V_W к “граничным условиям” минимальной толщины пленки гелия $d_{\text{He}} \gtrsim d_{\text{He}}^{\text{min}} \approx 10 \text{ нм}$.

Такая минимальная пленка гелия толщиной $d_{\text{He}} \sim d_{\text{He}}^{\text{min}}$, вызванная притяжением Ван-дер-Ваальса, будет стоить дополнительной энергии поверхностного натяжения ΔE_s , которая может быть даже больше добавки к гравитационному члену ΔV_g , возникающей из-за дополнительного гелия, необходимого для того, чтобы поверхность гелия стала плоской: $\xi(\mathbf{r}_{\parallel}) = \text{const} = \max\{\xi_W(\mathbf{r}_{\parallel})\} + d_{\text{He}}^{\text{min}}$. Это дополнительное количество гелия зависит от профиля шероховатости стенки и может сильно увеличить среднюю толщину пленок гелия. Этим увеличением эффективной толщины пленки гелия из-за капиллярных эффектов, вероятно, можно объяснить расхождение ее экспериментальных значений, определенных разными методами [38–43]. Действительно, метод микровзвешивания [40] измеряет общий вес гелия. Эта масса гелия включает заполненные полости на поверхности, которые не обнаруживаются оптическими методами в работах [39, 44]. Следовательно, микровесовой метод дает более толстую пленку гелия на шероховатой поверхности [40]. Поскольку типичная толщина пленки He из-за сил Ван-дер-Ваальса мала, $d_{\text{He}} \sim 10 \text{ нм}$, даже крошечная шероховатость поверхности высотой $\sim 10 \text{ нм}$ может сильно повлиять на измеренные значения толщины пленки гелия.

3. Пленка гелия на стенке с модуляцией в виде треугольной волны. Рассмотрим пленку гелия на шероховатой стенке в виде одномерной треугольной волны с периодом l_R и глубиной h_R , как на рис. 1. Для приближенной оценки нужных параметров шероховатости такой стенки сравним энергии очень тонкой пленки толщиной $\sim d_{\text{He}}^{\text{min}}$, повторяющей рельеф поверхности, и пленки гелия с плоской поверхностью, как изображено на рис. 1 пунктирной синей линией. Поскольку толщина пленки все же больше $d_{\text{He}}^{\text{min}}$, то энергия Ван-дер-Ваальса у этих двух конфигураций примерно одинаковая. Разница их гравитационной энергии (2) на единицу площади стенки равна $\Delta V_g = -g \rho_{\text{He}} h_R h / 2$. Энергии поверхностного натяжения (4) этих двух конфигураций отличаются на разницу площадей поверхности, умноженной на коэффициент поверхностного натяжения жидкого гелия σ_{He} , что на единицу площади поверхности составляет $\Delta E_s = \sigma_{\text{He}} (\sqrt{1 + (2h_R/l_R)^2} - 1)$. Их сумма $\Delta V_g + \Delta E_s$ положительна, т.е. пленке ге-

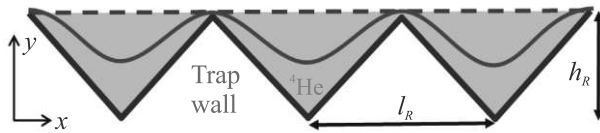


Рис. 1. (Цветной онлайн) Стенка с треугольной шероховатостью (коричневая ломаная линия), покрытая жидким гелием с почти плоской (пунктирная синяя линия) и с периодической модулированной поверхностью (сплошная синяя кривая)

лия выгоднее иметь плоскую свободную поверхность, чем повторять рельеф стенки, если выполнены два условия: (i) период модуляции ограничен сверху,

$$l_R < l_R^{\max} = 4\sigma_{\text{He}}/(gh\rho_{\text{He}}) = 4a_{\text{He}}^2/h \quad (5)$$

и (ii) глубина модуляции ограничена снизу,

$$h_R > h_R^{\min} = \frac{4a_{\text{He}}^2/h}{(4a_{\text{He}}^2/(l_R h))^2 - 1} = \frac{l_R \eta}{1 - \eta^2}, \quad (6)$$

где мы ввели новый параметр

$$\eta \equiv l_R h / (4a_{\text{He}}^2). \quad (7)$$

Согласно условию (5) $\eta < 1$.

Если в ур. (5) подставить значение $a_{\text{He}} = 0.5$ мм и максимальную высоту $h_{\max} \approx 18$ см, на которую могут подняться нейтроны с энергией меньше V_0^{He} , то мы получим максимальный период неровности $l_R^{\max}(h_{\max}) \approx 5.6$ мкм. Поскольку $l_R^{\max} \propto 1/h$, то на меньшей высоте период модуляции может быть больше. Часть кинетической энергии нейтрона, определяемая только его вертикальной компонентой скорости v_z , составляет в среднем только треть его полной энергии и 1/5 его максимальной энергии V_0^{He} , поэтому обычно нейтрон ударяется о вертикальную стенку на высоте не больше $h_{\max}/5$, где период шероховатости можно сделать в 5 раз больше: $l_R < l_R^{\max}(h_{\max}/5) \approx 28$ мкм $= 820\kappa_{0\text{He}}^{-1}$.

Согласно ур. (6), при $\eta \ll 1$ минимальная амплитуда шероховатости стенки $h_R^{\min} \propto l_R^2$. Поэтому чем меньше период модуляции l_R , тем менее острые шероховатости могут быть взяты, а значит тем меньше их хрупкость. Если взять для надежности (на случай сильных флуктуаций l_R) значение $l_R = l_R^{\max}/2$, с хорошим запасом удовлетворяющее условию (5), то условие (6) принимает вид $h_R > 2l_R/3$, т.е. модуляция должна быть достаточно глубокой. Если взять $l_R = l_R^{\max}/4 = a_{\text{He}}^2/h$, с еще большим запасом удовлетворяющее условию (5), то условие (6) принимает вид $h_R > 4l_R/15$, т.е. глубину модуляции можно взять меньше и она будет менее хрупкая.

