#### РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

## ПИСЬМА

#### B

## ЖУРНАЛ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

#### том 114

Выпуск 9 10 ноября 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

<sup>©</sup> Российская академия наук, 2021

<sup>©</sup> Редколлегия журнала "Письма в ЖЭТФ" (составитель), 2021

#### Температурная зависимость пропагаторов глюонов и ду́хов в подходе Дайсона–Швингенра в приближении радуги

 $Л. П. Каптарь^{+1)}, Б. Кэмпфер^{* \times 1), 2)$ 

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

> $^{*}\mbox{Helmholtz-Zentrum}$ Dresden<br/>–Rossendorf, PF 510119, 01314 Dresden, Germany

<sup>×</sup>Institut für Theoretische Physik, TU Dresden, 01062 Dresden, Germany Поступила в редакцию 26 августа 2021 г. После переработки 26 августа 2021 г. Принята к публикации 24 сентября 2021 г.

Исследуется температурная зависимость глюонных и ду́ховых пропагаторов в рамках модели, основанной на решениях уравнений Дайсона–Швингера в приближении радуги в калибровке Ландау. Рассмотрение проводится в пространстве Евклида в мацубаровском формализме мнимого времени, в рамках которого глюонный пропагатор больше не является O(4)-симметричной функцией, а приобретает дискретный спектр по четвертой компоненте импульсов. Это приводит к необходимости различной трактовки поперечных и продольных (по отношению к термостату) составляющих пропагаторов. Соответственно, уравнение Дайсона–Швингера для глюонов также расщепляется на два уравнения. Полученная система связанных уравнений для продольных, поперечных и ду́ховых пропагаторов решается численно в приближении радуги. Решения получены как функции температуры T, мацубаровской частоты  $\Omega_n$  и квадрата пространственного импульса  $\mathbf{k}^2$ . Эффективные параметры модели взяты из предыдущего анализа уравнений Дайсона–Швингера при описании результатов решеточных расчетов при нулевой температуре. Показано, что для нулевой частоты Мацубары поведение соответствующих пропагаторов как функции пространственного импульса  $\mathbf{k}^2$  не чувствительно к температуре T, в то время как при  $\mathbf{k}^2 = 0$  их зависимость от T довольно заметна. Также исследуется зависимость решений от мацубаровской частоты  $\Omega_n$ .

DOI: 10.31857/S1234567821210011

**І. Введение.** В настоящее время изучение поведения адронов в горячей и плотной ядерной материи является одной из наиболее интересных и сложных проблем, интенсивно исследуемых теоретиками и экспериментаторами. Большая часть проводимых и планируемых экспериментов в различных исследовательских центрах, например, в Belle (Япония), BESIII (Пекин, Китай), LHC (ЦЕРН), GlueX (JLAB, США), NICA (Дубна, Россия), НІАF (Китай), FAIR (GSI,  $\Phi P\Gamma$ ) и т.д., включает в свои исследовательские программы всесторонние исследования свойств адронов при высоких температурах и возможный переход горячей ядерной материи в кваркглюонную плазму. Среди методов изучения свойств кварков и глюонов в вакууме и при конечных температурах следует отметить подходы, основанные на решеточных КХД расчетах [1–9], дополненные функционально ренормгрупповыми (ФРГ) подхода-

ми [10, 11], а также модели, основанные на правилах сумм КХД [12, 13] и на уравнениях Дайсона-Швингера [14] (для более полного обзора различных методов исследования калибровочных бозонов при нулевой и конечной температуре см., например, [15]). Несмотря на довольно строгую теоретическую основу, вышеуказанные подходы довольно сложны и громоздки для дальнейшего применения при попытках описания температурной зависимости физических связанных состояний, такие как мезоны и/или глюболы. Поэтому появляется необходимость разработки более простых и прозрачных моделей, которые, с одной стороны, являются простыми и физически понятными, с другой стороны, охватывают основные характеристики изучаемых явлений. С этой целью, в этом письме мы обобщаем хорошо известное приближение радуги к уравнениям Дайсона-Швингера в вакууме [16–19] для конечных температур в евклидовом пространстве в формализме мнимого времени Мацубары [19–23].

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: kaptari@theor.jinr.ru; kaempfer@hzdr.de

<sup>&</sup>lt;sup>2)</sup>B. Kämpfer.



Рис. 1. Схематическое представление рассматриваемых уравнений Дайсона–Швингера для пропагаторов глюона (верхняя строка) и ду́хов (нижняя строка). Волнистые и пунктирные линии обозначают полные пропагаторы, отмеченые черными кружками. Таким же образом отмечены и полные неприводимые одно-частичные вершины. В настоящем подходе в уравнениях Дайсона–Швингера члены с четырьмя глюонными вершинами и кварковыми петлями были опущены

II. Система уравнений Дайсона-Швингера для духов и глюонов. Отметим, что в принципе полная система связанных уравнений Дайсона-Швингера для "одетых" кварковых, глюонных и ду́ховых пропагаторов, а также вершинных функций может рассматриваться как точная интегральная формулировка КХД, полностью эквивалентной теоретико-полевому подходу. Однако, очевидно, что попытки точно решить (хотя бы численно) эту систему, которая взаимосвязывает n-точечные и n+1точечные функции, образуя, таким образом, бесконечную систему связанных уравнений, обречены на неудачу. Следовательно, для практических целей необходимы некоторые приближения. Обычно бесконечная система уравнений на каком-то этапе обрезается, ограничиваясь лишь несколькими первыми диаграммами Фейнмана. Как правило, такая усеченная система включает только одно-петлевые диаграммы, однако с уже одетыми пропагаторами и вершинами, как показано на рис. 1 (см., например, [24]). Такая система известна как усеченные уравнения Дайсона-Швингера, tDSE (truncated Dyson-Schwinger equations). Следует отметить, что набор диаграмм на рис. 1 уже сильно упрощен по сравнению с набором диаграмм, обсуждаемом, в более широком контексте, например, в работе [14] и даже относительно полной подсистемы одно-петлевых диаграмм. Этот набор не содержит независящие от импульса четырех-глюонные вершины (диаграммы типа "головастики"), а также кварк-глюонные петли. Как известно, диаграммы типа "головастики" пертурбативно исчезают в калибровке Ландау. Что ка-

сается кварковых диаграмм, то они в инфракрасной области существенно меньше лидирующих членов, см. [24], и могут быть игнорированы. В нашем случае это может быть дополнительно оправдано тем, что в tDSE их вклад в формировании динамических кварковых масс пренебрежительно мал [5, 6, 25]. В глюонной же части tDSE вклад кварковых петель в собственно-энергетическую часть заметен только при значениях импульса вблизи максимума  $k \sim 0.85 - 1.0 \, \Gamma$ эВ/с, где эффект экранировки изза рождения кварк-антикварковых пар из вакуума слегка уменьшает ее значение. В нашем подходе этот эффект неявно учитывается при подборе феноменологических параметров, которые находятся из сравнения численного решения tDSE с полными решеточными расчетами, учитывающими также кварковые степени свободы (см., например, решеточные SU(2) КХД расчеты [1, 2]).

Прямое вычисление диаграмм Фейнмана на рис. 1 приводит к следующей системе связанных уравнений:

$$D_{\mu\nu}^{-1}(k_4^2, \mathbf{k}^2) = Z_3 D_0^{-1}{}_{\mu\nu}(k^2) + \Sigma_{\mu\nu}^{\text{gluon}}(k_4^2, \mathbf{k}^2) + \Sigma_{\mu\nu}^{\text{ghost}}(k_4^2, \mathbf{k}^2), \qquad (1)$$

$$D_G^{-1}(k_4^2, \mathbf{k}^2) = \tilde{Z}_3 D_{G0}^{-1}(k^2) + S^{\text{ghost}}(k_4^2, \mathbf{k}^2), \qquad (2)$$

где  $Z_3$  и  $\tilde{Z}_3$  обозначают глюоные и ду́ховые константы перенормировки,  $D_{0\,\mu\nu}(k^2)$  и  $D_{G0}(k^2)$  обозначают соответствующие свободные пропагаторы, а четырехмерный импульс k в пространстве Евклида записывается как  $k^2 = k_4^2 + \mathbf{k}^2$ . Как упоминалось выше, в евклидовом пространстве в формализме Мацубары ду́ховые и глюонные пропагаторы обладают дискретным спектром по четвертой составляющей импульса,  $k_4 = \Omega_n$  ( $n \subset \mathbb{Z}$ ), где  $\Omega_n = 2\pi nT$  для бозонов и  $\Omega_n = \pi (2n+1)T$  для фермионов. В калибровке Ландау пропагатор глюонов  $\mathcal{D}_{\mu\nu}^{ab}(k_4, \mathbf{k})$  и ду́ховой пропагатор  $\mathcal{D}_G^{ab}(k_4, \mathbf{k})$  выражаются через "одевающие" функции  $Z(k_4, \mathbf{k})$  и  $G(k_4, \mathbf{k})$  следующим образом:

$$\mathcal{D}_{\mu\nu}^{ab}(k) = \delta^{ab} D_{\mu\nu}(k_4, \mathbf{k}) =$$
$$= \delta^{ab} \left\{ \frac{Z_T(k_4, \mathbf{k})}{k^2} \mathcal{P}_{\mu\nu}^T(\mathbf{k}) + \frac{Z_L(k_4, \mathbf{k})}{k^2} \mathcal{P}_{\mu\nu}^L(k_4, \mathbf{k}) \right\}, (3)$$

$$\mathcal{D}_{G}^{ab}(k_{4},\mathbf{k}) = -\delta^{ab}D_{G}(k_{4},\mathbf{k}) = -\delta^{ab}\frac{G(k_{4},\mathbf{k})}{k^{2}},\qquad(4)$$

где *a* and *b* обозначают цветовые индексы, а  $\mathcal{P}^L_{\mu\nu}(k_4, \mathbf{k})$ , и  $\mathcal{P}^T_{\mu\nu}(\mathbf{k})$  являются продольными и поперечными (в 3-D пространстве) проекционными операторами,

$$\mathcal{P}_{\mu\nu}^{T}(\mathbf{k}) = \begin{cases} 0, & \mu \text{ и/или } \nu = 4, \\ \delta_{\alpha\beta} - \frac{k_{\alpha}k_{\beta}}{\mathbf{k}^{2}}; & \mu, \nu = \alpha, \beta = 1, 2, 3, \end{cases}$$
$$\mathcal{P}_{\mu\nu}^{L} = \delta_{\mu\nu} - \frac{k_{\mu}k_{\nu}}{k^{2}} - \mathcal{P}_{\mu\nu}^{T}(\mathbf{k}). \tag{5}$$

Следует отметить, что оба эти проекционных оператора являются поперечными в четырехмерном пространстве и обладают следующими полезными свойствами

$$\mathcal{P}^{T}\mathcal{P}^{T} = \mathcal{P}^{T}, \ \mathcal{P}^{L}\mathcal{P}^{L} = \mathcal{P}^{L}, \ \mathcal{P}^{T}\mathcal{P}^{L} = \mathcal{P}^{L}\mathcal{P}^{T} = 0,$$
  
$$\mathcal{P}^{T}_{\mu\nu}\mathcal{P}^{T}_{\mu\nu} = Tr\left(\mathcal{P}^{T}\right) = 2, \ \mathcal{P}^{L}_{\mu\nu}\mathcal{P}^{L}_{\mu\nu} = Tr\left(\mathcal{P}^{L}\right) = 1.$$
(6)

которые широко применяются при выводе уравнений для  $Z_{(T,L)}$  из (3)–(4).

Собственно-энергетические суммы  $\Sigma_{\mu\nu}^{\text{gluon}}(k_4, \mathbf{k}), \Sigma_{\mu\nu}^{\text{ghost}}(k_4, \mathbf{k})$  и  $S^{\text{ghost}}(k_4, \mathbf{k})$  в уравнениях (1)–(2) соответствуют трем петлевым диаграммам на рис. 1. Свертка по цветовым индексам приводит к

$$\Sigma_{\mu\nu}^{\text{gluon}}(\Omega_n, \mathbf{k}) = \frac{1}{2} \frac{3T}{2\pi^2} \times \\ \times \sum_m \int d^3q \frac{Z_T(\Omega_m, \mathbf{q}) \mathcal{P}_{\alpha\beta}^T(\mathbf{q}) + Z_L(\Omega_m, \mathbf{q}) \mathcal{P}_{\alpha\beta}^L}{q^2} \times \\ \times \left[ \frac{g^2}{4\pi} \Gamma_{\mu\rho\alpha}^{(0)}(k, p, -q) [D_T(\Omega_n - \Omega_m, \mathbf{p}) \mathcal{P}_{\rho\sigma}^T(\mathbf{q}) + D_L(\Omega_n - \Omega_m, \mathbf{p}) \mathcal{P}_{\rho\sigma}^L(q)] \Gamma_{\beta\sigma\nu}(q, -p, -k) \right],$$
(7)

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

$$\Sigma_{\mu\nu}^{\text{ghost}}(\Omega_n, \mathbf{k}) = -\frac{3T}{2\pi^2} \sum_m \int d^3q \frac{G(\Omega_m, \mathbf{q})}{q^2} \times \Gamma_{\mu}^{(0)}(q) \left[ \frac{g^2}{4\pi} D_G(\Omega_n - \Omega_m, \mathbf{p}) \Gamma_{\nu}(p) \right], \quad (8)$$

$$S^{\text{ghost}}(\Omega_n, \mathbf{k}) = \frac{3T}{2\pi^2} \times \int d^3q \left[ \frac{g^2}{4\pi} \Gamma^{(0)}_{\mu}(q) D_{\mu\nu}(p^2) \Gamma_{\nu}(k, q, p) \right] \frac{G(\Omega_m, \mathbf{q})}{q^2}, \quad (9)$$

где термины, заключенные в квадратных скобках, определяют ядро взаимодействия соответствующего интегрального уравнения. Явный вид уравнений для функций  $Z_{T,L}$  получается из tDSE (1) подстановкой выражений (7)–(8) в уравнение (1), последовательным умножением левых и правых частей на  $\mathcal{P}^{T}(\Omega_{n}, \mathbf{k})$  и  $\mathcal{P}^{L}(\Omega_{n}, \mathbf{k})$  и, наконец, сворачиванием всех Лоренц-индексов. В результате получается скалярная, не зависящая от Лоренц-индексов, система интегральных уравнений.

В принципе, константы перенормировки  $Z_{3(T,L)}$ могут быть различными для поперечных и продольных пропагаторов и, соответственно, должны определяться независимо друг от друга. Однако, в настоящей работе для упрощения вычислений мы принимаем их одинаковыми как для поперечной, так и для продольной части. Более того, конкретные числовые значения для обеих констант  $Z_3$  и  $\tilde{Z}_3$  берутся из предыдущего фита [26] вакуумных решений tDSE к решеточным КХД данным,  $Z_3 = \tilde{Z}_3 \approx 1.065$ .

III. Приближение радуги для ду́хов и глюонов. Попытки непосредственного решения полученной системы уравнений с использованием известных правил Фейнмана сталкиваются с трудностями, связанными с расходящимися петлевыми интегралами и симметрийными ограничениями, налагаемые на глюон-духовых и глюон-глюонных вершинах, такими как, например, требование удовлетворения тождества Славнова-Тейлора. Очевидно, что для конкретных вычислений необходимы дальнейшие приближения. Простейшее из них состоит в замене полностью одетых вершин и пропагаторов на их голые значения, известное как приближение Мандельстама [27-29]. К этому приближению возможны дополнительные упрощения угловой зависимости  $Z(k^2)$  и  $G(k^2)$ , которые позволяют вычислить интегралы по углам в (7)-(9) аналитически. Полученные в этом случае одномерные интегральные уравнения решаются численно. Такой подход известен в литературе как у-тах приближение [30]. В дальнейшем уравнения Дайсона-Швиегера исследовались в рамках более строгих подходов с учетом упомянутых выше

требований симметрий и регуляризаций расходящихся интегралов [31, 24] (см. также обзор [32] и приведенные в нем ссылки). Отмеченные подходы приводят к довольно громоздким выражениям для системы tDSE, которые вызывают трудности в нахождении численных решений и их использования в дальнейших применениях. Еще больше трудностей возникает при попытках обобщения tDSE на конечные температуры. Эти трудности можно преодолеть, если допустить разумные приближения к ядрам взаимодействия в интегральных уравнениях, чтобы обеспечить сходимость интегралов и аналитическое интегрирование по углам. В настоящей заметке с этой целью мы используем хорошо известное приближение радуги [16, 17, 21-23] для ядер в (7)-(9). Суть такого приближения состоит в замене в интегральных ядрах взаимодействия полных одетых вершин, совместно с обменными пропагаторами, их голыми аналогами, умноженными на некоторые эффективные форм-факторы:

$$\begin{bmatrix} \frac{g^2}{4\pi} \Gamma^{(0)}_{\mu\rho\alpha}(k, p, -q) D_{\rho\sigma}(p^2) \Gamma_{\beta\sigma\nu}(q, -p, -k) \end{bmatrix} =$$
$$= \Gamma^{(0)}_{\mu\rho\alpha}(k, p, -q) \left[ \mathcal{P}^T_{\rho\sigma}(\mathbf{p}) F_1^T(\mathbf{p}^2) + \mathcal{P}^L_{\rho\sigma}(p) F_1^L(p^2) \right] \times$$
$$\times \Gamma^{(0)}_{\beta\sigma\nu}(q, -p, -k), \tag{10}$$

$$\left[\frac{g^2}{4\pi}\Gamma^{(0)}_{\mu}(q)D_G(p^2)\Gamma_{\nu}(p)\right] = \Gamma^{(0)}_{\mu}(q)F_2(p^2)\Gamma^{(0)}_{\nu}(p^2), \ (11)$$

$$\left[\frac{g^2}{4\pi}\Gamma^{(0)}_{\mu}(q)D_{\mu\nu}(p^2)\Gamma_{\nu}(k,q,p)\right] = \Gamma^{(0)}_{\mu}(q)\left[\mathcal{P}^T_{\mu\nu}(\mathbf{p})F^T_3(\mathbf{p}^2) + \mathcal{P}^L_{\mu\nu}(p)F^L_3(p^2)\right]\Gamma^{(0)}_{\nu}, \quad (12)$$

где верхний индекс (0) у вершин  $\Gamma$  обозначает голые вершины взаимодействия 3-х глюонов и глюонов с ду́хами (более детальное обсуждение можно найти в работе [26]). Как и в работе [26], в данном письме мы используем для форм-факторов  $F_{1-3}(p^2)$  гауссовскую форму с двумя членами для каждого из них. Этого вполне достаточно для получения надежного решения системы уравнений tDSE при T = 0, когда O(4)-симметрия выполняется строго и, следовательно, продольная и поперечная части пропагатора совпадают. В явном виде, в евклидовом пространстве эффективные форм-факторы выбираются как

$$F_1^{T,L}(p^2) = D_{11}^{T,L} \frac{p^2}{(\omega_{11}^{T,L})^6} e^{-p^2/(\omega_{11}^{T,L})^2} + D_{12}^{T,L} \frac{p^2}{(\omega_{12}^{T,L})^6} e^{-p^2/(\omega_{12}^{T,L})^2},$$
(13)

$$F_2(p^2) = \frac{D_{21}}{\omega_{21}^4} e^{-p^2/\omega_{21}^2} + \frac{D_{22}}{\omega_{22}^4} e^{-p^2/\omega_{22}^2},$$
 (14)

$$F_{3}^{T,L}(p^{2}) = D_{31}^{T,L} \frac{p^{2}}{(\omega_{31}^{T,L})^{6}} e^{-p^{2}/(\omega_{31}^{T,L})^{2}} + D_{32}^{T,L} \frac{p^{2}}{(\omega_{32}^{T,L})^{6}} e^{-p^{2}/(\omega_{32}^{T,L})^{2}},$$
(15)

где эффективные феноменологические параметры  $D_i$  и  $\omega_i$  находятся из условия хорошего описания данных расчетов на SU(2) решетке при нулевой температуре (см. [26]).