Рассмотренные выше два профиля пленки гелия, конечно, не являются оптимальными, т.е. соответствующими минимуму полной энергии (1). При малом искривлении поверхности $|\nabla \xi(\mathbf{r}_{||})| \ll 1$ гравитационный член (2) линеен по ξ , а капиллярный (4) квадратичен по ξ . Поэтому при малом ξ гравитационный член выигрывает, а значит всегда есть хотя бы малое искривление поверхности и плоская поверхность $\xi(\mathbf{r}_{||}) = \text{const}$ не реализуется. С другой стороны, повторение треугольного профиля свободной поверхностью гелия также не выгодно, поскольку имеет углы. В реальности поверхность над такой рельефной стенкой описывается гладкой периодической функцией $\xi(x)$ с периодом l_R , схематично изображенной сплошной синей линией на рис. 1. Поэтому в качестве приближенной пробной функции можно взять

$$\xi(x) = \xi_0 \cos(2\pi x/l_R) \quad (8)$$

и найти, при какой амплитуде ξ_0 полная энергия (1) имеет минимум. Из уравнений (8) и (2) получаем выигрыш в гравитационной энергии из-за такого синусоидального искривления поверхности *на единицу площади стенки*

$$\begin{aligned} \Delta V_g &= \frac{\rho_{\text{He}} g h \xi_0}{l_R} \int_{-l_R/2}^{l_R/2} [\cos(2\pi x/l_R) - 1] dx = \\ &= -\rho_{\text{He}} g h \xi_0. \end{aligned} \quad (9)$$

Подставляя (8) в (4), получаем проигрыш в энергии поверхностного натяжения из-за этого искривления поверхности *на единицу площади стенки*

$$\Delta E_s = \frac{\sigma_{\text{He}}}{l_R} \int_{-l_R/2}^{l_R/2} \left(\sqrt{1 + [\xi'(x)]^2} - 1 \right) dx \quad (10)$$

$$= \sigma_{\text{He}} (2E[-2\pi i \xi_0/l_R]/\pi - 1), \quad (11)$$

где функция $E[x]$ — полный эллиптический интеграл второго рода. Складывая уравнения (9) и (11), получаем изменение полной энергии из-за синусоидального искривления поверхности

$$\Delta E_{\text{tot}} = \rho_{\text{He}} g a_{\text{He}}^2 (2E[2\pi i \xi^*]/\pi - 1 - 4\eta \xi^*), \quad (12)$$

где введена нормированная амплитуда волны $\xi^* \equiv \xi_0/l_R$, которая определяется минимизацией полной энергии (12). Видно, что положение минимума $\xi_{\min}^*$ зависит только от параметра $\eta = l_R h / (4a_{\text{He}}^2)$, введенного в ур. (7). Заметим, что этот параметр постоянно возникает в нашей задаче. Зависимость $\xi_{\min}^*(\eta)$, полученная минимизацией ур. (12), показана на рис. 2 сплошной синей кривой. Она расходится при $\eta \rightarrow 1$. Таким образом, мы снова приходим к условию (5), определяющему максимальный период мо-

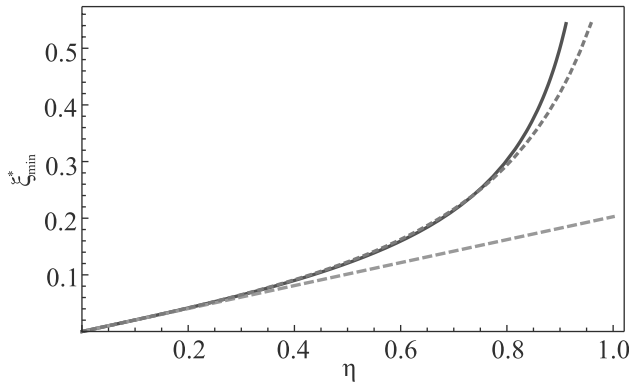


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость $\xi_{\min}^* \equiv \xi_0/l_R$ от параметра $\eta = l_R h / (4a_{\text{He}}^2)$, полученная минимизацией ур. (12) (сплошная синяя линия). Пунктирная оранжевая прямая показывает результат приближения $|\xi'(x)| \ll 1$. Точечная зеленая линия показывает аналитическую аппроксимацию из ур. (13)

дуляции шероховатости стенки. При $\eta < 0.8$ зависимость $\xi_{\min}^*(\eta)$ неплохо аппроксимируется аналитической формулой (см. рис. 2)

$$\xi_{\min}^*(\eta) \approx (2/\pi^2) \cdot \eta / [1 - 0.7\eta^2]. \quad (13)$$

Волна $\xi(x)$, определяемая ур. (8), не касается твердой стенки с треугольным профилем, как на рис. 1, при

$$h_R > h_R^{\min} \approx 2.3 \xi_0^{\min} \equiv 2.3 l_R \xi_{\min}^*(\eta). \quad (14)$$

Уравнение (14) и рис. 2 определяют минимальную глубину треугольного рельефа стенки, при котором она не касается свободной поверхности гелия нигде, кроме самых выступов при целом значении x/l_R . Это условие на h_R слабее полученного ранее условия (6) примерно в 2 раза, поскольку пленке гелия выгоднее иметь искривленную поверхность, описываемую ур. (8) с малой амплитудой ξ_0 , недостаточной, чтобы она касалась твердой стенки, чем абсолютно плоскую поверхность. Это смягчение условия (6) на глубину шероховатости h_R облегчает практическую реализацию такой стенки. Тем не менее условие (5) на период шероховатости остается без изменений.

Если бы мы изначально воспользовались условием $|\nabla \xi(\mathbf{r}_{||})| \ll 1$, соответствующим $\xi_0 \ll l_R$, то получили бы линейную зависимость $\xi_{\min}^*(\eta) = \eta \cdot 2/\pi^2$, изображенную пунктирной оранжевой линией на рис. 2. Из рисунка 2 видно, что это линейное приближение применимо при $\eta < 0.4$, а при $\eta \rightarrow 1$ оно совсем нарушается.

Треугольная шероховатость стенки, изображенная на рис. 1, имеет ряд существенных преимуществ по сравнению с прямоугольным профилем, изображенным на рис. 6 работы [37] и там рассмотренным.