**IV. Результаты и обсуждения.** Использование эффективного взаимодействия (10)–(15) позволяет провести интегрирование по углам в аналитическом виде [26], что в конечном итоге приводит к системе линейных алгебраических уравнений относительно частот Мацубары и одномерных интегральных уравнений относительно пространственных импульсов |**k**| в евклидовом пространстве. Результат интегрирования по углам включает в себя модифицированные функции Бесселя  $I_l(|\mathbf{q}|, |\mathbf{k}|)$  и экспоненциальные интегральные функции  $Ei(1, |\mathbf{q}|, |\mathbf{k}|),$ умноженные на некоторые члены, зависящие от частот Мацубары  $\Omega_n$  и  $\Omega_m$ , и пространственных моментов  $|\mathbf{q}|$  и  $|\mathbf{k}|$ . В дальнейшем эта система решается численно. С этой целью одномерные интегралы аппроксимируются соответствующими гауссовыми квадратурными формулами, что в конечном итоге приводит к системе алгебраических уравнений относительно частот Мацубары и узлов квадратурной формулы. Затем такая система решается с помощью итерационной процедуры. В принципе, эффективные параметры в уравнениях (13)–(15) могут различаться для поперечных (T) и продольных (L) частей. Кроме того, все параметры, включая константы перенормировки  $Z_3$  и  $Z_3$ , могут зависеть от температуры T и частоты Мацубары  $\Omega_n$ , см. работу [33]. Однако, как было показано в работах [20, 34], при относительно небольших температурах ядра взаимодействия в интегральных уравнениях слабо зависят от температуры, и в первом приближении они могут быть взяты такими же, как при T = 0 с  $D^T = D^L$  и  $\omega_i^T = \omega_i^L$ . При более высоких температурах такой выбор эффективных параметров для поперечных и продольных частей менее оправдан. В настоящей заметке мы используем одни и те же значения эффективных параметров для всего диапазона рассмотренных температур. Конкретные значения соответствуют набору параметров, ранее найденных путем фитирования решений tDSE в вакууме, как указано в [26]:  $D_{11}^T = D_{11}^L = 0.462 \,\Gamma \Im B^2, \ D_{12}^T = D_{12}^L = 0.116 \,\Gamma \Im B^2,$ 

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021



Рис. 2. (Цветной онлайн) Решение уравнения Дайсона-Швингера для ду́хов  $G(k_4, \mathbf{k}^2)$ . Левая панель: зависимость решения от квадрата пространственного импульса  $\mathbf{k}^2$  при нулевой частоте Мацубары, n = 0, для двух значений температуры T = 10 МэВ (сплошная кривая) и T = 100 МэВ (штриховая кривая). Правая панель: температурная зависимость  $G(k_4, \mathbf{k}^2)$  при нулевом трехмерном импульсе  $\mathbf{k}^2 = 0$  и при двух значениях частоты Мацубары, n = 0 (сплошная кривая) и n = 1 (штриховая кривая)

 $\omega_{11}^T = \omega_{11}^L = 1.095 \, \Gamma$ эВ,  $\omega_{12}^T = \omega_{12}^L = 2.15 \, \Gamma$ эВ для З-х глюонных петель,  $D_{21}^T = D_{11}^L = 7.7 \, \Gamma$ эВ²,  $D_{22}^T = D_{22}^L = 0.25 \, \Gamma$ эВ²,  $\omega_{21}^T = \omega_{21}^L = 0.58 \, \Gamma$ эВ,  $\omega_{22}^T = \omega_{22}^L = 4.5 \, \Gamma$ эВ для ду́ховых петель и  $\omega_{31}^T = \omega_{31}^L = 0.73 \, \Gamma$ эВ,  $\omega_{32}^T = \omega_{32}^L = 2.16 \, \Gamma$ эВ,  $D_{31}^T = D_{31}^L = 0.39 \pi \, \Gamma$ эВ²,  $D_{32}^T = D_{32}^L = 0.1 \pi \, \Gamma$ эВ² для ду́х-глюонной петли (см. три петлевые диаграммы на рис. 1). <sup>3)</sup> Следует подчеркнуть, что при сохранении эффективных параметров независимыми от температуры и по величине такими же, как в вакууме, можно ожидать достаточно надежного решения tDSE лишь при низких и умеренных температурах,  $T \leq 200 \, \text{MэB}$ . Очевидно, что при более высоких температурах эффективные параметры должны быть T- и n-зависимыми (см., например, [22, 20, 33]) и, вероятно, совершенно разными для поперечных и продольных частей tDSE.

Полученная алгебраическая система уравнений решалась итерационным методом. В конкретных расчетах мацубаровские частоты брались в интервале ( $-30 \le n \le 30$ ), гауссовская сетка для интегрирования по пространственной переменной  $|\mathbf{k}|^2$  содержала 72 узла, а сама пространственная переменная ограничивалась максимальным значением  $|\mathbf{k}|^2 \sim 220 \ \Gamma \Rightarrow B^2/c^2$ . Для получения более плотного распределения гауссовых узлов при низких  $|\mathbf{k}|^2$  была использована масштабированная замена переменных, см. [23].

Результаты расчетов представлены на рис. 2 и 3. На рисунке 2 приведена температурная зависимость ду́хвой функции  $G(k_4, \mathbf{k}^2)$ . Левая панель иллюстрирует ее поведение при нулевой частоте Мацубары, n = 0, как функция пространственных импульсов  $\mathbf{k}^2$ и двух значениях температуры, T = 10 МэВ и T == 100 МэВ. Как и ожидалось, температурная зависимость довольно слабая для всех значений  $\mathbf{k}^2$  и очень похожа на поведение  $G(k^2)$  при T = 0, см. работу [26]. На правой панели мы показываем функцию  $G(k_4, \mathbf{k}^2)$ при  $\mathbf{k}^2 = 0$  и двух значениях частот Мацубары. Поскольку четвертая составляющая импульса сильно зависит от частоты Мацубары,  $k_4^2 = [\pi(2n + 1)T]^2$ , функция  $G(k_4, 0)$  довольно чувствительна к значениям температуры T.

Аналогичный анализ для глюонного пропагатора представлен на рис. 3, где для определенности рассматривается только его поперечная часть (T). Поведение продольного пропагатора качественно такое же и в данной статье не приводится. На левой панели зависимость поперечного пропагатора отображается как функция квадрата пространственного импульса  $\mathbf{k}^2$  при двух значениях частоты Мацубары, n = 0 и n = 1, и двух значениях температуры, T = 10 МэВ и T = 100 МэВ. Как и в случае ду́хов, зависимость глюонного пропагатора от температуры довольно сла-

<sup>&</sup>lt;sup>3)</sup>Отметим, что в настоящей статье каждая из трех петель на рис. 1 параметризуется двумя гауссовскими членами, в то время как в работе [26] ду́ховая петля параметризовалась всего лишь одним. Введенный дополнительный член не влияет на качество фитирования вакуумных решеточных данных и в настоящей работе используется исключительно для сохранения единообразия в параметризации петель. Соответственно, нынешние обозначения слегка отличаются от обозначений, используемых в работе [26].



Рис. 3. (Цветной онлайн) Решение уравнения Дайсона–Швингера для поперечной части глюонного пропагатора  $Z_T(k_4, \mathbf{k}^2)/k^2$ . Левая панель: зависимость от квадрата трехмерного импульса  $\mathbf{k}^2$  при двух значениях частоты Мацубары и двух значениях температуры. Сплошные и штриховые кривые соответствуют n = 0, T = 10 МэВ и T = 100 МэВ соответственно. Пунктирные и штрих-пунктирные кривые соответствуют n = 1, T = 10 МэВ и T = 100 МэВ. Правая панель: температурная зависимость пропагатора глюонов при нулевом трехмерном импульсе  $\mathbf{k}^2 = 0$  и при двух значениях частоты Мацубары, n = 0 (сплошная кривая) и n = 1 (штриховая кривая)

бая (ср. сплошную, T = 10 МэВ, и штрихованную, T = 100 МэВ, кривую). Зависимость от T более выражена при малых значениях  $\mathbf{k}^2$  для ненулевой (например, для n = 1) частоты Мацубары, что хорошо видно из сравнения пунктирной (T = 10 МэВ) с штрих-пунктирной кривой (T = 100 МэВ). Это связано с тем, что при малых значениях пространственного импульса,  $\mathbf{k}^2 \sim 0$ , значения 4-импульса  $k^2 \sim k_4^2$  становятся прямо пропорциональны квадрату температуры,  $k_4^2 = 4\pi^2 T^2$ , и при T = 10 МэВ и T = 100 МэВ значения  $k^2$  отличаются почти на два порядка. (Значение глюонного пропагатора при  $\mathbf{k}^2 = 0$  и n = 0 определяет эффективную массу глюона,  $Z_T/k^2 \sim 1/(k^2 + m_{\text{eff}}^2)$ . Из наших расчетов мы делаем вывод, что в нашей модели  $m_{\text{eff}}^2 \sim 0.6$  ГэВ<sup>2</sup>.)

На правой панели рис. З приводится зависимость от температуры T глюонного пропагатора при  $\mathbf{k}^2 = 0$ и двух значениях частоты Мацубары, n = 0 и n = 1. Отличие при средних и высоких температурах в поведении пропагатора обусловлено величиной четвертой составляющей импульса  $k_4$ , которая равна нулю при n = 0 и конечна,  $k_4^2 = 4\pi^2 T^2$ , для n = 1. Поскольку в уравнениях tDSE с гауссовыми ядрами взаимодействия (13)–(15) четвертые компоненты  $k_4$  входят как  $\exp(-k_4^2/\omega^2)$ , значения соответствующих пропагаторов при ненулевых мацубаровских частотах и больших температурах,  $T \sim 250$  МэВ существенно подавляются. В интервале температур  $0 \leq T \leq 250$  МэВ наши расчеты находятся в довольно хорошем качественном согласии с результатами, полученными в рамках функционально ренормгрупповых подходах (см. работы [10, 35, 11, 15] и приведенные в них ссылки) или в подходах, основанных на КХД решеточных расчетах [3, 4]. Здесь следует подчеркнуть, что предложенный в этой статье упрощенный подход с параметрами, независящими от температуры, не может быть надежно применен для температур  $T \gtrsim 200$  МэВ, и поэтому сравнение с подходами ФРГ и/или решеточными расчетами при более высоких температурах затруднено.

V. Резюме. Таким образом, в данной работе численно решена система усеченных уравнений Дайсона–Швингера для глюонов и ду́хов в приближении радуги при конечных температурах в рамках формализма мнимого времени. Утверждается, что для нулевых частот Мацубары, n = 0, поведение пропагаторов как функций квадрата пространственного импульса  $\mathbf{k}^2$  не чувствительно к температуре T практически во всем диапазоне  $\mathbf{k}^2$ . Напротив, в самом начале координат,  $\mathbf{k}^2 = 0$ , была обнаружена существенная зависимость пропагаторов от n и T. Такие исследования открывают путь для изучения более сложных явлений, например, изменений характеристих связанных состояний глюонов (глюболов) в сильно нагретой ядерной материи.

V.G. Bornyakov, E.-M. Ilgenfritz, C. Litwinski, M. Müller-Preussker, and V. K. Mitrjushkin, Phys. Rev. D 92, 074505 (2015).

- V.G. Bornyakov, V.K. Mitrjushkin, and M. Müller-Preussker, Phys. Rev. D 81, 054503 (2010).
- R. Aouane, V.G. Bornyakov, E.M. Ilgenfritz, V.K. Mitrjushkin, M. Muller-Preussker, and A. Sternbeck, Phys. Rev. D 85, 034501 (2012).
- E. M. Ilgenfritz, J. M. Pawlowski, A. Rothkopf, and A. Trunin, Eur. Phys. J. C 78(2), 127 (2018).
- P.O. Bowman, U.M. Heller, D.B. Leinweber, M.B. Parappilly, A. Sternbeck, L. von Smekal, A.G. Williams, and J. Zhang, Phys. Rev. D 76, 094505 (2007).
- P.O. Bowman, U.M. Heller, D.B. Leinweber, M.B. Parappilly, and A.G. Williams, Phys. Rev. D 70, 034509 (2004).
- M. Albanese, F. Costantini, G. Fiorentini et al. (Ape Collaboration), Phys. Lett. B 197, 400 (1987).
- Y. Chen, A. Alexandru, S. Dong, T. Draper, I. Horváth, F.X. Lee, K.F. Liu, N. Mathur, C. Morningstar, M. Peardon, S. Tamhankar, B.L. Young, and J.B. Zhang, Phys. Rev. D 73, 014516 (2006).
- C. J. Morningstar and M. J. Peardon, Phys. Rev. D 60, 034509 (1999).
- N. Dupuis, L. Canet, A. Eichhorn, W. Metzner, J. M. Pawlowski, M. Tissier, and N. Wschebor, Phys. Rep. 910, 1 (2021).
- A. K. Cyrol, M. Mitter, J. M. Pawlowski, and N. Strodthoff, Phys. Rev. D 97, 054015 (2018).
- M. A. Shifman, A.I. Vainshtein, and V.I. Zakharov, Nucl. Phys. B **147**, 385 (1979).
- 13. E.V. Shuryak, Nucl. Phys. B **203**, 116 (1982).
- 14. C. Fischer, Progr. Part. Nucl. Phys. 105, 1 (2019).
- 15. A. Maas, Phys. Rept. 524, 203 (2013).
- R. Alkofer, P. Watson, and H. Weigel, Phys. Rev. D 65, 094026 (2002).
- C. Roberts, V. Bnagwat, A. Holl, and S. Wringht, Eur. Phys. J. ST **140**, 53 (2007).

- P. Maris and P.C. Tandy, Phys. Rev. C 60, 055214 (1999).
- S. M. Dorkin, L. P. Kaptari, and B. Kämpfer, Phys. Rev. C 91, 055201 (2015).
- S.-xue, L. Chang, Y.-x. Liu, and C. Roberts, Phys. Rev. D 84, 014017 (2011).
- M. Blank and A. Krassnigg, Phys. Rev. D 82, 034006 (2010).
- S. Dorkin, L. P. Kaptari, and B. Kämpfer, Few Body Syst. 60, 20 (2019).
- S. Dorkin, M. Viebach, L. Kaptari, and B. Kämpfer, J. Mod. Phys. 7, 2071 (2016).
- L. von Smekal, A. Hauck, and R. Alkofer, Ann. Phys. 267, 1 (1998).
- C. S. Fischer, P. Watson, and W. Cassing, Phys. Rev. D 72, 094025 (2005).
- L. P. Kaptari and B. Kämpfer, Few. Body Syst. 61, 28 (2020).
- A. Hauck, L. von Smekal, and R. Alkofer, Comput. Phys. Commun. 112, 149 (1998).
- 28. S. Mandelstam, Phys. Rev. D 20, 3223 (1979).
- K. Buttner and M.R. Pennington, Phys. Rev. D 52, 5220 (1995).
- D. Atkinson and J. C. R. Bloch, Phys. Rev. D 58, 094036 (1998).
- L. von Smekal, A. Hauck, and R. Alkofer, Phys. Rev. Lett. 79, 3591 (1997).
- R. Alkofer and L. von Smekal, Phys. Rept. 353, 281 (2001).
- A. Maas, J. Wambach, and R. Alkofer, Eur. Phys. J. C 42, 93 (2005).
- A. Cucchieri, A. Maas, and T. Mendes, Phys. Rev. D 75, 07600 (2007).
- W.-j. Fu, J. M. Pawlowski, and F. Rennecke, Phys. Rev. D 101, 054032 (2020).

#### Трансформация микроволновых резонансных свойств метаструктур с CdS и CdSe при одно- и двухфотонном возбуждении

Г. А. Крафтмахер<sup>1)</sup>, В. С. Бутылкин, Ю. Н. Казанцев, В. П. Мальцев, П. С. Фишер

Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А.Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия

Поступила в редакцию 30 июля 2021 г. После переработки 20 сентября 2021 г. Принята к публикации 1 октября 2021 г.

Предложены, реализованы и исследованы в волноводе и мета-интерферометре в диапазоне 3–12 ГГц управляемые методами фотоники метаструктуры, содержащие резонансные электропроводящие дипольные и киральные элементы с CdS и CdSe в разрывах. Впервые обнаружено в эксперименте, что при изменении мощности оптического излучения  $P_{\lambda}$ , направляемого оптоволокном в область разрыва, в ситуациях, когда энергия  $h\nu$  фотона не только выше ширины запрещенной зоны  $E_q [h\nu(\lambda_1 = 0.53 \text{ ккm}) > E_q],$ но и ниже ее  $[h\nu(\lambda_2 = 0.97 \text{ мкm}) < E_q]$ , в спектре прохождения микроволнового излучения происходит трансформация резонансного отклика соответствующего элемента (плавное изменение интенсивности практически до уровня прозрачности, сопровождаемое смещением частоты в сторону низких частот), а также трансформация полосы запрета в интерферограмме мета-интерферометра с изменением ширины в несколько раз. Наряду с этим, в условиях  $\lambda_2$ -облучения на поверхности CdS замечено оранжево-красное свечение, идентифицируемое как проявление антистоксовой люминесценции. Прямыми измерениями резонаторным методом комплексной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon^{\rm GHz}$  образцов CdS и CdSe обнаружены увеличение  $\text{Im}\varepsilon^{\text{GHz}}$  (с приближением к насыщению при  $\lambda_2$ ) и увеличение  $\text{Re}\varepsilon^{\text{GHz}}$  с ростом  $P_{\lambda}$ . Обнаружены закономерности одинакового проявления физических эффектов в микроволновом диалазоне частот при одно- и двухфотонном возбуждении применительно к плотностям потоков световой энергии  $S_1$  (при  $P_{\lambda 1}$ ) и  $S_2$  (при  $P_{\lambda 2}$ ):  $S_2 \gg S_1$ ;  $S_2^2/S_1 = \text{constant}$ .

DOI: 10.31857/S1234567821210023

Введение. Одним из важных разделов метаматериальной тематики являются перестраиваемые, управляемые и реконфигурируемые метаматериалы (метаповерхности, метаструктуры, метаатомы), в которых электродинамические объекты объединяются с объектами, обладающими другими интересными физическими свойствами, управляемыми внешним воздействием, например, электрическим напряжением, магнитным полем или оптическим излучением. Метаматериалы – искусственно созданные композиционные среды, свойства которых, обусловленные не химическим составом, а геометрией и размерами, не присущи природным материалам.

История развития направления "Метаматериалы" свидетельствует о взаимном проникновении методов и подходов оптического и микроволнового диапазонов. Известные в оптическом диапазоне киральные объекты, такие как ДНК, белки-коллагены, в молекулах которых расположение атомов имеет вид спиральных цепочек, были взяты за основу при создании киральных метаматериалов микроволнового

диапазона [1], совместимых с элементами электрического управления (варакторы) [2], электрическиоптического с использованием комбинации варакторфотодиод в фотогальваническом режиме (без внешнего источника) [3] и магнитного [4-6] для применений в управляемых фильтрах [7–10], интерферометрии [11, 12], переключателях невзаимности распространения микроволн [13–15]. В свою очередь, знания о резонансных откликах в микроволновом диапазоне оказались полезными для создания, благодаря нанотехнологиям, в оптическом и терагерцовом диапазонах метаматериалов, для управления которыми в основном развиваются методы фотоники с применением полупроводников [16-20], опередив микроволновый диапазон, требующие знаний об их свойствах: энергетическое состояние, взаимодействие с электромагнитными волнами, поведение диэлектрической проницаемости, механизмы поглощения. Как правило, используются базовые полупроводники, такие как кремний, арсенид галлия, германий, которые нашли применение во многих устройствах микроэлектроники. В основе управления лежит зависимость поглощения от фотопроводимости

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: gaarkr139@mail.ru

и эффект металлизации при насыщении. Для расчетов используется модель Друде [21], которая была разработана для металлов и оказалась приемлемой для полупроводников в инфракрасном и терагерцовом диапазоне; предлагается модель [22] применительно к графену и некоторым полупроводникам.

В настоящее время рассматривают и метаматериалы для микроволнового диапазона на основе кремния при фотовозбуждении инфракрасным светом, когда энергия фотона  $h\nu$  выше ширины запрещенной зоны  $E_g$  [23]. В расчетах используют модель Друде, комплексную диэлектрическую проницаемость определяют на основе измерений коэффициентов прохождения и отражения электромагнитных волн в свободном пространстве. В [24] исследуется модулятор, основанный на поглощении в кремнии в зависимости от импульсного лазерного излучения.

Необходимость учитывать частотную дисперсию диэлектрической проницаемости полупроводников под влиянием фотовозбуждения, зависимость от длины волны оптического излучения, влияние специфики энергетических состояний приводит к трудностям и не позволяет создать теорию, охватывающую весь спектральный диапазон.

Поэтому возрастает роль эксперимента, учитывая радиофотонный прорыв и развитие микроволновой фотоники, связанной с проблемами передачи, приема и преобразования информации с помощью волн микроволнового диапазона и фотонных систем. В связи с этим востребованы метаматериалы, метаатомы, метаповерхности и метаструктуры, позволяющие использовать прямые оптические методы управления в микроволновом диапазоне, основанные на применении полупроводников в условиях фотовозбуждения. При этом необходимо учитывать, что функциональные свойства метаматериала во многом определяет динамика комплексной диэлектрической проницаемости полупроводника, поскольку процессы металлизации при насыщении затрудняются из-за влияния скин-эффекта.

Разнообразие полупроводников и метаструктур, возможности волоконно-оптического управления, позволяющего оказывать воздействие на отдельные метаатомы структуры, возможность использовать как инфракрасное, так и видимое облучение могут стимулировать обнаружение новых свойств, поиски новых решений и применений в микроволновом диапазоне или выяснение механизмов фотовозбуждения измерениями в микроволновом диапазоне.

В данной работе мы впервые используем в соответствующих метаструктурах полупроводники CdS и CdSe, обратив внимание на их фоторезистивные свойства, результаты исследований двухфотонного возбуждения в CdS по спектрам фотолюминесценции при сравнении с однофотонным [25], по оптическому поглощению [26]; на применение CdSe при двухфотонном возбуждении в полупроводниковых лазерах с оптической (лазерной) накачкой [27].

Исследуем два типа метаструктур (I и II), на основе дипольных элементов (линейных резонансных проводов) и киральных кольцевых, объединенных с элементами оптического управления (пластинки CdS или CdSe в разрывах). Их резонансные электромагнитные свойства, обусловленные не химическим составом, а геометрией и размерами элементов, могут, как покажем ниже, управляться в условиях фотовозбуждения CdS и CdSe.

С целью исследования взаимосвязи между электромагнитными свойствами CdS и CdSe в микроволновом диапазоне частот и резонансными откликами метаструктур измеряем в диапазоне 3-12 ГГц частотную зависимость коэффициентов прохождения Т в волноводе и интерферограмму в метаинтерферометре [11] с метаструктурами при изменении мощности волоконно-оптического излучения  $P_{\lambda}$  в непрерывном режиме. Исследуем динамику диэлектрической проницаемости CdS (CdSe) и влияние на резонансный отклик. Представляет интерес проводить эти исследования как в условиях однофотонного возбуждения, когда энергия фотона выше ширины запрещенной зоны  $[h\nu(\lambda_1 = 0.53 \text{ мкм}) > E_q],$ так и двухфотонного, когда  $[h\nu(\lambda_2 = 0.97 \text{ мкм})] <$  $< E_a$ ], учитывая специфику двухфотонного возбуждения, связанную с более глубоким проникновением света в полупроводниковую среду [28], и возможность применений в микроволновом диапазоне частот.

Трансформация ГГц-резонансного отклика с метаструктурой I при фотовозбуждении. Метаструктура I на основе резонансных проводов (схема и фото на рис. 1) представляет собой частопериодическую решетку (длиной l = 30 мм) параллельных медных проводов (диаметр 0.1 мм, расстояние между проводами 0.2 мм), внедренных в диэлектрическую пленку, в комбинации с ортогонально асимметрично расположенной медной полоской 3 с разрывом (0.5 мм), нагруженным тонкой пластинкой CdS или CdSe 4. Полоска шириной 1.5 мм расположена на пенопластовой 1-мм подложке 5. Подобная электрически управляемая структура с варактором в разрыве медной полоски исследовалась в [29]. Электродинамические свойства в микроволновом диапазоне частот метаструктуры, расположенной вдоль оси прямоугольного волновода, обусловливаются тремя резо-



Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема (а) и фото (b) метаструктуры: 1 – решетка параллельных резонансных проводов; 2 – LC-контур; 3 – медная полоска с разрывом; 4 – пластинка CdS в разрыве; 5 – подложка

нансными эффектами. Один из них – это дипольный резонанс в проводах решетки 1 (при длине провода  $l_w = \lambda/2$ ), возбуждаемый микроволновым электрическим полем Е. Другой резонансный эффект связан с возбуждением индукционных антипараллельных токов в пространственных LC-контурах 2, образованных парой соседних проводов решетки и соответствующей секцией медной полоски, возбуждаемых микроволновым магнитным полем Н (резонанс магнитного типа), направленным перпендикулярно плоскости решетки. При этом вдоль медной полоски 3 распространяется суммарный резонансный ток за счет вкладов одинаково направленных токов от каждого из контуров, который и определяет третий резонансный отклик в виде резонансной зависимости коэффициента прохождения Т от частоты. Разные типы резонансов (дипольный в проводах 1 решетки, магнитные в LC-контуре 2 и медной полоске 3), проявляемые в виде резонансного минимума  $T_{\min}$ , можно возбуждать раздельно в заданных диапазонах длин волн, выбирая необходимые размеры проводов решетки  $l_w$  и полоски  $l_s$ .

Оптоволокно (диаметры при  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  равны 400 и 110 мкм) подводим к разрыву в полоске на расстоянии приблизительно 1.5 мм перпендикулярно поверхности полупроводника. Образцы CdS и CdSe толщиной 0.35 мм получаем шлифовкой заготовок фоторезисторов ФСК-2 и ФСД-1.

Метаструктуру располагаем вдоль оси прямоугольного волновода ( $48 \times 24$  мм), а в метаинтерферометре в качестве разделителя пучка напротив закороченного *H*-плеча длиной *s*.

Результаты исследований с метаструктурой I  $(l_w = 16, l_s = 42 \text{ мм})$  и I\*  $(l_w = 19, l_s = 52 \text{ мм})$ , CdS или CdSe в разрыве медной полоски, приведены на рис. 2a–f.

Рисунки 2a-d относятся к измерениям в волноводе. На рисунке 2а наблюдаем управляемый отклик медной полоски 3 (кривая 3) с метаструктурой I и CdS. При  $P_{\lambda 2} = 0$  коэффициент прохождения  $T_{0\min} = -19.5 \, \mathrm{дE}$ , резонансная частота  $f_0 =$  $= 4.62 \Gamma \Gamma$ ц. С увеличением  $P_{\lambda 2} = 250 \,\mathrm{MBt}$  происходит увеличение прохождения на резонансной частоте (приближаясь к уровню прозрачности), сопровождаемое расширением и сдвигом резонансной частоты к низким частотам:  $T_{\min 250 \text{mW}} = -8.5 \text{ дБ}, f_{250 \text{mW}} =$  $= 4.57 \, \Gamma \Gamma \mu$ . Обозначение на кривой  $\beta (250 \, \mathrm{MBt})$  означает, что облучается элемент 3 при мощности оптической накачки 250 мВт. На рисунке 2b, с показана трансформация резонанса 3 с метаструктурой I\*, размеры которой позволяют наблюдать в заданном диапазоне частот резонансные отклики 3 и 2. Видим эффект увеличения T<sub>min</sub> с CdS и CdSe в случае  $h\nu(\lambda_2 = 0.97 \text{ мкм}) < E_q$  при  $P_{\lambda 2} = 250 \text{ мВт.}$  При этом резонанс 2 сохраняется без изменения интенсивности, а резонанс 3 практически исчезает. На рисунке 2d продемонстрирована трансформация резонанса 3 с CdS в случае  $h\nu(\lambda_1 = 0.53 \text{ мкм}) > E_q$  без изменения резонанса 2 при  $P_{\lambda 1} = 30 \,\mathrm{MBt}$ . Сравнивая с рис. 2b, видим, что требуемая для одинаковой трансформации резонанса 3 мощность  $P_{\lambda 1} \ll P_{\lambda 2}$ .

Наряду с эффектами, наблюдаемыми в микроволновом диапазоне частот, в условиях  $\lambda_2$ -облучения (двухфотонное возбуждение) на поверхности CdS появляется оранжево-красное свечение, идентифицируемое проявлением антистоксовой люминесценции, что согласуется с наблюдениями и исследованиями спектров фотолюминесценции с максимумом в зеленой области при возбуждении рубиновым лазером (0.69 мкм) [25].

Исследуем динамику интерферограммы с метаструктурой I в двух режимах мета-интерферометра.



Рис. 2. (Цветной онлайн) Измеренная динамика частотных зависимостей коэффициента прохождения T (дБ) с метаструктурой I и I\* при фотовозбуждении CdS или CdSe в разрыве 3 ( $\lambda_2 = 0.97$  мкм и  $\lambda_1 = 0.53$  мкм) в волноводе (a)–(d) и с CdS в разрыве 3 метаструктуры I в мета-интерферометре при  $\lambda_2$  (e), (f): I с CdS при  $\lambda_2$  (a), I\* с CdS и CdSe при  $\lambda_2$  (b), (c), I\* с CdS при  $\lambda_1$  (d),  $s_1 = 290$  мм (e),  $s_2 = 310$  мм (f)

В случае  $s_1 = 290$  мм (рис. 2е) резонанс 3 обусловливает появление дополнительной довольно широкой полосы запрета в интерферограмме между двумя узкими интерференционными полосами запрета интерферометра: ( $T_{0 \min} = -20 \text{ дB}, f_0 = 4.72 \Gamma \Gamma \mu$ ). На рис. 2е видно, что с увеличением  $P_{\lambda 2}$  плавно увеличивается  $T_{\min}$  широкой полосы, приближаясь к уровню

прозрачности без изменений других интерференционных полос. При изменении длины H-плеча состояние интерферограммы меняется и появляется возможность совместить узкую интерференционную полосу мета-интерферометра с широкой полосой, связанной с резонансным откликом полоски 3. Так, в случае  $s_2 = 310$  мм (рис. 2f) широкая и узкая полосы запрета совмещаются, и с исчезновением резонанса  $\beta$  при  $P_{\lambda 2} = 250$  мВт происходит трансформация пирокой полосы в узкую: уменьшается пирина резонансной кривой в несколько раз без изменения интерферограммы мета-интерферометра.

Исследования в волноводе и мета-интерферометре показывают, что применяя простейшую метаструктуру I из линейных проводов резонансного размера, можно формировать селективно управляемый многорезонансный отклик. При этом управляется только резонанс, возбуждаемый в медной полоске, нагруженной CdS (CdSe), не оказывая влияние на резонансы в LC-контуре, в проводах решетки и на интерференционные полосы мета-интерферометра. Это связано с увеличением (см. ниже) мнимой части диэлектрической проницаемости CdS (CdSe) с ростом  $P_{\lambda}$ , приводящим к ослаблению наведенных резонансных токов в полоске и тем самым – уменьшению интенсивности резонанса. Возможность легко менять размеры проводов и полоски позволяет менять положение резонансов и формировать разнообразные селективно управляемые отклики, что востребовано при разработке управляемых многополосных фильтров в многофункциональных и многоканальных системах связи.

Селективное управление в многорезонансном отклике наблюдается и с метаструктурой II.

Трансформация ГГц-резонансного отклика с метаструктурой II при фотовозбуждении. Метаструктура II представляет собой цепочку медных резонансных планарных кольцевых киральных элементов (диаметр 6.5 мм), расположенных на расстоянии нескольких миллиметров. В качестве элементов (метаатомов) используются двойные разомкнутые кольца с пластинкой CdS или CdSe, перекрывающей внешний разрыв (double split ring resonators, DSR); дважды разомкнутые одинарные кольца с двумя разрывами, один из которых нагружен пластинкой полупроводника (twice split ring resonators, TSR); спирали в полтора оборота с пластинкой полупроводника между внешним и внутренним проводом (Sp). Элементы изготовлены методами фотолитографии на металлизированных медью полиамидных пленках. Double split ring resonators DSR довольно подробно изучены теоретически и экспериментально, предложены авторами работ [30, 31].

Метаструктуру располагаем вдоль оси волновода так, чтобы микроволновое магнитное поле H было направлено вдоль оси элементов, возбуждая резонансы магнитного типа (схема с метаструктурой  $II^*$  из трех элементов в волноводе представлена на рис. 3).



Рис. 3. (Цветной онлайн) Метаструктура II из трех кольцевых элементов в волноводе (схема)

Исследуем функциональные электромагнитные свойства метаструктур II и II\* при фотовозбуждении CdS и CdSe. Метаструктура II содержит в цепочке 2 элемента: TSR с CdSe в одном из разрывов и DSR с CdSe во внешнем разрыве (вставка к рис. 4a, b); метаструктура II\* содержит 3 элемента: DSR, DSR с CdS во внешнем разрыве и Sp с CdSe между внешним и внутренним проводом (вставка к рис. 4c).

Трансформация резонансных свойств метаструктур II и II<sup>\*</sup> в волноводе в условиях двухфотонного возбуждения приведена на рис. 4а–с. Фото метаструктур представлены на соответствующих вставках, каждому элементу соответствует определенный резонансный отклик в спектре T, который отмечаем номером элемента. Информация о мощности оптической накачки содержит номер облучаемого элемента.

Рисунок 4a, b относится к метаструктуре II из двух метаатомов: twice split ring resonator TSR с CdSe в одном из разрывов и double split ring resonator DSR с CdSe в разрыве внешнего кольца (отмечаем цифрами 1 и 2 элементы на фото и соответствующие отклики на графиках). На рисунке 4a показана трансформация резонансного отклика 1 с изменением  $P_{\lambda 2}$  при облучении TSR (1). Наблюдаем плавное увеличение  $T_{\rm min}$  резонанса 1, сопровождаемое смещением резонансной частоты к низким частотам, без изменения резонанса 2. На рисунке 4b изменения происходят с резонансным откликом 2, без изменения резонанса 1, при облучении DSR (2).

Рисунок 4с относится к метаструктуре II\*, состоящей из трех метаатомов: DSR (1), DSR с CdS (2), Sp с CdSe (3). Показана поочередная трансформация резонансов 2 и 3 при поочередном облучении элементов 2 и 3 с поочередным увеличением  $T_{\min}$  в случае  $P_{\lambda 2} = 250$  мВт. Видим, что облучение CdS в элементе 2 приводит к трансформации резонанса 2 практически до уровня прозрачности (резонанс исчезает) и не влияет на резонансы 1 и 3. Облучение CdSe в элементе 3 приводит к увеличению  $T_{\min}$  резонанса 3



Рис. 4. (Цветной онлайн) Измеренная динамика частотных зависимостей коэффициента прохождения T (дБ) в волноводе при изменении  $P_{\lambda 2}$ : с метаструктурой II (TSR-1 с CdSe в разрыве и DSR-2 с CdSe в разрыве внешнего кольца) (a), (b), (a) – облучение 1, (b) – облучение 2; с метаструктурой II\* (DSR-1, DSR-2 с CdS, Sp-3 с CdSe) (c). Фото метаструктур на соответствующих вставках

без изменения резонанса 1 при небольшом изменении резонанса 2.