Во-первых, треугольная стенка требуемых параметров будет намного менее хрупкая, чем прямоугольная. Она касается свободной поверхности гелия только в местах выступов при $x = x_n = l_R n$, где n – целое число. В этих точках толщина пленки гелия сокращается до величины $d_{\text{He}}^{\min} \sim 10$ нм. Однако, поскольку в этих точках производная $\xi'(x)|_{x=x_n} = 0$, при удалении от этих точек на величину $\Delta x = x - x_n$ толщина пленки растет линейно по Δx из-за линейной зависимости $\xi_W(\Delta x)$:

$$d_{\text{He}}(x) \approx d_{\text{He}}^{\min} + |x - x_n| \cdot (2h_R/l_R). \quad (15)$$

Если воспользоваться приближенной [37] квазиклассической формулой экспоненциального затухания волновой функции нейтрона внутри пленки гелия, то пленка гелия уменьшает поглощение нейтронов материалом стенки в точке x в

$$\gamma(x) = [\psi(0)/\psi(d_{\text{He}}(x))]^2 \sim \exp[-2\kappa_{\text{He}} d_{\text{He}}(x)] \quad (16)$$

раз, где $\kappa_{\text{He}} \approx \hbar/\sqrt{2m_n(V_0^{\text{He}} - E_{\text{kin}\perp})}$. Поскольку нормальная к стенке компонента скорости нейтрона в среднем дает только треть его полной кинетической энергии $\bar{E}_{\text{kin}\perp} \approx \bar{E}_{\text{kin}}/3 \approx V_0^{\text{He}}/5$, то усредненное значение $\bar{\kappa}_{\text{He}} \approx \hbar/\sqrt{2m_n(V_0^{\text{He}} - E_{\text{kin}\perp})} \approx 0.9\kappa_{0\text{He}}$. Для оценки среднего значения γ проинтегрируем выражение (16) по периоду l_R с функцией (15):

$$\begin{aligned} \bar{\gamma} &\approx \frac{2}{l_R} \int_0^{l_R/2} dx \exp[-2\bar{\kappa}_{\text{He}}(d_{\text{He}}^{\min} + 2xh_R/l_R)] = \\ &= \frac{\exp(-2\bar{\kappa}_{\text{He}}d_{\text{He}}^{\min})}{2\bar{\kappa}_{\text{He}}h_R} \approx \frac{0.3}{\kappa_{0\text{He}}h_R} \ll 1. \end{aligned} \quad (17)$$

Согласно этой оценке, чтобы уменьшить поглощение нейтронов стенкой в 100 раз, достаточно взять характерную глубину шероховатости $h_R > 30\kappa_{0\text{He}}^{-1} \approx 1$ мкм, а период $l_R < l_R^{\max}(h) \approx (h_{\max}/h) \cdot 5.6$ мкм. Таким образом, $h_R \ll l_R$, и такая шероховатость будет устойчивой к механическим нагрузкам. Это выгодно отличает предлагаемый треугольный от прямоугольного рельефа поверхности, рассмотренного в работе [37], где для уменьшения в сто раз поглощения нейтронов стенкой требовалось $h_R > l_R$, т.е. очень хрупкий рельеф стенки. Отметим, что дифракционные решетки с периодом $l_R \approx 4$ мкм и глубиной $h_R \approx 0.2$ мкм уже активно используются для рассеяния УХН [45, 46].

Во-вторых, предлагаемый треугольный профиль соответствует стандартным дифракционным решеткам, технология создания которых давно разработана и применяется в массовом производстве. Поэтому такая искусственная шероховатость может быть

легко создана²⁾. Методом электронно-лучевой литографии доступен намного меньший период дифракционной решетки $l_R \leq 100$ нм [47]. Таким образом, треугольный профиль делает практически реализуемой нашу идею о покрытии стенок ловушек УХН достаточно толстой пленкой сверхтекучего ^4He , используя шероховатость поверхности.

4. Другие методы. Для получения требуемой неровной/пористой поверхности ловушки, с целью ее дальнейшего покрытия пленкой гелия, могут быть использованы хорошо развитые методы *порошковой металлургии*. Простое прессование чистого порошкового бериллия мелкогабаритных марок при давлениях порядка 1.0–1.5 ГПа и температурах порядка 1000°C уже даст профиль поверхности, вполне пригодный для удержания жидкого гелия.

Кроме того, для покрытия стенок термоядерных реакторов уже в 1998 г. были разработаны эффективные методы получения чистого пористого бериллия [48]. При этом достигаются большие объемы бериллия с регулируемой однородной пористостью, составляющей от 10 до 70 %, и стопроцентной открытой пористостью [48].

Шероховатая поверхность ловушек УХН может быть получена также одним из стандартных методов спекания мелких частиц (пыли) из материала, слабо поглощающего нейтроны. Важным условием при этом является низкая концентрация примесных частиц.

Покрытие стенок ловушки УХН порошком алмазных наночастиц, часто используемым в экспериментах с УХН [49], также может дать необходимую шероховатость поверхности, чтобы сделать гелиевую пленку достаточно толстой.

Пленку сверхтекучего ^4He , защищающую нейтроны от поглощения в стенках ловушки, можно получить используя *тонкую металлическую проволоку*, замотанную (запутанную) таким образом, чтобы создать достаточно большую площадь поверхности S на единицу объема V , но при этом малую объемную долю $\phi_{\text{wire}} = V_{\text{wire}}/V$. Такая конструкция из запутанных проволок может быть подвешена сверху, чтобы свисать вниз благодаря силе тяжести. Материал проволоки лучше взять слабо поглощающим нейтроны, например, бериллий. Тогда незначительная объемная доля проволоки, $\phi_{\text{wire}} \sim 0.1$, полностью покрывая ^4He , не вызовет сильного поглощения нейтронов.

Если взять проволоку диаметром d и длиной L на единицу объема V , то площадь ее поверхности $S_{\text{wire}} = L\pi d$, а объем $V_{\text{wire}} = L\pi d^2/4$. Сверхтекучий ^4He из-за капиллярных эффектов будет подниматься по таким случайно запутанным проволокам на высоту h , определяемую равенством гравитационной и поверхностной энергии жидкого гелия: $hgV\rho_{\text{He}} \approx S\sigma_{\text{He}}$. Это накладывает ограничение на длину L и на объемную долю ϕ_{wire} проволоки

$$S = L\pi d > hgV\rho_{\text{He}}/\sigma_{\text{He}} = hV/a_{\text{He}}^2, \quad (18)$$

что соответствует

$$\phi_{\text{wire}} > hd/(4a_{\text{He}}^2). \quad (19)$$

Подставляя $h = h_{\text{max}} = 18$ см в ур. (19), получаем ограничение сверху на толщину проволоки

$$d < d_{\text{max}} \approx 4\phi_{\text{wire}}a_{\text{He}}^2/h_{\text{max}}. \quad (20)$$

Условие $\phi_{\text{wire}} \leq 0.1$ означает, что проволока должна быть тоньше $d_{\text{max}} \approx 0.56$ мкм. Если взять более сильное условие $\phi_{\text{wire}} \leq 0.01$, то $d_{\text{max}} \approx 14$ нм. Вероятно, создать такую тонкую проволоку достаточной суммарной длины технически сложнее, чем использовать треугольную неровность поверхности (дифракционную решетку), рассмотренную ранее. Запутанные отрезки проволоки намного меньшей толщины ~ 5 нм могут быть созданы путем слипания наночастиц в вихрях ^4He [50, 51], но этим методом сложно контролировать длину и концентрацию таких отрезков проволоки.