Таким образом, разная геометрия элементов, отличия собственных резонансных частот приводят к формированию многорезонансного отклика метаструктур II, II\* в спектре коэффициента прохождения в микроволновом диапазоне частот, а при адресном волоконно-оптическом воздействии на определенный разрыв с CdS или CdSe соответствующего элемента к возможности селективного управления. Для выяснения отличий, связанных с однофотонным возбуждением, исследуем воздействие  $P_{\lambda 1}$  на резонансный отклик в микроволновом диапазоне частот в сравнении с  $P_{\lambda 2}$ , используя одинарное кольцо TSR с CdSe (CdS) в разрыве (рис. 5а, b). На рисунке 5а видно, что при P = 0 коэффициент прохождения  $T_{0 \min} = -16 \, \text{дБ}, f_0 = 10.07 \, \Gamma \Gamma \mu$ . При мощности облучения  $P_{\lambda 1} = 4 \, \text{мBT}$  (плотность потока энергии  $S_1 = 0.032 \, \text{BT/cm}^2, T_{1 \min} = -7 \, \text{дБ}, f_1 = 9.95 \, \Gamma \Gamma \mu$ ), для достижения таких же параметров резонанса тре-



Рис. 5. (Цветной онлайн) Трансформация частотной зависимости микроволнового резонансного отклика TSR в волноводе при изменении  $P_{\lambda 1}$  и  $P_{\lambda 2}$ : (a) – c CdSe,  $1 - P_{\lambda 1} = 4 \text{ MBT} (S_1 = 0.032 \text{ BT/cm}^2)$ ;  $2 - P_{\lambda 2} = 90 \text{ MBT} (S_2 = 2.9 \text{ BT/cm}^2)$ ;  $3 - P_{\lambda 1} = 20 \text{ MBT} (S_1 = 0.16 \text{ BT/cm}^2)$ ;  $4 - P_{\lambda 2} = 200 \text{ MBT} (S_2 = 6.4 \text{ BT/cm}^2)$ ; (b) – c CdS,  $1 - P_{\lambda 1} = 1 \text{ MBT} (S_1 = 0.008 \text{ BT/cm}^2)$ ;  $2 - P_{\lambda 2} = 100 \text{ MBT} (S_2 = 3.2 \text{ BT/cm}^2)$ ;  $3 - P_{\lambda 1} = 4 \text{ MBT} (S_1 = 0.032 \text{ BT/cm}^2)$ ;  $4 - P_{\lambda 2} = 230 \text{ MBT} (S_2 = 7.3 \text{ B/cm}^2)$ 

буется  $P_{\lambda 2} = 90 \text{ мBt}$  ( $S_2 = 2.9 \text{ Bt/cm}^2$ ). С увеличением  $P_{\lambda 1} = 20 \text{ мBt}$  ( $S_1 = 0.16 \text{ Bt/cm}^2$ ) увеличивается  $T_{2 \min}$  почти до уровня прозрачности (со стороны высоких частот), требуемая для этого  $P_{\lambda 2} = 200 \text{ мBt}$  ( $S_2 = 6.4 \text{ Bt/cm}^2$ ). Видим, что для достижения одного и того же значения  $T_{\min}$  мощность  $P_{\lambda 2} \gg P_{\lambda 1}$ . При этом максимальное смещение частоты резонанса в сторону низких частот составляет 5%. На рисун-

ке 5<br/>b аналогичный эффект подтверждается для TSR с CdS.

Для выяснения влияния электромагнитных свойств CdS и CdSe на трансформацию резонансных откликов важно провести измерения их диэлектрической проницаемости в микроволновом диапазоне частот при одно- и двухфотонном возбуждении, учитывая также отсутствие соответствующих публикаций.

Ниже покажем, что результаты измерений диэлектрической проницаемости CdS и CdSe и результаты, представленные на рис. 5а, b, наряду с теоретическими исследованиями выявляют ряд закономерностей применительно к плотности потоков энергии.

Особенности ГГц-диэлектрической проницаемости образцов CdS и CdSe при одно- и двухфотонном возбуждении. Применив прямой резонаторный метод [32], исследуем динамику комплексной диэлектрической проницаемости  $\delta \varepsilon^{\mathrm{GHz}}$  образцов CdS и CdSe в условиях  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ -облучения в зависимости от  $P_{\lambda}$  (относительно  $P_{\lambda} = 0$  для исключения из определяемых параметров объема образца). Используем волноводный резонатор  $(48 \times 24 \times 40 \text{ мм})$ отражательного типа, измеряя для повышения чувствительности добротность резонатора не по ширине резонансной кривой, а по глубине (коэффициенту отражения R от резонатора на резонансной частоте f) [33]. Метод позволяет при использовании преимуществ волоконно-оптического облучения исследовать образцы малых размеров. Образец (приблизительные размеры  $4 \times 4.5 \times 0.35$  мм) располагаем в пучности микроволнового электрического поля E, направленного параллельно его поверхности. Оптоволокно направляем перпендикулярно к центру образца через отверстие в резонаторе.

Определяем:

$$\delta \operatorname{Im} \varepsilon^{\operatorname{GHz}} = \frac{\operatorname{Im} \varepsilon_{P\lambda}^{\operatorname{GHz}}}{\operatorname{Im} \varepsilon_{P=0}^{\operatorname{GHz}}} = \left[ \frac{1+R_{P\lambda}}{1-R_{P\lambda}} - \frac{1+R}{1-R} \right] \left[ \frac{1+R_{P=0}}{1-R_{P=0}} - \frac{1+R}{1-R} \right]^{-1}; \quad (1)$$
$$\delta \operatorname{Re} \varepsilon^{\operatorname{GHz}} = (\operatorname{Re} \varepsilon_{P\lambda}^{\operatorname{GHz}} - 1)(\operatorname{Re} \varepsilon_{P=0}^{\operatorname{GHz}} - 1)^{-1} = \left[ (f-f_{P\lambda})f_{P=0} \right] \left[ (f-f_{P=0})f_{P\lambda} \right]^{-1}, \quad (2)$$

где R,  $R_{P=0}$ ,  $R_{P\lambda}$  – коэффициент отражения по напряжению от пустого резонатора, резонатора с образцом при P = 0 и при  $P_{\lambda}$ ; f,  $f_{P=0}$ ,  $f_{P\lambda}$  – частота резонатора без образца, с образцом при P = 0 и при  $P_{\lambda}$ .

Результаты измерений образцов CdS и CdSе приведены на рис. 6a, b. На рисунках 6a, b видно,

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021



Рис. 6. (Цветной онлайн) Измеренная в резонаторе динамика диэлектрической проницаемости  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$  и  $\delta \operatorname{Re} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$  относительно  $P_{\lambda} = 0$  в зависимости от  $P_{\lambda}$  образцов CdS и CdSe при  $\lambda_1 = 0.53$  мкм и  $\lambda_2 = 0.97$  мкм. Сплошные линии (Im  $\varepsilon$ ), пунктирные (Re  $\varepsilon$ ) для CdS (a) и CdSe (b)

что  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$  (сплошная кривая) увеличивается в несколько раз с ростом  $P_{\lambda}$  (приближаясь к насыщению в случае возбуждения при  $\lambda_2 = 0.97$  мкм). Наблюдается увеличение  $\delta \operatorname{Re} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$  (пунктирная кривая), что является отклонением от модели Друде, предсказывавшей уменьшение. Увеличение  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$ согласуется с моделью Друде и наблюдениями в ТГцдиапазоне с другими полупроводниками [16]. Как видно из рис. 6а, b, в CdS и CdSe наблюдается одинаковое увеличение Im  $\varepsilon^{\operatorname{GHz}}$  при однофотонном и двухфотонном возбуждении при требуемых величинах  $P_{\lambda 2} \gg P_{\lambda 1}$  (дополнительное условие см. ниже).

Наблюдаемые изменения  $\delta \varepsilon^{\text{GHz}}$  согласуются с динамикой резонансных откликов метаструктур и объясняют их свойства. Так, увеличение  $\delta \text{Im } \varepsilon^{\text{GHz}}$  с ростом  $P_{\lambda}$  приводит к ослаблению наведенных резонансных токов в элементах метаструктуры и тем самым уменьшает интенсивность резонанса; увеличение  $\delta \text{Re } \varepsilon^{\text{GHz}}$  должно приводить к смещению частоты микроволнового отклика к низким частотам, что и наблюдается (рис. 5).

Обнаруженные закономерности применительно к плотности потоков энергии S<sub>1</sub> (при  $P_{\lambda 1}$ ) и S<sub>2</sub> (при  $P_{\lambda 2}$ ). Представляет интерес сопоставить наблюдаемые закономерности с результатами теоретического исследования одно- и двухфотонного возбуждения уровней объектов атомномолекулярного типа. В [34] приведено учитывающее эффект насыщения населенностей, связанного у полупроводников с электрон-дырочной рекомбинацией, выражение для разности населенностей основного 1 и возбужденного 2 уровней в стационарном режиме при резонансах *q*-го порядка (однофотонному резонансу соответствует q = 1, двухфотонному q = 2), откуда для достаточно низкой температуры следует определяющая концентрацию носителей заряда населенность возбужденного уровня

$$\sigma_{22}^{\rm st} \approx 0.5 \left\{ 1 + U^2 \left[ 1 + (\Delta_q - \Omega(\omega))^2 T^2 \right] / |\nu_{12}^{(q)}|^2 \right\}^{-1}.$$
(3)

Энергия  $U = \hbar/2\sqrt{\tau T}$  насыщения перехода между уровнями 1 и 2 связана с "продольным и поперечным" релаксационными временами ( $\tau$  – "время жизни верхнего уровня", T – "обратная полуширина перехода между уровнями"),  $\Omega(\omega)$  – величина динамического штарковского сдвига частоты перехода 1–2 под действием света частоты  $\omega$ ,  $\Delta_q = \omega_{21} - q\omega$  – расстройка для резонанса q-го порядка перехода частоты  $\omega_{21}$ ,  $\nu_{12}^{(q)}$  – амплитуда усредненного гамильтониана, выражаемая через комплексные амплитуды  $\mathbf{E}_{\omega}$  световой волны и поляризуемости  $\hat{\kappa}_{12}^{(q)}(\omega)$  перехода. В частности, для одно- и вырожденого по частоте ( $\omega_{21} \approx 2\omega$ ) двухфотонного поглощения

$$\nu_{12}^{(1)} = -\mathbf{d}_{12}\mathbf{E}_{\omega}, \quad \nu_{12}^{(2)} = \sum_{k} \frac{(\mathbf{d}_{1k}\mathbf{E}_{\omega})(\mathbf{d}_{k2}\mathbf{E}_{\omega})}{\hbar(\omega_{1k}+\omega)} =$$
$$= \hat{\boldsymbol{\kappa}}_{12}^{(2)}(\omega) : \mathbf{E}_{\omega}\mathbf{E}_{\omega}. \tag{4}$$

Здесь  $\mathbf{d}_{mn}$  – матричные элементы дипольного момента частицы для уровней m и n, k – индексы виртуальных уровней,  $|E_{\omega}|^2 = 2\pi c^{-1}S_{\omega}, S_{\omega}$  – плотность потока энергии световой волны частоты  $\omega$ .

Из (3), (4) нетрудно найти, что потоки энергии световых волн, необходимых для достижения одинаковых заселенностей возбужденного состояния в одно- и двухфотонном процессах (и, следовательно, для наблюдения одинаковых проявлений фотовозбуждения), должны удовлетворять условию

$$\frac{S_{\omega_2}^2}{S_{\omega_1}} = \frac{c}{2\pi} \frac{|\mathbf{d}_{12}\mathbf{e}_{\omega_1}|^2 [1 - (\Delta_2 - \Omega(\omega_2))^2 T^2]}{|\hat{\kappa}_{12}^{(2)}(\omega_2)|^2 [1 + (\Delta_1 - \Omega(\omega_1))^2 T^2]}, \quad (5)$$

где двухфотонная поляризуемость  $\hat{\kappa}_{12}^{(2)}(\omega) = \sum_{k} \frac{(\mathbf{d}_{1k} \mathbf{e}_{\omega})(\mathbf{d}_{k2} \mathbf{e}_{\omega})}{\hbar(\omega_{1k}+\omega)}, \ \omega_{1}$  и  $\omega_{2}$  – частоты излучения, обеспечивающего одно- и двухфотонное возбуждение,  $\mathbf{e}_{\omega}$  – единичные векторы поляризации этого излучения.

Если расстройки  $\Delta_1$  и  $\Delta_2$  мало различаются и много меньше ширины возбужденного уровня, а штарковские сдвиги тоже невелики, на выражения в квадратных скобках (5) можно сократить и соотношения для потоков энергии в левой части (5) практически постоянны независимо от заданной концентрации носителей зарядов (лишь бы она была одинаковой для одно- и двухквантового фотовозбуждения).

В экспериментах фотовозбуждение проявляется в зависимостях  $T_{\min}$  резонансных откликов и динамике  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$ . Одинаковость проявления одно- и двухфотонного возбуждения выражается в достижении одного и того же значения  $T_{\min}$  и  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$ . При этом обнаруживаются определенные закономерности, связывающие плотность потока энергии  $S_2$  (двухфотонное возбуждение) и  $S_1$  (однофотонное). Следуя теории применительно к микроволновым эффектам, отношение  $S_2^2/S_1$  при достижении  $T_{1\min}$  должно сохраняться и при  $T_{2\min}$ , что согласуется с экспериментами.

Из результатов рис. 5а (CdSe в разрыве TSR) видим: для  $T_{1 \min} = -7 \, \mathrm{дB}$  отношение  $S_2^2/S_1 \cong$  $\cong 263 \, \mathrm{Br/cm^2}$  сохраняется для  $T_{2 \min} = -6 \, \mathrm{дB}$  $(S_2^2/S_1 \cong 256 \, \mathrm{Br/cm^2})$ . На рисунке 5b (CdS в разрыве) для  $T_{1 \min} = -10 \, \mathrm{дB}$  отношение  $S_2^2/S_1 \cong$  $\cong 1300 \, \mathrm{Br/cm^2}$  сохраняется в пределах погрешности для  $T_{2 \min} = -9 \, \mathrm{дB} \, (S_2^2/S_1 \cong 1600 \, \mathrm{Br/cm^2})$ .

Подобная закономерность выявляется и в зависимостях  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon^{\operatorname{GHz}}$  (рис. 6a, b). Так, у CdS (рис. 6a) для достижения  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon_1^{\operatorname{GHz}} = 1.9 \ [P_{\lambda_2} = 50 \ \mathrm{mBt} (1.6 \ \mathrm{Bt/cm}^2), P_{\lambda 1} = 0.2 \ \mathrm{mBt} (0.0016 \ \mathrm{Bt/cm}^2)]$  отношение  $S_2^2/S_1 = 1600 \ \mathrm{Bt/cm}^2$ ; для достижения  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon_2^{\operatorname{GHz}} = 2.5 \ [P_{\lambda_2} = 100 \ \mathrm{mBt} (3.2 \ \mathrm{Bt/cm}^2), P_{\lambda 1} = 1 \ \mathrm{mBt} (0.008 \ \mathrm{Bt/cm}^2)]$  отношение  $S_2^2/S_1 = 1500 \ \mathrm{Bt/cm}^2$ ; для достижения  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon_3^{\operatorname{GHz}} = 3 \ [P_{\lambda_2} = 150 \ \mathrm{mBt} (4.8 \ \mathrm{Bt/cm}^2), P_{\lambda_1} = 2 \ \mathrm{mBt} (0.016 \ \mathrm{Bt/cm}^2)]$  отношение  $S_2^2/S_1 = 1500 \ \mathrm{Bt} (4.8 \ \mathrm{Bt/cm}^2), P_{\lambda_1} = 2 \ \mathrm{mBt} (0.016 \ \mathrm{Bt/cm}^2)]$  отношение  $S_2^2/S_1 = 1440 \ \mathrm{Bt/cm}^2$ ; для достижение  $S_2^2/S_1 = 140 \ \mathrm{Bt/cm}^2$ ; для достижение  $S_2^2/$ 

ния  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon_{4}^{\operatorname{GHz}} = 3.5 [P_{\lambda 2} = 200 \operatorname{MBt} (6.4 \operatorname{Bt/cm}^2), P_{\lambda 1} = 4 \operatorname{MBt} (0.032 \operatorname{Bt/cm}^2)]$  отношение  $S_2^2/S_1 = 1280 \operatorname{Bt/cm}^2$ . У CdSe (рис. 6b) условие  $S_2^2/S_1 \cong 30 \operatorname{Bt/cm}^2$  выполняется для  $\delta \operatorname{Im} \varepsilon_{1,2,3}^{\operatorname{GHz}} = 1.9; 2.5; 3.$ 

Для объектов атомно-молекулярного типа с дискретными уровнями постоянство отношения  $S_2^2/S_1$ объясняется тем, что стационарные населенности уровней устанавливаются в условиях равновесия между процессами релаксации в энергетическом спектре и фотоиндуцированными переходами, вероятность которых при однофотонном возбуждении пропорциональна плотности потока энергии излучения, а при двухфотонном – ее квадрату. В напих опытах изменения этого отношения тоже невелики, для объяснения чего, видимо, можно привлечь аналогию энергетических зон полупроводника с однородно-уширенными уровнями атомномолекулярного объекта.

Заключение. Впервые в метаструктурах применены CdS и CdSe в разрывах элементов, позволившие в микроволновом диапазоне частот обеспечить волоконно-оптическое адресное воздействие на динамику их диэлектрической проницаемости и обнаружить независимую трансформацию резонансного отклика элемента в многорезонансном спектре при однофотонном ( $\lambda_1 = 0.53$  мкм) и двухфотонном ( $\lambda_2 = 0.97$  мкм) возбуждении.

Обнаружено увеличение  $\text{Re} \, \varepsilon^{\text{GHz}}$  образцов CdS и CdSe с ростом мощности облучения  $P_{\lambda}$ , что согласуется с динамикой резонансного отклика метаструктуры, смещающегося в сторону низких частот, но является отклонением от модели Друде, предсказывавшей уменьшение.

Обнаружено также увеличение Im  $\varepsilon^{\text{GHz}}$  в несколько раз (с приближением к насыщению в случае двухфотонного возбуждения при  $\lambda_2$ ).

Найдены закономерности одинакового проявления одно- и двухфотонного возбуждения в характеристиках  $\delta \varepsilon^{\text{GHz}}$  и резонансных откликах при достижении одного и того же значения  $\delta \text{Im} \varepsilon^{\text{GHz}}$  и  $T_{\min}$ применительно к плотностям потоков световой энергии  $S_1$  (при  $P_{\lambda 1}$ ) и  $S_2$  (при  $P_{\lambda 2}$ ):  $S_2 \gg S_1$ ;  $S_2^2/S_1 =$ = constant.

Обсуждаемые эффекты экспериментально продемонстрированы с разными метаструктурами в разных электродинамических системах (волновод, метаинтерферометр), разными образцами CdS и CdSe в резонаторе, что отражает общий характер взаимосвязи между явлениями в фотонике и электродинамике при фотовозбуждении. Полученные результаты открывают новые методы и подходы микроволновой фотоники с применением метаструктур и могут быть полезны в разработке управляемых коммуникационных систем и качественных экспресс-тестов для поиска новых перспективных динамичных сред.