5. Заключение. Основным источником потерь УХН в материальных ловушках является поглощение нейтронов стенками ловушек. ^4He не поглощает нейтроны совсем, поэтому если покрыть стенки ловушки пленкой гелия, то время хранения УХН в такой ловушке может быть увеличено на порядки. Это возможно, поскольку скорость неупругого рассеяния УХН на поверхностных и объемных возбуждениях жидкого гелия оказывается достаточно малой при $T < 0.4$ К [52]. Однако пленка сверхтекучего гелия, покрывающая вертикальные поверхности из-за сил Ван-дер-Ваальса, имеет толщину всего $d_{\text{He}} \approx 10$ нм, что существенно меньше глубины проникновения $\kappa_{0\text{He}}^{-1} = \hbar/\sqrt{2m_n V_0^{\text{He}}} \approx 33.5$ нм нейтронов в ^4He . Поэтому такая пленка почти не защищает нейтроны от поглощения внутри стенки ловушки. В данной работе мы предлагаем технически несложный способ увеличения толщины пленки гелия, покрывающей внутреннюю поверхность ловушки УХН. Для этого нужно сделать стенки ловушки шероховатыми, например, в виде стандартной дифракционной

²⁾ Дифракционные решетки с периодом $l_R = 1$ мкм и размером 1.524×0.1524 м², соответствующими требуемым параметрам, доступны по цене \$20 на amazon.com. Решетки с треугольным профилем и намного меньшим периодом $l_R \geq 150$ нм доступны, например, на nilt.com.

решетки с треугольным профилем. Оценки необходимых параметров такой шероховатости показывают не только ее техническую реализуемость, но даже невысокую стоимость. Возможны разные методы получения такой шероховатой поверхности.

Работа поддержана госзадаанием # 0033-2019-0001 “Развитие теории конденсированного состояния вещества” и грантами Российского фонда фундаментальных исследований 19-02-01000 и 21-52-12027.

1. H. Abele, Progress in Particle and Nuclear Physics **60**, 1 (2008); <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0146641007000622>.
2. M. J. Ramsey-Musolf and S. Su, Phys. Rep. **456**, 1 (2008); <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370157307003894>.
3. D. Dubbers and M. G. Schmidt, Rev. Mod. Phys. **83**, 1111 (2011); <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.83.1111>.
4. F. E. Wietfeldt and G. L. Greene, Rev. Mod. Phys. **83**, 1173 (2011); <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.83.1173>.
5. M. Gonzalez-Alonso, O. Naviliat-Cuncic, and N. Severijns, Progress in Particle and Nuclear Physics **104**, 165 (2019); <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0146641018300735>.
6. B. Märkisch, H. Mest, H. Saul, X. Wang, H. Abele, D. Dubbers, M. Klopff, A. Petoukhov, C. Roick, T. Soldner, and D. Werder, Phys. Rev. Lett. **122**, 242501 (2019); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.122.242501>.
7. J. Liu, M. P. Mendenhall, A. T. Holley et al. (UCNA Collaboration), Phys. Rev. Lett. **105**, 181803 (2010); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.181803>.
8. X. Sun, E. Adamek, B. Allgeier et al. (UCNA Collaboration), Phys. Rev. C **101**, 035503 (2020); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.101.035503>.
9. M. Pospelov and A. Ritz, Ann. Physics **318**, 119 (2005); <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0003491605000539>.
10. C. A. Baker, D. D. Doyle, P. Geltenbort, K. Green, M. G. D. van der Grinten, P. G. Harris, P. Iaydjiev, S. N. Ivanov, D. J. R. May, J. M. Pendlebury, J. D. Richardson, D. Shiers, and K. F. Smith, Phys. Rev. Lett. **97**, 131801 (2006); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.97.131801>.
11. A. P. Serebrov, E. A. Kolomenskiy, A. N. Pirozhkov et al. (Collaboration), JETP Lett. **99**, 4 (2014); <https://doi.org/10.1134/S0021364014010111>.
12. V. V. Nesvizhevsky, H. G. Börner, A. K. Petukhov, H. Abele, S. Baeßler, F. J. Rueß, T. Stöferle, A. Westphal, A. M. Gagarski, G. A. Petrov, and A. V. Strelkov, Nature **415**, 297 (2002); <https://doi.org/10.1038/415297a>.
13. T. Jenke, G. Cronenberg, J. Burgdörfer, L. A. Chizhova, P. Geltenbort, A. N. Ivanov, T. Lauer, T. Lins, S. Rotter, H. Saul, U. Schmidt, and H. Abele, Phys. Rev. Lett. **112**, 151105 (2014); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.112.151105>.
14. V. V. Voronin, I. A. Kuznetsov, and D. D. Shapiro, JETP Lett. **107**, 1 (2018).
15. V. V. Voronin, V. V. Fedorov, and D. D. Shapiro, JETP Lett. **112**, 597 (2020).
16. A. P. Serebrov, V. E. Varlamov, A. G. Kharitonov, A. K. Fomin, Y. N. Pokotilovski, P. Geltenbort, I. A. Krasnoschekova, M. S. Lasakov, R. R. Taldaev, A. V. Vassiljev, and O. M. Zherebtsov, Phys. Rev. C **78**, 035505 (2008); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.78.035505>.
17. S. Arzumanov, L. Bondarenko, S. Chernyavsky, P. Geltenbort, V. Morozov, V. V. Nesvizhevsky, Y. Panin, and A. Strepetov, Phys. Lett. B **745**, 79 (2015); <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370269315002646>.
18. A. P. Serebrov, E. A. Kolomenskiy, A. K. Fomin et al. (Collaboration), JETP Lett. **106**, 623 (2017); <https://doi.org/10.1134/S0021364017220143>.
19. A. P. Serebrov, E. A. Kolomenskiy, A. K. Fomin et al. (Collaboration), Phys. Rev. C **97**, 055503 (2018); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.97.055503>.
20. R. Golub, D. Richardson, and S. K. Lamoreaux, *Ultra-Cold Neutrons*, CRC Press, Boca Raton (1991); <https://doi.org/10.1201/9780203734803>.
21. V. K. Ignatovich, *The Physics of Ultracold Neutrons*, Clarendon Press, Oxford (1990); <https://isbsearch.org/isbn/0198510152>.
22. V. K. Ignatovich, Phys.-Uspekhi **39**, 283 (1996); <https://doi.org/10.1070/pu1996v039n03abeh000138>.
23. R. W. Pattie, N. B. Callahan, C. Cude-Woods et al. (Collaboration), EPJ Web Conf. **219**, 03004 (2019); <https://doi.org/10.1051/epjconf/201921903004>.
24. P. R. Huffinan, C. R. Brome, J. S. Butterworth, K. J. Coakley, M. S. Dewey, S. N. Dzhosyuk, R. Golub, G. L. Greene, K. Habicht, S. K. Lamoreaux, C. E. H. Mattoni, D. N. McKinsey, F. E. Wietfeldt, and J. M. Doyle, Nature **403**, 62 (2000); <https://doi.org/10.1038/47444>.
25. K. K. H. Leung, P. Geltenbort, S. Ivanov, F. Rosenau, and O. Zimmer, Phys. Rev. C **94**, 045502 (2016); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.94.045502>.
26. A. Steyerl, K. K. H. Leung, C. Kaufman, G. Müller, and S. S. Malik, Phys. Rev. C **95**, 035502 (2017); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.95.035502>.

27. V.F. Ezhov, A.Z. Andreev, G. Ban, B.A. Bazarov, P. Geltenbort, A.G. Glushkov, V.A. Knyazkov, N.A. Kovrizhnykh, G.B. Krygin, O. Naviliat-Cuncic, and V.L. Ryabov, JETP Lett. **107**, 671 (2018); <https://doi.org/10.1134/S0021364018110024>.
28. R.W. Pattie, N.B. Callahan, C. Cude-Woods et al. (Collaboration), Science **360**, 627 (2018); <https://science.sciencemag.org/content/360/6389/627>; <https://science.sciencemag.org/content/360/6389/627.full.pdf>.
29. J.S. Nico, M.S. Dewey, D.M. Gilliam, F.E. Wietfeldt, X. Fei, W.M. Snow, G.L. Greene, J. Pauwels, R. Eykens, A. Lamberty, J.V. Gestel, and R.D. Scott, Phys. Rev. C **71**, 055502 (2005); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.71.055502>.
30. A.T. Yue, M.S. Dewey, D.M. Gilliam, G.L. Greene, A.B. Laptev, J.S. Nico, W.M. Snow, and F.E. Wietfeldt, Phys. Rev. Lett. **111**, 222501 (2013); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.222501>.
31. K. Hirota, G. Ichikawa, S. Ieki et al. (Collaboration), Progress of Theoretical and Experimental Physics **2020**(12), 123C02 (2020); <https://doi.org/10.1093/ptep/ptaa169> (2020); <https://academic.oup.com/ptep/articlepdf/2020/12/123C02/35931162/ptaa169.pdf>.
32. A.P. Serebrov, Phys.-Uspekhi **62**, 596 (2019).
33. A.P. Serebrov, M.E. Chaikovskii, G.N. Klyushnikov, O.M. Zherebtsov, and A.V. Chechkin, Phys. Rev. D **103**, 074010 (2021); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevD.103.074010>.
34. S. Rajendran and H. Ramani, Phys. Rev. D **103**, 035014 (2021); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevD.103.035014>.
35. R.C. Bokun, Sov. J. Nucl. Phys. **40**, 287 (1984); <https://inis.iaea.org/search/searchsinglerecord.aspx?recordsFor=SingleRecord&RN=16073419>.
36. V.P. Alfimenkov, V.K. Ignatovich, L.P. Mezhev-Deglin, V.I. Morozov, A.V. Strelkov, and M.I. Tsulaja, Communications of Joint Institute for Nuclear Research, Dubna preprint (in Russian) P3-2009-197 (2009); [http://www1.jinr.ru/Preprints/2009/197\(P3-2009-197\).pdf](http://www1.jinr.ru/Preprints/2009/197(P3-2009-197).pdf).
37. P.D. Grigoriev and A.M. Dyugaev, <https://arxiv.org/abs/2108.11246>, arXiv:2108.11246 [physics.ins-det].
38. K.R. Atkins and W.L. Bragg, Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences **203**, 119 (1950); <https://royalsocietypublishing.org/doi/abs/10.1098/rspa.1950.0129>.
39. E.J. Burge, L.C. Jackson, and N.F. Mott, Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences **205**, 270 (1951); <https://royalsocietypublishing.org/doi/abs/10.1098/rspa.1951.0029>.
40. R. Bowers, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **44**, 1309 (1953); <https://doi.org/10.1080/1478644120852040>.
41. K. Atkins, Progress in Low Temperature Physics **2**, 105 (1957); <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0079641708601031>.
42. E.S. Sabisky and C.H. Anderson, Phys. Rev. A **7**, 790 (1973); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.7.790>.
43. D.B. Crum, D.O. Edwards, and R.E. Sarwinski, Phys. Rev. A **9**, 1312 (1974); <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.9.1312>.
44. A.C. Ham and L.C. Jackson, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **45**, 1084 (1954); <https://doi.org/10.1080/14786441008520528>.
45. G.V. Kulin, A.I. Frank, S.V. Goryunov, P. Geltenbort, M. Jentschel, V.A. Bushuev, B. Lauss, P. Schmidt-Wellenburg, A. Panzarella, and Y. Fuchs, Phys. Rev. A **93**, 033606 (2016).
46. G.V. Kulin, A.I. Frank, M.A. Zakharov, S.V. Goryunov, V.A. Bushuev, A. Panzarella, P. Geltenbort, and M. Jentschel, JETP **129**, 806 (2019).
47. Y. Bourgin, Y. Jourlin, O. Parriaux, A. Talneau, S. Tonchev, C. Veillas, P. Karvinen, N. Passilly, A.R. Md Zain, R.M. De La Rue, J. van Erps, and D. Troadec, Opt. Express **18**, 10557 (2010); <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-18-10-10557>.
48. Ю.Е. Маркушин, М.И. Солонин, В.В. Горлевский, В.А. Горохов, Д.А. Давыдов, Г.Н. Николаев, Способ получения изделий из пористого бериллия. РФ патент # RU2106931C1 (1998); <http://www.freepatent.ru/patents/2106931>.
49. V. Nesvizhevsky, R. Cubitt, E. Lychagin, A. Muzychka, G. Nekhaev, G. Pignol, K. Protasov, and A. Strelkov, Materials **3**, 1768 (2010); <https://www.mdpi.com/1996-1944/3/3/1768>.
50. E.B. Gordon, A.V. Karabulin, V.I. Matyushenko, V.D. Sizov, and I.I. Khodos, Laser Phys. Lett. **12**, 096002 (2015); <https://doi.org/10.1088/1612-2011/12/9/096002>.
51. А.В. Карабулин, М.И. Кулиш, В.И. Матюшенко, Б.М. Смирнов, Э.Е. Сон, А.Г. Храпак, Теплофизика высоких температур **59**, 337 (2021).
52. P.D. Grigoriev, O. Zimmer, A.D. Grigoriev, and T. Ziman, Phys. Rev. C **94**, 025504 (2016).