Работа выполнена за счет бюджетного финансирования в рамках государственного задания по теме 0030-2019-0014.

- I. V. Lindell, A. H. Sihvola, S. A. Tretyakov, and A. J. Viitanen, *Electromagnetic Waves in Chiral and Bi-isotropic Media*, Artech House, Norwood, MA (1994).
- A. Velez, J. Bonache, and F. Martin, IEEE Microw. Wirel. Compon. Lett. 18(1), 28 (2008).
- P. V. Kapitanova, S. I. Maslovski, I. V. Shadrivov, P. M. Voroshilov, D. S. Filonov, P. A. Belov, and Y. S. Kivshar, Appl. Phys. Lett. 99, 251914 (2011); https://doi.org/10.1063/1.3671617.
- Y. X. He, P. He, S. D. Yoon, P. V. Parimi, F. J. Rachford, V. G. Harris, and C. Vittoria, J. Magn. Magn. Mater. 313, 187 (2007).
- H. J. Zhao, J. Zhou, Q. Zhao, B. Li, L. Kang, and Y. Bai, Appl. Phys. Lett. **91**(13), 131107 (2007).
- G. Srinivasan, A.S. Tatarenko, and M.I. Bichurin, Electron. Lett. 41(10), 596 (2005).
- R. J. Cameron, C. M. Kudsia, and R. R. Mansour, *Microwave Filters for Communication Systems: Fundamentals, Design, and Applications,* 2nd ed., Wiley, Hoboken, NJ, USA (2018), p. 928.
- Y. J. Zhao, B. C. Zhou, Z. K. Zhang, R. Zhang, and B. Y. Li, Optoelectron. Lett. **13**(2), 120 (2017); DOI: 10.1007/s11801-017-7008-7.
- A. R. Brown and G. M. Rebeiz, IEEE Trans. Microw. Theory Techn. 48 (7), 1157 (2000); DOI: 10.1109/22.848501.
- A. Genc and R. Baktur, Microw. Opt. Technol. Lett. 51(10), 2394 (2009); DOI: 10.1002/mop.24641.
- Г. А. Крафтмахер, В. С. Бутылкин, Ю. Н. Казанцев, В. П. Мальцев, Письма в ЖЭТФ **109**(4), 224 (2019).
- X.S. Ma, S. Zotter, N. Tetic, A. Qarry, T. Jennewein, and A. Zeilinger, Opt. Express 19(23), 22723 (2011).
- B.I. Popa and S.A. Cummer, Phys. Rev. B 85(20), 205101 (2012).
- D. Bensafieddine, F. Djerfaf, F. Chouireb, and D. Vincent, Applied Physics A: Materials Science and Processing **124**(9), 581 (2018); DOI: 10.1007/s00339-018-2004-8.
- 15. V. Butylkin, Yu. Kazantsev, G. Kraftmakher, and

V. Mal'tsev, Appl. Phys. A. **123**(1), 57 (2017); DOI: 10.1007/s00339-016-0705-4.

- 16. H. T. Chen, J. F. O'Hara, A. K. Azad, and A. J. Taylor, Laser Photonics Rev. 5(4), 513 (2011); DOI: 10.1002/Ipor.201000043.
- W. J. Padilla, A. J. Taylor, C. Highstrete, M. Lee, and R. D. Averitt, Phys. Rev. Lett. **96**, 107401 (2006).
- H. T. Chen, W. J. Padilla, J. Zide, A. C. Gossard, A. J. Taylor, and R. D. Averitt, Nature 444, 597 (2006); DOI:10.1038/nature05343.
- S. Xiao, T. Wang, X. Jiang, T. Liu, C. Zhou, and J. Zhang, J. Phys. D: Appl. Phys. 53, 503002 (2020).
- J. M. Manceau, N.-H. Shen, M. Kafesaki, C. M. Soukoulis, and S. Tzortzakis, Appl. Phys. Lett. 96, 021111 (2010).
- О. Маделунг, Теория твердого тела, Наука, Главная редакция физико-математической литературы, М. (1980), с. 414.
- Л. А. Фальковский, УФН 178(9), 923 (2008); DOI: 10.3367/UFNr.0178.200809b.0923.
- C. Rizza, A. Ciattoni, F. De Paulis, A. Orlandi,
   E. Palange, and L. Colombo, J. Phys. D: Appl. Phys. 48, 135103 (2015); DOI:10.1088/0022-3727/48/13/135103.
- М. Л. Кулыгин, Г. Г. Денисов, Ю. В. Родин, Письма в ЖТФ 37(8), 49 (2010).
- R. Braunstein and N. Ockman, Phys. Rev. 134(2A), A499 (1964).
- В.К. Конюхов, Л.А. Кулевский, А.М. Прохоров, ДАН 173(5), 1048 (1967).
- 27. А.З. Грасюк, В.Ф. Ефимков, И.Г. Зубарев, В.А. Катулин, А.Н. Менцер, ФТТ **8**(6), 1953 (1966).
- В. П. Грибковский, Теория поглощения и пропускания света в полупроводниках, Наука и техника, Минск (1975), с. 452.
- G. Kraftmakher, V. Butylkin, Y. Kazantsev, and V. Mal'tsev, Electron. Lett. 53(18), 1264 (2017).
- J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart, IEEE Trans. MTT 47(11), 2075 (1999).
- M. V. Kostin and V. V. Shevchenko, Advances in Complex Electromagnetic Materials, ed. by A. Priou, A. Sihvola, S. Tretyakov, and A. Vinogradov, NATO ASI Series, Kluver Acad. Publ., Netherlands, Dordrecht (1997), p. 261.
- 32. Б. Лакс, К. Баттон, Сверхвысокочастотные ферриты и ферримагнетики, Мир, М. (1965), 675 с.
- H. Kasahueb, Γ. A. Kpaфтмахер, ΦΜΜ 67(5), 902 (1989).
- 34. В.С. Бутылкин, А.Е. Каплан, Ю.Г. Хронопуло, Е.И. Якубович, *Резонансные взаимодействия све*та с веществом, Наука, Главная редакция физикоматематической литературы, М. (1977), с. 352.

#### Вынужденное излучение и лазерная генерация в многогранных микрокристаллах ZnO

А. П. Тарасов<sup>+1)</sup>, Л. А. Задорожная<sup>+</sup>, А. Э. Муслимов<sup>+</sup>, Ч. М. Брискина<sup>\*</sup>, В. М. Каневский<sup>+</sup>

<sup>+</sup> Федеральный научно-исследовательский центр "Кристаллография и фотоника" РАН, 119333 Москва, Россия

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

Поступила в редакцию 15 сентября 2021 г. После переработки 23 сентября 2021 г. Принята к публикации 23 сентября 2021 г.

Создание эффективных миниатюрных лазерных источников в УФ диапазоне длин волн, равно как и изучение фундаментальных аспектов вынужденного излучения в таких микролазерах, остается актуальной задачей современной оптоэлектроники. В данной работе исследуются особенности фотолюминесценции и лазерной генерации на модах шепчущей галереи (МШГ) многогранных микрокристаллов ZnO, синтезированных по механизму пар-жидкость-кристалл. Показано, что характер краевого излучения различен в микрокристаллах различного размера: в кристаллах с линейными размерами 10–15 мкм возбуждается низкопороговая лазерная генерация, в более крупных кристаллах (размером до 80 мкм) наблюдается усиленное спонтанное излучение в широком диапазоне уровней возбуждения. Низкая плотность многогранных микрокристаллов на подложке и большой разброс их размеров позволяют исследовать оба типа излучения раздельно, что делает такие кристаллы перспективной структурой для изучения вынужденного излучения, сопровождающего лазерную генерацию на МШГ. Проведенный анализ позволяет предположить, что вынужденное излучение в исследованных кристаллах формируется в процессе рассеяния электрон-дырочных пар на свободных носителях, что обеспечивает низкий порог лазерной генерации.

DOI: 10.31857/S1234567821210035

Введение. ZnO – известный широкозонный полупроводник, активно исследуемый на протяжении многих лет. В виду уникальных свойств этого материала, его изучение остается актуальным и в настоящее время [1-4]. Более того, ZnO является модельным материалом для изучения многих процессов, свойственных широкозонным полупроводникам. Не являются исключением и процессы, определяющие его оптические свойства. Среди них особое место занимают процессы, участвующие в формировании вынужденного излучения (ВИ) и лазерной генерации. Исследования этих процессов, в частности, с целью выяснения природы ВИ проводятся не первое десятилетие, однако не все вопросы получили однозначные ответы. Сложность трактовки природы ВИ в различных типах нано- и микроструктур ZnO, особенно при комнатной температуре (KT), обусловлена многими факторами. Во-первых, большая энергия связи экситонов в ZnO (60 мэВ [5]) обеспечивает потенциальную возможность возникновения нескольких типов процессов, приводящих к ВИ, в дополнение к процессам, связанным с формированием электронно-дырочной плазмы [6]. Далее, в структурах с различной морфологией, разным качеством поверхности, при различных условиях возбуждения и т.д. существует возможность возникновения ВИ различных типов. В связи с этим поиск структур, которые позволяли бы максимально полно и комплексно исследовать конкретный тип ВИ остается актуальным.

В предлагаемой работе исследуются особенности морфологии и фотолюминесценции многогранных микрокристаллов ZnO. Показано, что они могут быть потенциально полезны для интерпретации природы одного из типов ВИ, который часто сопровождает лазерную генерацию на модах шепчущей галереи. На основе анализа спектров излучения и теоретических оценок дана предварительная трактовка природы наблюдаемого типа ВИ.

Эксперимент. Выбранные для исследования образцы микрокристаллов ZnO получены методом газофазного осаждения с использованием механизма пар-жидкость-кристалл (ПЖК) по ранее разработанной методике [7] на подложках (111) кремния. Пары цинка в газовой фазе формировались продувкой газовой смесью (кислород, аргон) зоны испарения

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: tarasov.a@crys.ras.ru



Рис. 1. РЭМ-изображения нескольких многогранников ZnO (a) и одного многогранника (b)

Zn, размещенного в тигле. По условиям проведения синтеза температура зоны испарения (630 °C) поддерживалась выше температуры зоны роста (580 °C). Концентрация кислорода в газовой смеси с аргоном не превышала 10 %.

Фотолюминесценция (ФЛ) кристаллов исследовалась при возбуждении 3-й гармоникой (355 нм) импульсного Nd: YAG лазера. Длительность импульса и частота следования импульсов составляли 10 нс и 15 Гц соответственно. Размер лазерного пятна на образце составлял ~ 150 мкм. Регистрация ФЛ образца осуществлялась с помощью монохроматора МДР-206, совмещенного с ПЗС-камерой "Видеоскан". Спектральное разрешение системы ~ 0.1 нм (0.8 мэВ). Все измерения проводились при комнатной температуре (KT).

Результаты. На рисунке 1 приведены микрофотографии исследуемого образца. Видно, что образец состоит из кристаллов различных форм и размеров (рис. 1а). Правильная гексагональная форма крупных многогранных микрокристаллов (далее - многогранники) говорит об их вюрцитной кристаллической структуре. Такие кристаллы обладают 14 гранями, при этом 2 грани являются фактически торцевыми, а 12 граней – боковыми (по 6 пар граней, расположенных под углом 60° друг относительно друга). Размеры многогранников лежат в широком диапазоне от ~10 до 80 мкм. Другие наблюдающиеся на поверхности образца структуры – мелкозернистая пленка и нанометровая тонкая пленка, которые присутствуют как непосредственно на подложке, так и на многогранниках (см. рис. 1b). Согласно модели синтеза по механизму ПЖК в зоне роста на начальной стадии процесса происходит частичная конденсация металлического цинка с образованием на подложке нано- и микрокапель Zn. С повышением температуры и концентрации цинка в газовой фазе увеличиваются средний и максимальный размеры капель, уменьшается их плотность на поверхности подложки. Высокая температура зоны испарения позволяла формировать микрокапли Zn размерами до нескольких микрон. Каждая капля дает начало, как правило, единственному микрокристаллу ZnO, который в дальнейшем разрастается до нескольких десятков микрометров, с образованием многогранной формы. Расстояние между крупными каплями составляет величину порядка от 10 до 200 мкм. Можно считать, что микрокристаллы ZnO питаются из газовой фазы независимо, каждый из своего сектора.

Условия эксперимента и уединенное расположение некоторых многогранников позволяют возбуждать ФЛ в отдельных микрокристаллах. На рисунке 2 показаны спектры краевого излучения при фокусировке лазерного возбуждения на одном из многогранников в зависимости от плотности мощности возбуждения  $\rho_{\rm exc}$ . При небольших значениях  $\rho_{\rm exc}$ спектры ФЛ достаточно широкие, и отчетливо наблюдаются по крайней мере две полосы (см. вставку слева на рис. 2). Обозначим коротковолновую полосу как А1, а длинноволновую – как А2. При росте уровня возбуждения в спектральной области максимума полосы А2 (~3.17 эВ) появляются узкие линии (ширина на половинной высоте  $\sim 0.5$  нм), что говорит о начале лазерной генерации (ЛГ). Некоторые микрокристаллы в ходе эксперимента демонстрировали довольно низкие пороги ЛГ. В частности, порог для случая на рис. 2 составил  $\sim 50 \,\mathrm{kBt}/\mathrm{cm}^2$ . При дальнейшем росте накачки в спектре появляется больше лазерных линий, а сама полоса А2 сначала резко сужается, демонстрируя вынужденный характер



Рис. 2. Спектры УФ ЛГ в многограннике ZnO при различной плотности мощности возбуждения  $\rho_{\rm exc}$ . На вставке слева – спектр ФЛ при  $\rho_{\rm exc} = 30 \, {\rm kBt/cm}^2$ . На вставке справа – зависимость интегральной интенсивности излучения  $I_{\rm int}$ от  $\rho_{\rm exc}$ . Здесь и далее пунктирные линии, соединяющие экспериментальные точки, проведены для наглядности

излучения, а затем уширяется, вовлекая все больше лазерных мод в генерацию. При этом вся область усиления смещается в длинноволновую сторону. На вставке справа рис. 2 показан ход интегральной интенсивности излучения  $I_{int}$  (интеграл под спектральной кривой) в зависимости от плотности мощности  $\rho_{exc}$ . В области порога ЛГ на графике  $I_{int}(\rho_{exc})$  наблюдается типичный излом. В условиях эксперимента люминесценция образцов в видимой области не наблюдалась.

Спектральная картина в надпороговой области накачек позволяет предположить, что в кристалле реализуются моды шепчущей галереи (МШГ). Выражение

$$\lambda_N = \frac{1.5\sqrt{3}nD}{N + \frac{6}{\pi}\tan^{-1}(\beta\sqrt{3n^2 - 4})}$$
(1)

определяет спектральное положение МШГ с номером N. В (1) D – диаметр гексагонального резонатора,  $\beta = n_{\perp}$  and  $n_{\parallel}^{-1}$ , где  $n_{\perp}$  и  $n_{\parallel}$  – показатели преломления в случае ТЕ и ТМ поляризаций [8, 9]. Согласно (1) расстояние между модами 1.1 нм соответствует соседним МШГ с ТЕ или ТМ поляризацией и значениям N в диапазоне ~145–165, возбуждаемым в гексагональном сечении кристалла с диаметром ~10–15 мкм (при использовании  $n(\lambda)$  из [9–11]). Однако,

поскольку ТЕ-моды обычно более интенсивные, чем ТМ-моды [8], в нашем эксперименте, при околопороговых накачках скорее всего, наблюдаются ТЕ-МШГ моды. Таким образом, ЛГ возникает только в небольших многогранниках с размерами менее 15 мкм. Мы предполагаем, что в рассматриваемом случае МШГ реализуются в гексагональном сечении средней части небольших многогранников (см. рис. 1b).

На рисунке 3 показаны спектры краевой ФЛ области образца с крупными многогранниками при росте плотности мощности  $\rho_{\rm exc}$  от 116 до 944 кВт/см<sup>2</sup>. Аналогично рис. 2, здесь также наблюдаются полосы А1 и А2, однако ЛГ в таких микрокристаллах в использованном диапазоне уровней возбуждения не появляется. Это обусловлено существенными оптическими потерями в более крупных микрокристаллах по сравнению с мелкими, связанными в первую очередь с рассеянием света на неоднородностях структуры и дефектах поверхности. При наименьшем уровне возбуждения полосы А1 и А2 достаточно хорошо разрешимы, и разложение на две компоненты позволяет более точно определить положения максимумов этих полос: 3.27 эВ (379 нм) в случае А1 и 3.17 эВ (391 нм) в случае A2. При увеличении плотности мощности возбуждения полоса А2, сильно уширяясь, быстро смещается в длинноволновую сторо-



Рис. 3. Спектры краевой ФЛ многогранников ZnO при различной плотности мощности возбуждения  $\rho_{\rm exc}$ . На вставке – зависимость интегральной интенсивности излучения  $I_{\rm int}$  от  $\rho_{\rm exc}$ 

ну. В использованном диапазоне плотностей мощности возбуждения это смещение составило ~40 мэВ (5 нм). На вставке рисунка 3 продемонстрирована зависимость интегральной интенсивности  $I_{\rm int}$  краевого излучения от  $\rho_{\rm exc}$ . Зависимость имеет S-образную форму, демонстрируя сверхлинейный рост при  $\rho_{\rm exc}$  до ~200 кВт/см<sup>2</sup> и выход на насыщение при более высоких уровнях возбуждения. Сверхлинейный рост говорит о присутствии усиленного спонтанного излучения в полосе A2.

Отсутствие ЛГ в случае крупных многогранников дает возможность отследить точно смещение полосы А2 с изменением уровня возбуждения и сравнить с теоретическими оценками, что позволит понять природу вынужденного излучения (ВИ) в подобных кристаллах. Известно несколько возможных процессов, приводящих к появлению ВИ в структурах ZnO при KT и похожей спектральной картине. Исторически основными из них принято считать неупругое рассеяние экситонов друг на друге, приводящее к появлению так называемой Р-полосы в спектре излучения, и излучательную рекомбинацию в электронно-дырочной плазме (ЭДП) [5, 6, 12, 13]. В последнем случае наряду с прямой рекомбинацией, существует возможность возбуждения ВИ вследствие неупругого рассеяния кулоновски связанных электрон-дырочных пар из ЭДП на свободных носителях [14, 15].