Информация для авторов

Журнал “Письма в ЖЭТФ” (и его англоязычная версия “JETP Letters”) публикует:

- Краткие оригинальные статьи, требующие срочной публикации и представляющие общий интерес для широкого круга читателей-физиков. К категории срочных публикаций относятся первые наблюдения новых физических явлений и теоретические работы, содержащие принципиально новые результаты.
- Миниобзоры на наиболее актуальные “горячие” темы, по результатам недавних исследований выполненных авторами.
- Краткие комментарии к статьям, появившимся ранее в нашем журнале.

“Письма в ЖЭТФ” является двуязычным журналом, принимая и публикуя статьи на русском и на английском языках¹⁾. Все статьи на английском языке, принятые к публикации, направляются на лингвистическую экспертизу. Если английский текст признается недостаточно ясным, то редакция оставляет за собой право попросить авторов улучшить качество языка или представить для опубликования русскую версию статьи.

В “JETP Letters” все статьи публикуются на английском языке. Авторы принятых к печати статей могут (и это приветствуется), сразу же после извещения о принятии, прислать в редакцию предлагаемый ими самостоятельный перевод своей русскоязычной статьи на англ. язык. Наличие такого перевода, хотя и не гарантирует его безусловное принятие переводчиками Издателя, но зачастую облегчает авторам взаимодействие с ними. Перевод русских и редактирование английских статей осуществляется в издательстве МАИК “Наука/Интерпериодика”. Русская и англоязычная версии должны быть идентичны, поскольку статья, опубликованная в обеих версиях, является одной публикацией. Хотя английская версия окончательно редактируется на месяц позже русской, в ней не должно быть дополнительных ссылок, рисунков, формул и т.п., и все утверждения должны быть одинаковы.

Размер оригинальной статьи, как правило, не должен превышать 7 страниц русского издания (двухколоночный формат, соответствующий стилевому файлу), включая 5–6 рисунков. Размер миниобзора, как правило, не должен превышать 12 страниц, включая 8–10 рисунков. Типичный размер комментария и ответа на комментарий – до 1 стр.

Образец статьи²⁾, с использованием стилевого файла jetpl.cls (кодировка UTF-8³⁾, кодировка KOI8-R⁴⁾).

Статьи в редакцию можно направлять

- по электронной почте letters@kapitza.ras.ru – направлять текст в формате TeX, LaTeX (для статей на русском языке допускается MS Word), рисунки в формате PostScript (.ps), EncapsulatedPostScript (.eps) или PaintBrush (.pcx), каждый рисунок отдельным файлом. Необходимо также приложить pdf файл статьи с встроенными рисунками.
- по почте по адресу: 117334 Москва, ул. Косыгина 2, “Письма в ЖЭТФ” – два экземпляра статьи с рисунками на отдельных страницах (для полутоновых рисунков еще один дополнительный экземпляр).

К рукописи нужно приложить электронный адрес (e-mail) и почтовый адрес с индексом, фамилию, полное имя и отчество того автора, с которым предпочтительно вести переписку, а также номера его служебного и домашнего телефонов; для статей на английском языке – дополнительно CD диск или флеш карту с текстом в формате LATEX; для статей из России и других стран СНГ, в случае необходимости, может быть представлено направление от учреждения, которое будет фигурировать в титуле статьи как основное.

¹⁾<http://www.jetpletters.ru/ru/info.shtml#sub1>

²⁾<http://www.jetpletters.ru/tex/utf8/example.tex>

³⁾<http://www.jetpletters.ru/tex/utf8/jetpl.cls>

⁴⁾<http://www.jetpletters.ru/tex/koi/jetpl.cls>

Представленные в редакцию рукописи предварительно рассматриваются Редакторами. Не все рукописи направляются на отзыв рецензентам. Редколлегия на основании заключения Редактора может отклонить статьи, которые явно не соответствуют правилам и не подходят для журнала. С другой стороны, ни одна статья не принимается в печать без отзыва рецензентов или членов Редколлегии.

Решение о публикации или отклонении статей принимается на заседании редколлегии по представлению члена редколлегии по соответствующему разделу, с учетом мнения рецензентов. Основанием для отклонения статьи может быть ее недостаточная актуальность, отсутствие существенного продвижения по сравнению с другими публикациями в этой области, слишком специальная тематика и др. Рецензии на отклоненные статьи могут и не посылаться авторам. Авторы могут прислать отклоненную статью на повторное рассмотрение, сопроводив ее аргументированным разъяснительным письмом. В этом случае статья будет направлена на дополнительное рецензирование.

В связи с требованиями издателя и распространителя журнала “JETP Letters”, наш журнал “Письма в ЖЭТФ” с середины 2016 года лишен возможности публиковать полные тексты статей, исходно написанных на английском языке. Чтобы выполнить это требование, но не лишать российских читателей части информации, редакцией журнала принято следующее решение: для статей, представленных на английском языке и удовлетворяющих всем требованиям журнала, публиковать в “Письмах в ЖЭТФ” расширенные аннотации на английском языке (объемом не более 1–2 стр. журнального текста, или 5600–11200 знаков текста, включая один рисунок и список литературы). В конце аннотации будет приведена ссылка на полный текст статьи в журнале “JETP Letters”.

Оформление рукописи

Первая страница рукописи должна выглядеть следующим образом.

ЗАГЛАВИЕ

Инициалы и фамилии авторов

Обязательно — Учреждения, где работают авторы (включая город и почтовый индекс;
e-mail одного из авторов)

Дата поступления

Текст аннотации

Далее следует основной текст.

Фамилии иностранных авторов пишутся в русской транскрипции, но в сноске дополнительно указывается оригинальная транскрипция. Названия мест работы за рубежом пишутся по-английски.

Обращаем внимание авторов статей на русском языке на то, что перевод фамилий с русского языка на английский производится по жестким правилам (см. Письма в ЖЭТФ, т. 58, вып. 8, с. 699). Если авторы по каким-то причинам предпочитают иную транскрипцию своей фамилии, об этом следует написать на отдельном листе. Поскольку аннотации сейчас распространяются и отдельно от статей (базы данных, системы – On-line. и т.п.), текст аннотации должен быть самодостаточным: без ссылок на список литературы, с понятными обозначениями, без аббревиатур.

Сокращения словосочетаний должны даваться заглавными буквами (без точек) и поясняться при первом их употреблении. В тексте подстрочные примечания должны иметь сплошную нумерацию по всей статье.

Цитируемая литература должна даваться общим списком в конце статьи с указанием в тексте статьи ссылки порядковой цифрой, например, [1]. Литература дается в порядке упоминания в статье. Для журнальных статей указываются сначала инициалы, затем фамилии всех авторов, название журнала, номер тома (полужирным шрифтом), первая страница и год в круглых скобках. В случае, если цитируемая статья имеет более 4-х авторов, то только 3 первых должны быть перечислены явно, например

1. A. B. Ivanov, V. G. Petrov, I. M. Sergeev et al., JETP **71**, 161 (1990).

Для книг надо указывать инициалы и фамилии всех авторов, полное название книги, издатель, год, том, номер издания, часть, глава, страница (если ссылка на переводное издание, то обязательно в скобках нужно указать данные оригинала), например

2. L. M. Blinov, *Structure and Properties of Liquid Crystals*, Springer, Heidelberg (2011).

Цитирование двух или более произведений под одним номером, одного и того же произведения под разными номерами не допускается.

В обозначениях и индексах не должно быть русских букв. Например, следует писать P_{opt} , а не $P_{\text{опт}}$.

В десятичных дробях вместо запятой нужно использовать точку. Векторы должны выделяться в тексте статьи полужирным шрифтом (без стрелки над ними).

Поскольку рисунки переносятся без изменений из “Писем в ЖЭТФ” в “JETP Letters” все надписи на рисунках должны быть только на английском языке. Авторы, использующих при подготовке рисунков компьютерную графику, просим придерживаться следующих рекомендаций: графики делать в рамке; штрихи на осях направлять внутрь; по возможности использовать шрифт Times; высота цифр и строчных букв должна быть в пределах (3–4) % от максимального размера (высоты или ширины) рисунков, это относится и к цифрам на осях вставки; единицы измерения на осях графиков приводить в скобках. При подготовке рисунка имейте в виду, что, как правило, ширина рисунка при печати не превышает 82 мм; в исключительных случаях рисунок размещается на всей ширине листа (до 160 мм).

Рисунки публикуются “on-line” в цвете. На авторов возлагается обязанность проверить, что цветные рисунки читаемы, достаточно контрастны и в черно-белом печатном варианте. Образцы оформления статьи и рисунков, а также стилевой файл можно найти на WWW-странице “Писем в ЖЭТФ” (<http://www.jetpletters.ru/>).

Дополнительный материал

Журнал “Письма в ЖЭТФ” предоставляет авторам возможность публикации **Дополнительного материала**. **Дополнительный материал**, относящийся к статье, помещается на сайт одновременно с публикацией статьи в журнале. В **Дополнительный материал** помещаются сведения, существенные для узкого круга специалистов (например, детали сложных вычислений или мелкие детали экспериментальной техники), но не являющиеся критичными для понимания статьи широким кругом читателей журнала. **Дополнительный материал** не может быть использован для преодоления ограничения статьи по объему.

Объем дополнительного материала не должен превышать 4 страниц текста, с включением не более 4 рисунков.

В дополнительный материал нельзя включать:

- Дополнительный список литературы
- Сведения о вкладе авторов в работу
- Благодарности
- Комментарии, отклики или поправки.

Как прислать Дополнительный материал в редакцию

Дополнительный материал принимается **на английском языке** в виде TeX, doc и eps файлов одновременно со статьей по электронной почте по адресу letters@kapitza.ras.ru и рассматривается редакционной коллегией и рецензентами в совокупности со статьей. Файлы **Дополнительного материала** могут быть посланы в виде нескольких сообщений или могут быть включены в одно сообщение. В качестве темы этих сообщений должно быть указано “Дополнительный материал”. В письме должно также быть приведено название статьи, фамилия первого автора и перечень всех прилагаемых файлов.

Правила оформления файлов Дополнительного материала и процедура рассмотрения

Правила оформления файла **Дополнительного материала** совпадают с правилами оформления основной статьи. В заголовке должно быть написано “Дополнительный материал к статье {название статьи}”. Рисунки предпочтительны в цвете. Редакцией и рецензентами **Дополнительный материал** рассматривается как часть статьи и отдельно не рецензируется. За качество рисунков и качество английского языка **Дополнительного материала** ответственность ложится на авторов.

Ссылка на Дополнительный материал в статье

В статье адрес **Дополнительного материала** приводится в последней ссылке списка литературы в следующем виде:

See Supplemental Material at {для принятой к печати статьи ссылка будет введена редакцией}

Или в русском тексте

См. Дополнительный материал по адресу {для принятой к печати статьи ссылка будет введена редакцией}.

Право на воспроизведение

Дополнительный материал не является отдельным субъектом авторского права и входит в соглашение, подписанное автором для основного текста статьи. Любое воспроизведение **Дополнительного материала** должно подчиняться тем же правилам, что и текст основной статьи.

Комментарии в журнале “Письма в ЖЭТФ”

Журнал “Письма в ЖЭТФ” публикует краткие комментарии на ранее опубликованные в нем статьи. Авторы оригинальной статьи, на которую написан комментарий, могут на него ответить. Если и комментарий и ответ на него обоснованы и интересны, они принимаются в печать и публикуются в одном номере журнала. Отсутствие ответа авторов комментируемой статьи не является основанием для чрезмерной задержки или отказа в публикации комментария – если комментарий соответствует установленным критериям, он будет опубликован независимо от того, получен на него ответ авторов комментируемой работы или нет. Редакция не принимает комментарии, написанные кем-либо из авторов статьи. Комментарии и ответы ограничены по объему одной журнальной страницей (включая рисунки), аннотация не требуется. При желании авторы могут разместить на сайте журнала дополнительный материал, руководствуясь общими правилами (см. соответствующий раздел)⁵⁾.

Комментарий должен быть направлен на исправление или критику конкретной статьи. В первом абзаце комментария необходимо дать четкую ссылку на комментируемую статью, а также на то ее утверждение, которое комментируется. Комментарий должен касаться существа комментируемой статьи (не формы или стиля изложения) и быть непосредственно связанным с ней, а не просто содержать обсуждение общей темы. Формат комментария не предназначен для использования как инструмент для публикации дополнений к уже опубликованным статьям, он не предназначен также для установления приоритета или исправления библиографических неточностей. Критические замечания должны быть написаны в коллегиальном тоне; полемические комментарии отклоняются без рецензирования. Ответ авторов, чтобы быть пригодным для публикации, также должен быть написан в коллегиальном стиле и свободен от полемики.