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

Так, спектральное положение P-полосы (при рассеянии одного экситона на другом, один из них переходит в возбужденное состояние (с n = 2, 3, ...), а другой рекомбинирует с испусканием фотона) определяется выражением [5, 6]:

$$P_n(T) = E_x(T) - E_b\left(1 - \frac{1}{n^2}\right) - \frac{3}{2}kT,$$
 (2)

где  $E_x(T)$  – зависимое от температуры T положение максимума рекомбинационного излучения свободного экситона,  $E_b$  – энергия связи экситона (60 мэВ в ZnO [5]),  $\frac{3}{2}kT$  – кинетическая добавка, связанная с движением экситона. Таким образом, при KT  $(kT \cong 25 \text{ мэB})$  спектральное расстояние от *P*-полосы до  $E_x(T)$  должно составлять 83–98 мэВ (в зависимости от n). Учитывая ширину запрещенной зоны  $E_q$  в микрокристаллическом ZnO (3.37 эВ при KT [16]), можно оценить расстояние от максимума полосы A2 до  $E_x(T)$ . При наименьшем уровне возбуждения полоса A2 отстоит от  $E_x(T)$  на 140 мэВ; рост уровня возбуждения увеличивает это расстояние до  $\sim 180 \,\text{мэВ}$  (при максимальном значении  $\rho_{\text{exc}}$ ). Поскольку соответствующий рост температуры решетки и/или эффективной температуры экситонов (на  $\sim 120 - 160^{\circ}$  уже при минимальном возбуждении и дополнительно на  $\sim 120^{\circ}$  при росте возбуждения [16]) в условиях эксперимента представляется маловероятным (существование экситонов в таких условиях сомнительно), мы исключаем *P*-полосу из рассмотрения.

Чтобы проверить возможное участие ЭДП в формировании полосы A2, оценим динамическое изменение ширины запрещенной зоны  $E_g$  в результате ренормализации при формировании ЭДП и росте плотности электрон-дырочных пар  $n_{e-h}$ .  $E_g$  зависит от длины экранирования в ЭДП  $\lambda_s$  как

$$E_g = E_{g0} - E_b \frac{a_b}{\lambda_s},\tag{3}$$

где  $E_{g0}$  – ширина запрещенной зоны в отсутствии ренормализации,  $a_b$  – боровский радиус экситона [17, 18].  $\lambda_s$  определяется электронной и дырочной составляющими  $\lambda_{s,e}$  и  $\lambda_{s,h}$  согласно выражению:

$$\frac{1}{\lambda_s^2} = \frac{1}{\lambda_{s,e}^2} + \frac{1}{\lambda_{s,h}^2}.$$
(4)

Каждая из  $\lambda_{s,i}$  (i = e, h) находится из выражения:

$$\lambda_{s,i} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r}{e^2}} \frac{\partial \mu_i}{\partial n_i},\tag{5}$$

где  $\varepsilon_0$  – электрическая постоянная,  $\varepsilon_r$  – относительная диэлектрическая проницаемость, e – заряд электрона, а плотность электрон-дырочных пар  $n_i$  связана с соответствующим химическим потенциалом  $\mu_i$ :

$$n_i = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_i}{\hbar^2}\right)^{3/2} \int_0^\infty \frac{\sqrt{E}dE}{\exp\left(\frac{E-\mu_i}{kT}\right) + 1}.$$
 (6)

Рассчитанная в соответствии с (3)–(6) зависимость  $E_g(n_{e-h})$  показана на рис. 4 (верхняя кривая). При расчете было учтено, что при оптическом возбуждении  $n_e = n_h = n_{e-h}$ , а также использованы следующие параметры для ZnO:  $E_{g0} = 3.37$  эВ,  $a_b = 1.8$  нм, эффективные массы электрона  $m_e =$  $= 0.28m_0$  и дырки  $m_h = 0.59m_0$  (где  $m_0$  – масса электрона),  $\varepsilon_r = 6.56$  [5, 16–19].

Для сравнения с экспериментальными данными значения  $\rho_{\text{exc}}$  были пересчитаны в  $n_{e-h}$  с использованием соотношения:

$$n_{e-h} = \frac{\rho_{\rm exc}\tau}{\hbar\omega_{\rm exc}l},\tag{7}$$

где  $\hbar\omega_{\rm exc}$  – энергия возбуждающего фотона;  $\tau$  – время жизни электрон-дырочной пары; l – глубина проникновения возбуждающих фотонов или глубина диффузии электрон-дырочной пары [14]. Приняв  $\hbar\omega_{\rm exc} = 3.49$  эВ,  $\tau = 100$  пс, l = 100 нм [5] (мы считаем, что рекомбинация происходит, в основном, в приповерхностном слое – см. далее), была построена зависимость положения максимума полосы A2 от  $n_{\rm e-h}$  (см. нижнюю кривую на рис. 4). Сравнивая расчетную и экспериментальную зависимости на рис. 4, можно отметить в целом их схожее поведение, особенно в области больших значений  $n_{e-h}$ . При небольших  $n_{e-h}$  изменение  $E_g(n_{e-h})$  более резкое по сравнению с положением полосы A2. Вместе с тем, значительное расстояние между кривыми не позволяет отнести полосу A2 к прямой рекомбинации в ЭДП. Более того, согласно литературным данным пороговые значения  $n_{e-h}$  для формирования ЭДП (порог Мотта) составляют для ZnO  $n_M = 5 \cdot 10^{17} \dots 4 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$  [5, 14, 17]. Учитывая немного завышенную оценку по (7), маловероятно, чтобы при наименьшем уровне возбуждения в нашем случае (соответствует  $n_{e-h} = 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ) ЭДП уже сформировалась.

Появление ВИ в многогранниках при низких значениях  $\rho_{\rm exc}$  может быть обусловлено процессом рассеяния экситонов на свободных электронах, который может иметь место при частичной ионизации экситонов вследствие их высокой плотности и значительного затухания экситонного состояния при КТ [6, 14, 20]. Потеряв часть энергии вследствие такого рассеяния, экситон рекомбинирует, при этом излучается фотон с энергией

$$E_{X-el}(T) = E_x(T) - \gamma kT, \qquad (8)$$

где  $\gamma$  – коэффициент, зависящий от соотношения эффективных масс экситона и электрона. В нашем исследовании расстояние от максимума A2 до  $E_x(T)$ составляет 5.6kT, что близко к литературным значениям  $\gamma$  для ZnO (~6–8) [19–22].

Таким образом, представляется возможным следующий сценарий. При относительно небольших уровнях возбуждения в приповерхностной области многогранника имеет место неупругое рассеяние экситонов на свободных электронах, дающее соответствующее излучение. При росте уровня возбуждения и приближении  $n_{e-h}$  к  $n_M$  канал излучения постепенно сменяется и определяется все больше рекомбинацией электрон-дырочных пар в ЭДП при их рассеянии на свободных носителях. Это объясняет слабое красное смещение полосы А2 при относительно небольших значениях  $n_{e-h}$ , когда излучение имеет еще, в основном, экситонную природу, и схожее поведение положения А2 и расчетной зависимости  $E_q(n_{e-h})$  в области высоких  $n_{e-h}$ , т.е. там, где определяющее значение играет рекомбинация в ЭДП и ренормализация запрещенной зоны (см. рис. 4). Указанный переход может происходить плавно, без спектральных особенностей [23].

**Обсуждение.** Спектральная картина с двумя полосами в спектрах излучения и ЛГ на более длин-



Рис. 4. Расчетная зависимость ширины запрещенной зоны  $E_g$  от плотности электрон-дырочных пар  $n_{e-h}$  (верхняя кривая) и экспериментальная зависимость положения полосы A2 от  $n_{e-h}$  (нижняя кривая)

новолновой из них, аналогичная рис. 2, наблюдалась многими исследователями в микрокристаллах ZnO (например, [8,9,24–29]). При этом в некоторых работах говорится о вынужденной природе излучения, возникающего в результате неупругого рассеяния одного экситона на другом (Р-полоса) [26, 28, 29]. В других исследованиях, вслед за классическими работами D. Bagnall и соавт. [12, 13], возникновение оптического усиления в длинноволновой полосе связывается с инверсией населенностей, возникающей в электронно-дырочной плазме (ЭДП) [8, 25, 27]. В работах [14, 15] авторы проводят анализ некоторых известных в литературе экспериментальных результатов и приходят к выводу, что во многих случаях быстро смещающаяся с ростом температуры и уровня возбуждения полоса в области энергий 3.2 эВ и менее, поддерживающая лазерную генерацию, возникает вследствие рассеяния кулоновски связанных электрон-дырочных пар из ЭДП на свободных носителях.

Однако интерпретация природы излучения может быть затруднена присутствием ЛГ, что связано с появлением и конкуренцией лазерных мод, с существенным уменьшением длительности излучения, со стабилизацией коэффициента усиления и пр. С другой стороны, наблюдение только спонтанной люминесценции в области длинноволновой компоненты приводит к другим сложностям трактовки, среди ко-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

торых можно отметить обязательное рассмотрение возможного участия дефектов кристаллической решетки в формировании такого излучения [30, 31]. В этом смысле определенное преимущество дают типы кристаллов, которые могут обеспечить как появление ЛГ, так и наблюдение излучения в допороговом режиме в большом диапазоне уровней возбуждения. Исследованные многогранники предоставили нам такую возможность благодаря большому диапазону их размеров и достаточно уединенному расположению некоторых из них. Это позволило без дополнительных манипуляций с образцом изучать отдельные кристаллы различных размеров в условиях эксперимента и строить обоснованные предположения о природе возбуждаемого в них ВИ.

Несмотря на то, что экситоны, судя по всему, участвуют в процессе излучения и, в частности, ЛГ многогранников при КТ (по крайней мере, при небольших уровнях возбуждения  $\rho_{\rm exc}$ ), неупругое рассеяние экситонов друг на друге (*P*-полоса) оказывается непричастным к ВИ в этих кристаллах. Тем не менее, рассеяние все-таки имеет место в процессе формирования ВИ и возбуждения ЛГ в данном случае, что обуславливает низкие лазерные пороги. В случае рис. 2 порог ЛГ соответствует плотности  $n_{e-h}$  всего  $8 \cdot 10^{17}$  см<sup>-3</sup>. В работах [10, 32], где наблюдалась низкопороговая ЛГ на МШГ в тетраподах ZnO, оцененная по (8) пороговая плотность  $n_{e-h}$  при использованных параметрах эксперимента составляла еще меньше  $\sim (2-4) \cdot 10^{17} \, \mathrm{сm}^{-3}$ . Эти значения ниже, чем  $n_M$ , что говорит об экситонной природе ВИ при относительно низких уровнях возбуждения. При высоких надпороговых накачках на высокую плотность носителей и вероятное присутствие ЭДП указывает синее смещение (на 1-2 мэВ) лазерных линий с ростом накачки (см. рис. 2). Это смещение связано с уменьшением показателя преломления материала в результате роста числа носителей и формирования ЭДП [33]. Присутствие полосы А1, имеющей экситонную природу [16], вплоть до высоких значений  $\rho_{\rm exc}$  в спектрах люминесценции объясняется неоднородностью пятна лазерного возбуждения на образце, а также сильной диффузией экситонов в микрокристаллах ( $\sim 1$  мкм [6]).

Заключение. В работе исследовались люминесцентные и лазерные особенности многогранных микрокристаллов ZnO, выращенных методом химического осаждения из газовой фазы. Показано, что характер краевой фотолюминесценции микрокристаллов зависит от их размеров. Более мелкие кристаллы (с линейными размерами 10–15 мкм) демонстрируют лазерную генерацию на модах шепчущей галереи с довольно низкими порогами. Более крупные кристаллы проявляют усиленное спонтанное излучение в широком диапазоне уровней возбуждения. Такая особенность, а также небольшая плотность расположения микрокристаллов на подложке позволяют исследовать оба типа излучения раздельно, не прибегая к дополнительным манипуляциям с образцом. Проведенный анализ позволяет сделать предварительные выводы о причинах низких лазерных порогов в полученных многогранных микрокристаллах. А именно, предположено, что лазерная генерация в таких микрокристаллах возбуждается в процессе рассеяния электрон-дырочных пар на свободных носителях. При этом рост уровня возбуждения сопровождается переходом через порог Мотта и, соответственно, сменой основного канала излучения с экситонного на излучение электронно-дырочной плазмы.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ в рамках Государственного задания ФНИЦ "Кристаллография и фотоника" в части получения пленок, Государственного задания ИРЭ им. В. А. Котельникова РАН в части изучения лазерных свойств микроструктур и при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект #18-29-12099 мк) в части исследования оптических свойств пленок с использованием оборудования ЦКП ФНИЦ "Кристаллография и фотоника" при поддержке Минобрнауки (проект RFMEFI62119X0035).

Авторы искренне признательны В.И.Альшицу за стимулирующие обсуждения и конструктивную критику.

- A. Kolodziejczak-Radzimska and T. Jesionowski, Materials 7, 2833 (2014).
- Я. Юань, К. Чэнь, Ч. Лю, В. Чэнь, Л. Чэн, Ж. Либ, ЖЭТФ 156, 291 (2019) [JETP 129, 241 (2019)].
- А.Б. Ваньков, Б.Д. Кайсин, И.В. Кукушкин, Письма в ЖЭТФ 110, 268 (2019) [JETP Lett. 110, 296 (2019)].
- А. Р. Хисамеева, А. В. Щепетильников, В. М. Муравьев, Ю. А. Нефедов, И. В. Кукушкин, ЖЭТФ 157, 707 (2020) [JETP 130, 594 (2020)].
- Ü. Özgür, Y. I. Alivov, C. Liu, A. Teke, M. Reshchikov, S. Doğan, V. Avrutin, S.-J. Cho, and A. H. Morkoç, J. Appl. Phys. 98, 11 (2005).
- C. F. Klingshirn, Semiconductor optics, 4th ed., Springer, Berlin (2012).
- А. М. Ополченцев, Л. А. Задорожная, Ч. М. Брискина, В. М. Маркушев, А. П. Тарасов, А. Э. Муслимов, В. М. Каневский, Оптика и спектроскопия **125**, 501 (2018) [Opt. Spectrosc. **125**, 522 (2018)].
- C. Czekalla, C. Sturm, R. Schmidt-Grund, B. Cao, M. Lorenz, and M. Grundmann, Appl. Phys. Lett. 92, 241102 (2008).
- J. Liu, S. Lee, Y. Ahn, J.-Y. Park, K.H. Koh, and K.H. Park, Appl. Phys. Lett. 92, 263102 (2008).
- А.П. Тарасов, Ч.М. Брискина, В.М. Маркушев, Л.А. Задорожная, А.С. Лавриков, В.М. Каневский, Письма в ЖЭТФ 110, 750 (2019) [JETP Lett. 110, 739 (2019)].
- X. W. Sun and H. S. Kwok, J. Appl. Phys. 86, 408 (1999).
- D. M. Bagnall, Y. F. Chen, M. Y. Shen, Z. Zhu, T. Goto, and T. Yao, J. Cryst. Growth 184, 605 (1998).
- D. M. Bagnall, Y. F. Chen, Z. Zhu, T. Yao, M. Y. Shen, and T. Goto, Appl. Phys. Lett. **73**, 1038 (1998).
- C. Klingshirn, R. Hauschild, J. Fallert, and H. Kalt, Phys. Rev. B 75, 1 (2007).
- C. Klingshirn, J. Fallert, O. Gogolin, M. Wissinger, R. Hauschild, M. Hauser, H. Kalt, and H. Zhou, J. Lumin. **128**, 792 (2008).
- 16. L. Wang and N. C. Giles, J. Appl. Phys. 94, 973 (2003).
- M. A. Versteegh, T. Kuis, H. T. C. Stoof, and J. I. Dijkhuis, Phys. Rev. B 84, 035207 (2011).
- T. Nakamura, K. Firdaus, and S. Adachi, Phys. Rev. B 86, 205103 (2012).
- B. Hönerlage, C. Klingshirn, and J.B. Grun, Phys. Status Solidi B 78, 599 (1976).

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

- R. Matsuzaki, H. Soma, K. Fukuoka, K. Kodama, A. Asahara, T. Suemoto, Y. Adachi, and T. Uchino, Phys. Rev. B 96, 125306 (2017).
- 21. S. Iwai and S. Namba, Appl. Phys. Lett. 19, 41 (1971).
- 22. C. Klingshirn, Phys. Status Solidi B **71**, 547 (1975).
- 23. L. Banyai and S. W. Koch, Z. Phys. B 63, 283 (1986).
- 24. C. Xu, F. Qin, Q. Zhu, J. Lu, Y. Wang, J. Li, Y. Lin, Q. Cui, Z. Shi, and A. G. Manohari, Nano Res. **11**, 3050 (2018).
- J. Dai, C.X.Xu, P. Wu, J.Y. Guo, Z.H. Li, and Z.L. Shi, Appl. Phys. Lett. 97, 011101 (2010).
- R. Chen, B. Ling, X.W. Sun, and H.D. Sun, Adv. Mater. 23, 2199 (2011).
- J. Dai, C. Xu, T. Nakamura, Y. Wang, J. Li, and Y. Lin, Opt. Express 22, 28831 (2014).
- H. Dong, B. Zhou, J. Li, J. Zhan, and L. Zhang, J. Materiomics 3, 255 (2017).

- C. M. Briskina, V. M. Markushev, L. A. Zadorozhnaya, M. E. Givargizov, and V. M. Kanevsky, J. Optoelectron. Adv. Mater. 23, 150 (2021).
- S. C. Su, Y. M. Lu, Z. Z. Zhang, B. H. Li, D. Z. Shen,
   B. Yao, J. Y. Zhang, D. X. Zhao, and X. W. Fan, Phys.
   B: Condens. Matter 403, 2590 (2008).
- М. В. Рыжков, С. И. Румянцев, В. М. Маркушев, Ч. М. Брискина, А. П. Тарасов, Журнал прикладной спектроскопии 81, 805 (2014) [J. Appl. Spectrosc. 81, 877 (2014)].
- A. P. Tarasov, C. M. Briskina, V. M. Markushev, A. M. Opolchentsev, and A. S. Lavrikov, J. Phys. Conf. Ser. **1092**, 012149 (2018).
- 33. J. Fallert, F. Stelzl, H. Zhou, A. Reiser, K. Thonke, R. Sauer, C. Klingshirn, and H. Kalt, Opt. Express 16, 1125 (2008).

#### Диполь-дипольное уширение при селективном отражении мощного лазерного излучения от границы диэлектрика и плотного резонансного газа

А. А. Бобров<sup>+1</sup>), С. А. Саакян<sup>+\*</sup>, В. А. Саутенков<sup>+×</sup>, Б. Б. Зеленер<sup>+\*</sup>

+ Объединенный институт высоких температур РАН, 127412 Москва, Россия

\*Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики", 101000 Москва, Россия

<sup>×</sup> Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

°Национальный исследовательский университет Московский энергетический институт, 111250 Москва, Россия

Поступила в редакцию 23 сентября 2021 г. После переработки 30 сентября 2021 г. Принята к публикации 4 октября 2021 г.