Каждый комментарий отправляется авторам оригинальной статьи, у которых запрашиваются ответы на следующие вопросы:

1. Может ли комментарий быть опубликован без ответа?
2. Будет ли прислан ответ на комментарий для одновременной публикации?
3. Не кажется ли авторам, что комментарий слабо связан с оригинальной статьей? (В этом случае требуется подробная аргументация).

Автор оригинальной статьи не является анонимным рецензентом по отношению к комментарию. Редакция оставляет за собой право обратиться к анонимному рецензенту — независимому эксперту, у которого может быть запрошено мнение о комментарии и об ответе авторов. Авторам комментария рекомендуется вначале отправить свой комментарий первому автору комментируемой статьи для прямого ответа, однако редакция не рассматривает такой шаг в качестве обязательного. Ответ авторов комментируемой статьи будет предоставлен авторам комментария до публикации, однако последовавший за этим существенный пересмотр комментария будет интерпретирован как знак его ошибочности и может послужить причиной отказа в его публикации. Редакция не рассматривает комментарии на ответ авторов.

⁵⁾<http://www.jetpletters.ru/ru/supp.shtml>

Миниобзоры

Журнал “Письма в ЖЭТФ” в течение последних 10 лет в порядке опыта публиковал “заказные” мини-обзоры по результатам избранных законченных проектов РФФИ и РНФ. Как показало время, такие обзоры пользуются популярностью и активно читаются. В связи с этим редколлегия журнала решила расширить данную практику и, начиная с июля 2020 г., принимает к рассмотрению миниобзоры не только заказные, но и представленные самими авторами в инициативном порядке.

Правила оформления рукописей, касающиеся статей и обзоров – см. на

<http://www.jetpletters.ru/ru/info.shtml>

Миниобзор, как и регулярная статья, будет рецензироваться, обсуждаться членами редколлегии и будет приниматься к публикации только в случае его соответствия требованиям, предъявляемым к статьям.

Содержание
Том 114, выпуск 7
Оптика, лазерная физика

Zhang R., Guo X., Qiu H., Liu X., Han M., Jia T., Cheng H. Plasmonic metasurface filter with full color sensitivity and narrow band-pass in visible region 435

Сазонов С.В., Устинов Н.В. Оптико-терагерцовые солитоны с наклонными фронтами 437

Конденсированное состояние

Есеев М.К., Матвеев В.И., Макаров Д.Н. Диагностика наносистем с использованием ультракоротких рентгеновских импульсов: теория и эксперимент (Миниобзор) 444

Клумов Б.А. Об идентификации искаженных кристаллических кластеров 467

Журавлев А.С., Кулик Л.В., Мусина Л.И., Белозеров Е.И., Загитова А.А., Кукушкин И.В. Резонансное отражение света в лафлиновском состоянии $1/3$ 474

Горбунов А.В., Ларионов А.В., Кулик Л.В., Тимофеев В.Б. Когерентность магнитоэкситонного конденсата в квантово-холловском диэлектрике 479

Быков А.А., Номоконов Д.В., Горан А.В., Стрыгин И.С., Бакаров А.К., Абеди С., Виткалов С.А. Подавление магнито-межподзонных осцилляций сопротивления крупномасштабными флуктуациями межподзонного энергетического расщепления 486

Исаев Т.А. Относительно высокой чувствительности заселенности колебательных уровней в лазерно-охлаждаемых молекулах к интенсивности излучения 493

Новиков Ю.Н., Гриценко В.А. Многофононная ионизация глубоких центров в аморфном нитриде бора 498

Методы теоретической физики

Доценко Е. Лестничные соотношения на функции Бесселя–Макдональда и $\text{osp}(1|2)$ цепочка Тоды 502

Содержание

Том 114, выпуск 8

Оптика, лазерная физика

- Гартман А.Д., Устинов А.С., Шорохов А.С., Федянин А.А. Пространственное разделение скалярных световых пучков с орбитальным угловым моментом с помощью фазовой метаповерхности 509
- Секербаев К.С., Мусабек Г.К., Покрышкин Н.С., Якунин В.Г., Таурбаев Е.Т., Шабдан Е., Утегулов Ж.Н., Чирвоный В.С., Тимошенко В.Ю. Влияние размера нанокристаллов на антистоксовую фотолуминесценцию в перовскитах галогенида свинца 515
- Почечуев М.С., Федотов И.В., Степанов Е.А., Андреева М.С., Федотов А.Б., Желтиков А.М. Лазерная микроскопия рассеивающих сред на основе регуляризируемого минимально диффузного восстановления изображений 520
- Колмычек И.А., Ромашкина А.М., Майдыковский А.И., Гусев С.А., Гусев Н.С., Сапожников М.С., Голубев В.Г., Мурзина Т.В. Резонансное усиление поперечного магнитооптического эффекта в плазмонных гетероструктурах опал/кобальт/серебро 526

Конденсированное состояние

- Бабунц Р.А., Анисимов А.Н., Бреев И.Д., Гурин А.С., Бундакова А.П., Музафарова М.В., Мохов Е.Н., Баранов П.Г. Полностью оптическая регистрация сверхтонких электронно-ядерных взаимодействий в спиновых центрах в кристаллах 6H-SiC с модифицированным изотопным составом ^{13}C 533
- Бражкин В.В., Дюжева Т.И., Зибров И.П. Новые фазовые превращения под давлением в висмутине 541
- Удинцева М.С., Ефремов А.В., Смирнов Д., Макарова А., Наумов С.В., Шамин С.Н., Галахов В.Р. Электронные состояния ионов кобальта в слоистых кобальтитах $\text{EuBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$ 546
- Lebed A.G. Reentrant orbital effect against superconductivity in the quasi-two-dimensional superconductor NbS_2 551

Квантовая информатика

- Семенин Н.В., Борисенко А.С., Заливако И.В., Семериков И.А., Хабарова К.Ю., Колачевский Н.Н. Оптимизация достоверности считывания квантового состояния оптического кубита в ионе иттербия $^{171}\text{Yb}^+$ 553

Мультидисциплинарное

- Григорьев П.Д., Дюгаев А.М., Могилюк Т.И., Григорьев А.Д. О возможности значительного увеличения времени хранения ультрахолодных нейтронов в ловушках, покрытых пленкой жидкого гелия 560

Информация для авторов	568
------------------------------	-----