Экспериментально исследовано диполь-дипольное уширение спектра селективного отражения интенсивного резонансного излучения от границы диэлектрика и газа естественной смеси изотопов Rb. Исследован случай большой плотности газа, такой, что допплеровским уширением можно пренебречь. Показано, что диполь-дипольное уширение уменьшается с ростом концентрации атомов в возбужденном состоянии. При интенсивности излучения, намного превышающей интенсивность насыщения резонансного перехода, в спектре отражения от границы раздела диэлектрик/газ не наблюдалось существенного полевого уширения, что объясняется тушением возбуждения атомов при столкновении с границей раздела.

DOI: 10.31857/S1234567821210047

В газовых средах диполь-дипольное взаимодействие между одинаковыми атомами, один из которых находится в основном, а другой в возбужденном состояниях, приводит к значительному увеличению спектральной ширины резонансного атомного перехода [1, 2]. В слабо возбужденной среде величина диполь-дипольного уширения Γ пропорциональна плотности и может быть выражена как

$$\Gamma = KN = \frac{2\alpha d^2 N}{\hbar},\tag{1}$$

где d – дипольный момент перехода, N – концентрация атомов,  $\alpha$  – коэффициент порядка 1. В плотных газовых средах, исследованию которых посвящена настоящая работа, величина диполь-дипольного уширения существенно превышает допплеровское уширение.

При воздействии достаточно интенсивного излучения на газ резонансных атомов нельзя пренебрегать заселенностью возбужденного состояния. При уменьшении заселенности основного состояния диполь-дипольное уширение, вообще говоря, должно уменьшаться. Впервые это контринтуитивное явление сужения спектральной линии в плотной резонансной газовой среде с ростом интенсивности излучения экспериментально наблюдалось в работе [3]. Для исследования резонансного взаимодействия была использована техника селективного отражения, позволяющая исследовать спектр плотной сильно поглощающей среды. В [3] для создания существенной заселенности возбужденного состояния использовалось мощное лазерное излучение накачки, далеко отстроенное от резонанса, а спектр селективного отражения получался с помощью слабого пробного поля, сканируемого вблизи резонанса. Для газа двухуровневых атомов с существенным заселением возбужденного состояния диполь-дипольное уширение можно оценить по следующей формуле [4]:  $\Gamma = K(g_g/g_e)^{1/2}N_g$ , где  $N_g$  – концентрация атомов в основном состоянии,  $g_a$  и  $g_e$  – статвеса основного и возбужденного состояний соответственно. Отметим, что сужение резонанса селективного отражения наблюдалось только для плотных сред [5].

Интересным является вопрос о спектре селективного отражения одного лазерного луча, который одновременно насыщает среду и формирует сигнал отражения. В этом случае, при большой интенсивности излучения, уменьшение диполь-дипольного ушире-

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: abobrov@inbox.ru

ния должно конкурировать с ростом полевого уширения. В настоящее время отсутствуют работы, в которых бы исследовалось селективное отражение мощного излучения от границы диэлектрика и плотной газовой среды. Ранее исследовалось или отражение насыщающего излучения от разреженного газа [6,7], или отражение излучения малой интенсивности от плотного газа [8–10]. Настоящая работа призвана заполнить этот пробел.

Ранее мы провели исследование селективного отражения при умеренной интенсивности лазерного излучения до значений интенсивности порядка интенсивности насыщения [11]. При малых интенсивностях в [11] наблюдалось линейное уменьшение ширины спектра, как и в [3], однако при максимальных исследованных значениях интенсивности зависимость ширины начинала отличаться от линейной. В настоящей работе мы продолжили исследование спектра селективного отражения в области сильного насыщения.

Экспериментальная методика подробно описана в [11], здесь мы приведем краткое описание эксперимента. На окно кюветы с газом естественной смеси изотопов Rb почти нормально падал пучок лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 780$  нм. Частота излучения сканировалась вблизи резонансной частоты перехода  $5S_{1/2}(F = 3) - 5P_{3/2}(F' = 4)$  в <sup>85</sup>Rb, скорость спонтанного распада которого  $2\pi \times 6$  МГц.

Плотность газа в кювете составляла  $8 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup> (при температуре 350 °C). В соответствии с [12, 13] коэффициент в (1) для указанного перехода можно оценить как  $K/2\pi = (1.1 \pm 0.17) \cdot 10^{-7}$  Гц · см<sup>3</sup>, что соответствует ширине  $\Gamma/2\pi = (8.8 \pm 1.5)$  ГГц. При этом допплеровское уширение можно оценить как  $\Delta\omega_D \approx 0.1\Gamma$ . Отметим, что при такой температуре концентрация молекул Rb<sub>2</sub> незначительна [14], кроме того, атомные и молекулярные спектры Rb и Rb<sub>2</sub> не пересекаются [15, 16].

На рисунке 1 представлены полученные частотные зависимости коэффициента селективного отражения падающего излучения от внутренней поверхности окна кюветы для различных значений интенсивности I лазерного пучка. На рисунке 1 представлен относительный коэффициент отражения  $(R - R_0)/R_0$ , где  $R_0 = 8.5\%$  – коэффициент отражения  $(R - R_0)/R_0$ , где  $R_0 = 8.5\%$  – коэффициент отражения ( $R - R_0$ ) –  $R_0$  –  $R_0$  – коэффициент отражения ( $R - R_0$ ) – коэффициент отражения ( $R - R_0$ ) –  $R_0$  –  $R_0 = 8.5\%$  – коэффициент отражения ( $R - R_0$ ) –  $R_0$  –  $R_0 = 8.5\%$  – коэффициент отражения ( $R - R_0$ ) –  $R_0 = 8.5\%$  – кор –  $R_0 = 8.5\%$  – коэффициент отражения ( $R - R_0$ ) –  $R_0 = 8.5\%$  – коэффициент отражения ( $R - R_0$ ) –  $R_0 = 8.5\%$  – кор –  $R_0 =$ 

Ширина спектра селективного отражения  $\Delta \omega_{\rm SR}$  определялась как разница частот, соответствующих



Рис. 1. (Цветной онлайн) Относительный коэффициент селективного отражения для значений интенсивности  $I = 2.9, 3.6, 4.5, 7.3 \, \mathrm{kBt/cm^2}$  в зависимости от частоты падающего излучения

минимальному и максимальному значениям коэффициента отражения. На рисунке 2 представлена зависимость спектральной ширины от интенсивности излучения.



Рис. 2. (Цветной онлайн) Ширина спектра селективного отражения в зависимости от интенсивности излучения  $\lambda = 780$  нм. Точки – экспериментальные данные: квадраты – результаты из работы [11], кружки – результаты настоящей работы. Линия – частота Раби для перехода  $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$  в <sup>85</sup>Rb

В области малых значений интенсивности ширина спектра линейно уменьшается с ростом интенсивности вследствие уменьшения диполь-дипольного уширения, как наблюдалось в более ранних работах. Затем из-за насыщения перехода ширина выходит на плато. Ожидалось, что при интенсивностях, много больше интенсивности насыщения перехода, ширина спектра селективного отражения будет определяться полевым уширением, однако в эксперименте полевое уширение не наблюдалось. Для сравнения на рис. 2 приведена зависимость от интенсивности частоты Раби  $\Omega$  для перехода  $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$  в <sup>85</sup>Rb ( $\Omega = dE/\hbar$ , где E – амплитуда поля). Видно, что зарегистрированная спектральная ширина меньше частоты Раби наиболее сильного перехода при максимальной исследовавшейся интенсивности.

В настоящее время отсутствуют теоретические работы, которые позволили бы объяснить наблюдаемый эффект. Имеющиеся в настоящее время теоретические подходы [6,7] к селективному отражению сильного поля получены для случая разреженного газа. В [9] развита самосогласованная теория для селективного отражения от плотной среды, но рассмотрен случай слабого поля. Для случая сильного поля и плотной среды имеются лишь численные расчеты [17]. Обсуждение возможности построения законченной и самосогласованной теории селективного отражения сильного поля от границы диэлектрика и плотного газа выходит за рамки настоящего краткого сообщения, однако наблюдаемый эффект насыщения в спектре отражения можно объяснить из следующих качественных соображений.

Для простоты, рассмотрим селективное отражение интенсивного излучения от границы диэлектрика и плотного газа двухуровневых атомов. Как известно [6,7], сигнал селективного отражения формируется наведенным дипольным моментом в тонком слое газа вблизи границы раздела. При этом атомы, движущиеся в сторону границы и от границы вглубь газа, вносят существенно различный вклад в формирование наблюдаемого сигнала отражения.

Атомы, движущиеся к границе, находятся под действием поля излучения в течение времени, намного превышающего время жизни возбужденного состояния. В случае сильного поля оптический переход в этих атомах насыщен, а значит вклад в наведенный дипольный момент от атомов, движущихся в сторону границы, должен исчезать при интенсивности излучения, много большей интенсивности насыщения перехода.

Атомы, движущиеся от границы, напротив, сразу после столкновения с границей находятся в основном состоянии и вносят определяющий вклад в наведенный дипольный момент, а значит, и в формирование сигнала отражения. При этом, с одной стороны, так как для этих атомов из-за столкновения со стенкой переход будет не насыщен, то спектр не будет содержать полевого уширения. С другой стороны, в диполь-дипольное уширение сигнала отражения, в силу его квазистатичности [18], дают одинаковый вклад все атомы, независимо от направления скорости. Так как переход в атомах, движущихся в сторону границы насыщен, то это насыщение должно влиять на вклад этих атомов в диполь-дипольное уширение перехода. Отметим, что мы рассматриваем случай большой плотности газа, такой, что допплеровским уширением можно пренебречь. Результатом движения атомов в нашей модели являются только столкновения атомов с границей раздела.

В соответствии со сделанными выше предположениями, для качественного описания экспериментальных результатов, представим ширину спектра отражения в виде суммы диполь-дипольного уширения и уширения, не зависящего от интенсивности (в применении к обсуждаемым экспериментам, в это уширение основной вклад вносит не разрешаемая сверхтонкая структура):

$$\Delta\omega_{\rm SR} = \Gamma + \Gamma_0. \tag{2}$$

Зависимость диполь-дипольного уширения от интенсивности найдем, учтя заселенность основного состояния в рамках двухуровневой модели [19]:

$$\Gamma = KN\left(1 - \frac{1}{2}\frac{\Omega^2}{\gamma_2\left(\gamma_{12} + \frac{\Omega^2}{\gamma_2}\right)}\right),\qquad(3)$$

где  $\gamma_{12}$  и  $\gamma_2$  – поперечная и продольная скорости релаксации.

На рисунке 3 ширина спектра селективного отражения построена по формуле (2) с использованием



Рис. 3. (Цветной онлайн) Ширина спектра селективного отражения, рассчитанная по формулам (2) и (3)

зависимости диполь-дипольного уширения (3) для  $N = 8 \cdot 10^{16} \,\mathrm{cm^{-3}}, K/2\pi = (1.1 \pm 0.17) \cdot 10^{-7} \,\Gamma \mathrm{q} \cdot \mathrm{cm^{3}},$   $\gamma_{2} = 2\pi \times 2 \,\Gamma \Gamma \mathrm{q}, \gamma_{12} = 2\pi \times 8 \,\Gamma \Gamma \mathrm{q}, \Gamma_{0} = 2\pi \times 8 \,\Gamma \Gamma \mathrm{q},$ при расчете частоты Раби  $\Omega$  подставлялся дипольный момент для перехода  $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$  в <sup>85</sup>Rb. Видно, что ширина, рассчитанная по (2) и (3), качественно повторяет ход экспериментальной зависимости, показанной на рис. 2.

В заключение отметим, что в работе впервые исследовано диполь-дипольное уширение при селективном отражении насыщающего излучения от границы диэлектрика и резонансного газа. Обнаружено, что спектр отражения свободен от полевого уширения даже при очень высоких интенсивностях. Предложено качественное объяснение этого эффекта на основе предположения о гашении возбуждения атомов при столкновении с поверхностью раздела. Для количественного описания результатов эксперимента необходимо построение теории селективного отражения, которая должна включать в себя как квантовый учет насыщения перехода, так и самосогласованный учет затухания поля в плотной среде, т.е. пространственную дисперсию и, кроме того, учитывать сверхтонкое расщепление. Влияние на пространственное распределение возбужденных атомов, а значит и на наблюдаемый спектр отражения также могут оказывать явления пленения излучения и нерадиационного переноса возбуждения в плотной среде [20]. Отметим также, что при интенсивности излучения порядка и больше интенсивности насыщения газовая среда обладает нелинейностью и граница диэлектрик-газ может рассматриваться как нелинейный светоделитель, при этом может оказаться существенным квантовое рассмотрение поля излучения [21, 22].

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. E. L. Lewis, Phys. Rep. 58, 1 (1980).
- 2. А.А. Заболотский, ЖЭТФ 158, 594 (2020).
- V. A. Sautenkov, H. van Kampen, E. R. Eliel, and J. P. Woerdman, Phys. Rev. Lett. 77, 3327 (1996).

- H. van Kampen, V.A. Sautenkov, C.J.C. Smeets, E.R. Eliel, and J.P. Woerdman, Phys. Rev. A 59, 271 (1999).
- 5. V.A. Sautenkov, Laser Phys. Lett. 8, 771 (2011).
- G. Nienhuis, F. Schuller, and M. Ducloy, Phys. Rev. A 38, 5197 (1988).
- 7. Т.А. Вартанян, ЖЭТФ 88, 1147 (1985).
- P. Wang, A. Gallagher, and J. Cooper, Phys. Rev. A 56, 1598 (1997).
- A. Badalyan, V. Chaltykyan, G. Grigoryan, A. Papoyan, S. Shmavonyan, and M. Movsessian, Eur. Phys. J. D 37, 157 (2006).
- A. S. Kuraptsev, I. M. Sokolov, and Ya. A. Fofanov, Int. J. Mod. Phys. Conf. Ser. 41, 1660141 (2016).
- V.A. Sautenkov, S.A. Saakyan, and B.B. Zelener, J. Russ. Laser Res. 42, 405 (2021).
- C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan, Can. Metall. Q 23, 309 (1984).
- R. Kondo, S. Tojo, T. Fujimoto, and M. Hasuo, Phys. Rev. A 73, 062504 (2006).
- M. Rakic and G. Pichler, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. 208, 39 (2018).
- H. Chen, V.A. Sautenkov, P.S. Hsu, G.R. Welch, Y.V. Rostovtsev, and M.O. Scully, J. Mod. Opt. 52, 2373 (2005).
- V.A. Sautenkov, S.A. Saakyan, A.M. Akulshin, M.A. Gubin, V.N. Kuliasov, and B. B. Zelener, J. Russ. Laser Res. 34, 375 (2013).
- J. Guo, J. Cooper, A. Gallagher, and M. Lewenstein, Opt. Commun. 110, 732 (1994).
- J. A. Leegwater and S. Mukamel, Phys. Rev. A 49, 146 (1994).
- S. Stenholm, Foundations of Laser Spectroscopy, Wiley, N.Y. (1984).
- Y. A. Fofanov, I. M. Sokolov, R. Kaiser, and W. Guerin, Phys. Rev. A **104**, 023705 (2021).
- А.В. Белинский, М.Х. Шульман, УФН 184, 1135 (2014).
- Ya. Fofanov, EPJ Web of Conferences 220, 01004 (2019).

## Evidence of homogeneous intermediate valence coexisting with long-range magnetic order in EuCu<sub>2</sub>(Si,Ge)<sub>2</sub>

P. S. Savchenkov<sup>+1</sup>), V. A. Sidorov<sup>\*</sup>, J. Guo<sup>×</sup>, L. Sun<sup>×</sup>, P. A. Alekseev<sup>+</sup>°

<sup>+</sup>National Research Centre "Kurchatov Institute", 123182 Moscow, Russia

\* Vereshchagin Institute of High Pressure Physics, Russian Academy of Sciences, 108840 Troitsk, Moscow, Russia

<sup>×</sup>Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, 100190 Beijing, People's Republic of China

<sup>o</sup>National Research Nuclear University MEPhI, 115409 Moscow, Russia

Submitted 17 August 2021 Resubmitted 23 September 2021 Accepted 23 September 2021

#### DOI: 10.31857/S1234567821210059

The phase diagram of the intermediate valence (IV) system  $EuCu_2Ge_2$  is investigated by measuring the temperature dependencies of the heat capacity and the electrical resistance as a function of pressure (P) up to 4 GPa. Measurements were done using "toroid", Bridgman Anvils (BA) and Diamond Anvil Cell (DAC) pressure cells Transition to the magnetic ordered state is observed at P up to 9 GPa.

The dependence of  $T_N$  on pressure according to the results of all above mentioned experiments is shown in Fig. 1. The inset in Fig. 1 shows the magnetic phase diagram of EuCu<sub>2</sub>(Si<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub> based on previous experiments [1–3].

The dependence of  $T_N$  on pressure, obtained in the present work qualitatively and quantitatively (by the value of  $T_N$ ) reproduces the dependence of  $T_N$  on the concentration of Si () presented in the inset. This means that for EuCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> system the effects of the hydrostatic and chemical (substitution of Ge for Si) pressure on Euvalence are equivalent from the point of view of the transition to the antiferromagnetic ordered ground state. The identity of the dependences of  $T_N$  on both x and P proves that a homogeneous IV regime is realized in the EuCu<sub>2</sub>(Si,Ge)<sub>2</sub> system similarly to EuCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> under pressure, and the coexistence of the homogeneous IV and long range magnetic order for the RE sublattice is confirmed.

The magnetic phase diagram is presented as a function of Eu average valence. The probable background for the formation of the magnetically ordered intermediate valence state of Eu is considered basing on the analysis of the original neutron magnetic spectroscopy [4] data for f-electron excitations in the EuCu<sub>2</sub>(Si,Ge)<sub>2</sub>. There



Fig. 1. (Color online) Pressure dependence of  $T_N$  for EuCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> based on the results of the set of experiments (experiment titles correspond to the designations adopted in the text). Inset: magnetic phase diagram of EuCu<sub>2</sub>(Si<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub> based on the data from: heat capacity and resistivity measurements [1] – down triangles, [2] – stars, [3] – hexagons, magnetic neutron diffraction

is an indication that it develops on the basis of competition of the two magnetic configurations of Eu, one of which is formed on the base of initially nonmagnetic  $Eu^{3+}$  state. Therefore, some analogy can be suggested for coexistence of magnetic order and homogeneous intermediate valence with the case of TmSe [5, 6] intermediate valence system.

This is an excerpt of the article "Evidence of homogeneous intermediate valence coexisting with longrange magnetic order in  $EuCu_2(Si,Ge)_2$ ". Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364021210049

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: savch92@gmail.com

- Z. Hossain, C. Geibel, N. Senthilkumaran, M. Deppe, M. Baenitz, F. Schiller, and S. L. Molodtsov, Phys. Rev. B 69(1), 014422 (2004).
- K.S. Nemkovski, D.P. Kozlenko, P.A. Alekseev, J.-M. Mignot, A.P. Menushenkov, A.A. Yaroslavtsev, E.S. Clementyev, A.S. Ivanov, S. Rols, B. Klobes, R.P. Hermann, and A.V. Gribanov, Phys. Rev. B 94(19), 195101 (2016).
- W. Iha, T. Yara, Y. Ashitomi, M. Kakihana, T. Takeuchi, F. Honda, A. Nakamura, D. Aoki,

J. Gouchi, Y. Uwatoko, T. Kida, T. Tahara, M. Hagiwara, Y. Haga, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Onuki, J. Phys. Soc. Jpn. 87(6), 064706 (2018).

- P.A. Alekseev, K.S. Nemkovski, J.-M. Mignot, V.N. Lazukov, A.A. Nikonov, A.P. Menushenkov, A.A. Yaroslavtsev, R.I. Bewley, J.R. Stewart, and A.V. Gribanov, J. Phys. Condens. Matter 24(37), 375601 (2012).
- E. Holland-Moritz, E. Braun, B. Roden, B. Perscheid, and E.V. Sampathkumaran, Phys. Rev. B 35, 3122 (1987).
- E. Holland-Moritz and M. Prager, J. Magn. Magn. Mater. **31**, 395 (1983).

# Магнитные скирмионы и фазовые переходы в антиферромагнитном/ферроэлектрическом бислое

И. Ф. Шарафуллин<sup>+1</sup>), Х. Т. Диеп<sup>\*2</sup>)

+Башкирский государственный университет, 450074 Уфа, Россия

\*Laboratoire de Physique Theorique et Modelisation Université Cergy-Paris, CNRS, UMR 8089, 95302 Cergy-Pontoise, France

Поступила в редакцию 18 сентября 2021 г. После переработки 24 сентября 2021 г. Принята к публикации 24 сентября 2021 г.

В работе рассматриваются основное состояние и свойства скирмионов в магнитоэлектрических пленках, а именно, в антиферромагнитных/сегнетоэлектрических сверхрешетках с помощью адаптированного метода наискорейшего спуска и Монте-Карло моделирования. Исследовано влияние магнитоэлектрического взаимодействия и внешнего магнитного поля на конфигурации основного состояния и упорядочение во взаимодействующих слоях со структурой простой кубической решетки с фрустрированной классической моделью Гейзенберга в одном слое и Изинга в другом.

DOI: 10.31857/S1234567821210060

В настоящее время топологические спиновые структуры, а именно, наноразмерные спиновые вихри – в силу своих топологических свойств и чрезвычайно малых размеров рассматриваются в качестве потенциальных носителей информаций в области спинтроники и новых типах вычислительных устройств [1–3]. Спиновые нанообъекты – скирмионы, получили свое название в честь физика Тони Скайрма, построившего топологическую конфигурацию четырехмерного векторного поля в координатах пространства (3) – времени (1) [4]. Объекты, подобные скирмионам в спиновом пространстве, привлекли большое внимание исследователей в области физики конденсированного состояния – а именно, скирмионы были предложены для объяснения квантового эффекта Холла [5–7]. Кроме того, эти объекты совсем недавно, экспериментально обнаружены в магнитных мультислоях [8-10] и объемных магнитных материалах [11–14]. В конденсированных средах впервые было предсказано, что решетка скирмионов может формироваться во вращающемся сверхтекучем ЗНе, см. [15]. Позже это было экспериментально обнаружено во вращающемся криостате, см. [16]. Динамика скирмионов использовалась для наблюдения аналога киральной аномалии в конденсированных средах [17, 18]. Скирмионы относятся к топологическим спиновым вихревым состояниям, как и вихревые магнитные наноточки, которые, как прави-

ло, формируются под влиянием фрустраций, а также внешнего магнитного поля в нецентросимметричных нанопленках или на интерфейсах в гетероструктурах и бислоях [19–21]. Курумаджи [22] экспериментально обнаружил появление фазы решетки скирмионов блоховского типа в фрустрированном центросимметричном магнетике Gd<sub>2</sub>PdSi<sub>3</sub> с треугольной решеткой. Установлено, что фрустрации в магнитных взаимодействиях способствуют возникновению скирмионов [23] и стабилизируют скирмионную фазу во внешнем магнитном поле, что подтверждается экспериментами. Таким образом, решетка скирмионов может быть стабилизирована конкурирующими взаимодействиями в магнитных пленках с треугольной решеткой, но тем не менее остается еще много неизученных физических свойств скирмионных решеток в пленках с фрустрированной магнитной системой. Следует отметить, что конуренция обменных взаимодействий и межфазной связи типа взаимодействия Дзялошинского-Мория, которое имеет место в сверхтонких гетероструктурах [12, 13, 24] допускает формирование скирмионов, устойчивых даже при комнатных температурах, что ведет к возможности использования магнитоэлектрических бислойных материалов и сверхрешеток в наноэлектронике. В настоящее время предложено несколько методов получения стабильных скирмионов в некиральных магнитных пленках и бислоях [25, 26]. В работе [27] установлено, что в магнитных пленках на столбчатых дефектах определенного типа могут образовываться вихревые неоднородности. В гетероструктурах, со-

 $<sup>^{1)}\</sup>mathrm{e\text{-}mail:}$ sharafullinif@yandex.ru

 $<sup>^{2)}</sup>$ H. T. Diep.

стоящих из ферромагнитных пленок и сегнетоэлектрического изолятора также могут формироваться при комнатных температурах устойчивые магнитные скирмионы и вихри, поэтому такие материалы являются перспективными для устройств спинтроники нового поколения [28-30], таких как, например, микромагнитный скирмионный транзистор для скирмионно-электронной памяти. Отметим, что в работе [31] мы исследовали влияние магнитоэлектрического взаимодействия вида Дзялошинского-Мория в сверхрешетке ферромагнетик/сегнетоэлектрик в отсутствии фрустраций. В отсутсвии внешнего магнитного поля показано, что спиновая конфигурация основного состояния является периодически неколлинеарной. В работе [32] исследовалось упорядочение и спиральные структуры для классической модели Гейзенберга на треугольной решетке с учетом фрустраций в магнитных пленках. В предложенной работе мы покажем, что в фрустрированных системах скирмионные решетки на магнитоэлектрических интерфейсах более устойчивы к полевым воздействиям. Рассмотрим модель и определим спиновую конфигурацию основного состояния бислоя антиферромагнетик/ферроэлектрик в зависимости от величин магнитоэлектрических взаимодействий и напряженностей внешнего магнитного поля. Двуслойная магнитоэлектрическая пленка – или бислой, рассматриваемый в настоящей работе, состоит из антиферромагнитной и ферроэлектрической пленки. Гамильтониан рассматриваемой системы выберем в следующем виде:

$$H_m = -\sum_{i,j} J_{ij}^m \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \sum_{i,k} J_{ik}^{2m} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_k - \sum_i \mathbf{H} \cdot \mathbf{S}_i - \sum_{i,j} J_{ij}^f \mathbf{P}_i \cdot \mathbf{P}_j - \sum_{i,j,k} J_{i,j}^{mf} e_{i,j} \mathbf{P}_k \cdot [\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j], \quad (1)$$

где  $\mathbf{S}_i$  – это спин *i*-го узла простой кубической решетки,  $\mathbf{H}$  – напряженность внешнего магнитного поля, направленного перпендикулярно плоскости пленки вдоль оси z,  $J_{ij}^m < 0$  – антиферромагнитное взаимодействие ближайших спинов  $\mathbf{S}_i$  и  $\mathbf{S}_j$ ,  $J_{ik}^{2m} < 0$  – обменное взаимодействие двух спинов, следующих за ближайшими соседними,  $\mathbf{P}_i$  – поляризация *i*-го узла простой кубической решетки ферроэлектрической пленки,  $J_{ij}^f > 0$  – параметр обменного взаимодействия между поляризациями на ближайших узлах *i* и *j* в плоскости ферроэлектрического слоя. Оригинальным в гамильтониане является последнее слагаемое, описывающее взаимодействие между спинами и поляризациями ближайших слоев – магнитоэлектрическое взаимодействие на интерфейсе антифер-

ромагнитной и сегнетоэлектрической пленок. Отметим, что в исследуемом случае вектор поляризации во всех узлах направлен перпендикулярно плоскости пленок, а энергия магнитоэлектрического взаимодействия будет стремится к минимально возможному значению, если вектора спинов антиферромагнитной пленки лежат в xy-плоскости ( $S^z = 0$ ). Антиферромагнитное обменное взаимодействие между ближайшими и следующими за ближайшими спинами конкурирует с магнитоэлектрической связью на интерфейсе вида  $\mathbf{P}_{\mathbf{k}} \cdot [\mathbf{S}_{\mathbf{i}} \times \mathbf{S}_{\mathbf{i}}]$ . Численные расчеты подтверждают, что в зависимости от соотношения величин взаимодействий на межфазной границе возникают различные конфигурации основного состояния, при этом некоторые из них являются стабильными в широких диапазонах внешнего магнитного поля и температур. В случае учета фрустрации основное состояние определяется с помощью адаптированного нами метода наискорейшего спуска. Метод состоит в минимизации энергии спинов путем выравнивания каждого спина по направлению локального поля, действующего на каждый спин со стороны его окружения. Процедуру минимизации выполняем следующим образом: генерируется случайная начальная спиновая конфигурация. Далее выбирается один спин и вычисляется поле, действующее на него со стороны ближайших соседей и соседей, следующих за ближайшими. Далее мы присваиваем рассматриваемому спину или поляризации на узле направление вычисленного результирующего поля взаимодействия и затем переходим к рассмотрению следующего узла, для которого выполняется аналогичная процедура. Перебираем таким образом все узлы в системе и повторяем эту процедуру до тех пор, пока общая энергия не достигнет минимума. Таким образом выполняется большое число итераций с различными начальными конфигурациями и исследована временная зависимость энергии. Установлено, что достигнутая в результате выполнения минимизации энергия основного состояния с большой степенью точности совпадает для различных начальных конфигураций. Это также находит подтверждение вычисленными значениями среднего значения энергии с помощью моделирования Монте-Карло: вычисленное значение энергии при низких температурах стремится к значению, определенному с помощью метода наискорейшего спуска. Это говорит о корректном определении конфигурации основного состояния. В работе рассматривается бислой с линейными размерами  $N \times N \times L$ , N = 40 и  $L = L_m + L_f = 2$ . На систему накладываются периодические граничные условия в плоскости пленок. Значения обменных параметров для взаимодействующих ближайших соседей приняты следующими:  $J^m = -1$ ,  $J^f = 1$ . Спиновая конфигурация основного состояния для малых величин магнитоэлектрического взаимодействия в интервале  $J^{mf} \in (-0.5, 0)$  состоит из антиферромагнитных и неколлинеарных доменов. При возрастании параметра межфазной магнитоэлектрической связи в основном состоянии стабилизируется неколлинеарная периодическая структура. На рисунках 1, 2



Рис. 1. (Цветной онлайн) Структура спиновой конфигурации в основном состоянии антиферромагнитного слоя для H = 0 с  $J^m = -1, J^f = 1, J^{2m} = -0.3$  $J^{mf} = -1.35$ 



Рис. 2. (Цветной онлайн) Спиновая конфигурация основного состояния антиферромагнитного слоя для H = 1.25 и  $J^m = -1, J^f = 1, J^{2m} = -0.3, J^{mf} = -1.25$ 

показаны некоторые примеры, из которых можно видеть формирование скирмионов различного диаметра на антиферромагнитной пленке. Это наблюдается в диапазоне значений  $J^{mf} \in (-1.05, -0.5),$  $J^{2m} \in (-0.4, -0.25)$ . На рисунке 1 изображен случай  $J^{mf} = -1.35$ , который демонстрирует начало зарождения большого числа скирмионов на интерфейсе.

Результаты выполненных численных расчетов конфигурации основного состояния позволяют сделать вывод о том, что в фрустрированном (а имен-

но,  $J^{2m} \in (-0.4, -0.25))$  бислое антиферромагнетик/ферроэлектрик с простой кубической решеткой скирмионы и магнитные вихри могут формироваться в диапазоне значений магнитоэлектрического взаимодействия  $J^{mf} \in (-1.35, -0.5)$  даже в отсутствии воздействия внешнего магнитного поля (рис. 1b). При включении внешнего магнитного поля наблюдается интересный эффект: в диапазоне значений магнитоэлектрического взаимодействия  $J^{mf} \in$ (-1.35, -0.95) и обменного взаимодействия соседей, следующих за ближайшими  $J^{2m} \in (-0.4, -0.25),$ в спиновой конфигурации основного состояния для значений напряженности приложенного магнитного поля  $H \in (0.1, 0.5)$  происходит разрушение скирмионной структуры. Но при увеличении напряженности внешнего магнитного поля до значений, сравнимых с параметром магнитоэлектрического взаимодействия, мы видим формирование упорядоченной решетки скирмионов (см. рис. 2).

Такой тип спиновой конфигурации основного состояния абсолютно идентичен для  $J^{2m} = -0.4$ , при таких же значениях для параметров  $J^m = -1, J^f =$  $= 1, J^{mf} \in (-1.55, -1.15)$  и H = 1.25. При возрастании магнитоэлектрической связи устойчивость скирмионов по отношению к приложенному магнитному полю увеличивается. Для Монте-Карло моделирования поведения различных физических величин в зависимости от температуры Т и размеров системы, в работе использовался алгоритм Метрополиса для бислоя с кубической решеткой и линейными размерами  $N \times N \times 2$ . При моделировании для заданных значений параметров системы мы задаем в качестве начальных условий те конфигурации основного состояния векторов спина и поляризации на узлах, которые были определены адаптированным методом наискорейшего спуска. Анализировались температурные зависимости следующих физических величин – средние значения магнитного параметра порядка слоя  $(P_m)$ , энергия и теплоемкость бислоя. Параметр порядка антиферромагнитной пленки определяется как проекция значения спина на узле при данной температуре и в данный момент времени  $\mathbf{S}_i(T,t)$  на его же значение в основном состоянии при T = 0, полученное методом наискорейшего спуска. После этого выполняется процедура усреднения по времени. Таким образом, параметр порядка антиферромагнитного слоя определяется выражением:

$$P_m = \frac{1}{N^2(t_a - t_0)} \sum_{i \in n} |\sum_{t=t_0}^{t_a} \mathbf{S}_i(T, t) \cdot \mathbf{S}_i^0(T = 0)|,$$

где  $\mathbf{S}_i(T,t)$  – это спин на *i*-м узле в момент времени t при температуре  $T, \mathbf{S}_i(T=0)$  – его значение

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021
в основном состоянии при T = 0,  $\langle ... \rangle$  – статистическое среднее. На рисунке 3 показана зависимость теплоемкости и параметра порядка антиферромагнитного слоя от температуры для  $J^{mf} = -1.25$ , H = 1.25,  $J^m = -1.0$ ,  $J^f = 1.0$ ,  $J^{2m} = -0.3$ . При этих значениях параметров формируется решетка скирмионов в основном состоянии в фрустрированной антиферромагнитной пленке.



Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурная зависимость теплоемкости антиферромагнитной пленки и параметра порядка (вставка) для набора параметров:  $J^{mf} = -1.25, H = 1.25, J^m = -1.0, J^f = -1.0, J^{2m} = -0.3$ 

Приведенные рисунки позволяют сделать выводы о том, что графики зависимости от температуры у теплоемкости и параметра порядка антиферромагнитной пленки не содержат областей метастабильности при низких T, что связано с правильным выбором основного состояния спиновой конфигурации для выполнения Монте-Карло моделирования. Следует отметить, что антиферромагнитный слой подвержен двум переходам, один из которых обусловлен разрушением скирмионной структуры, а второй пик на графиках соответствует переходу от упорядоченного состояния к неупорядоченному. Оба перехода происходят при различных температурах  $T_{sc} = 0.52$ и  $T_{od} = 0.67$  соответственно. Первый переход, связанный с разрушением вихревых состояний, происходит при более низкой температуре, чем магнитный переход. Это очень важный момент, поскольку со стабильностью решетки скирмионов и отдельных скирмионов связано практическое использование этих нанообъектов. Результаты моделирования показывают, что скирмионная фаза устойчива до температур, сравнимых с температурой перехода из антиферромагнитной фазы в парамагнитную фазу. Показано, что решетка скирмионов устойчива вплоть до температур, сравнимых с критическими температурами, при которых происходят переходы в парамагнитную фазу.

И.Ф.Шарафуллин благодарит за финансовую поддержку в ходе данной работы государственное задание на выполнение научных исследований лабораториями (приказ MN-8/1356 от 20.09.2021).

- 1. A.Rosch, Nat. Nanotechnol. 12, 103 (2017).
- A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio, Nat. Nanotechnol. 8, 152 (2013).
- W. Koshibae, Y. Kaneko, J. Iwasaki, M. Kawasaki, Y. Tokura, and N. Nagaosa, Jpn. J. Appl. Phys. 54, 053001 (2015).
- 4. T. H. R. Skyrme, Proc. R. Soc. A 247, 260 (1958).
- 5. M. Stone, Phys. Rev. B 53, 16573 (1996).
- A. H. MacDonald and J. J. Palacios, Phys. Rev. B. 58, 10171 (1998).
- 7. H. A. Fertig, Int. J. Mod. Phys. B 13, 461 (1999).
- A. N. Bogdanov and U. K. Rössler, Phys. Rev. Lett. 87, 037203 (2001).
- A. N. Bogdanov and A. Hubert, J. Magn. Magn. Mater. 138, 255 (1994).
- A. Abanov and V. L. Pokrovsky, Phys. Rev. B 58, R8889 (1998).
- 11. W. Jiang, P. Upadhyaya, W. Zhang, G. Yu, Jungfleisch, F.Y. Fradin, J.E. M.B. Pearson, Υ. Tserkovnyak, K. L. Wang, О. Heinonen, S.G.E. te Velthuis, and A. Hoffmann, Science, 349, 283 (2015).
- C. Moreau-Luchaire, C. Moutafis, N.Reyren et al. (Collaboration), Nat. Nanotechnol. 11, 444 (2016).
- S. Woo, K. Litzius, B. Krüger et al. (Collaboration), Nat. Mater. 15, 501 (2016).
- O. Boulle, J. Vogel, H. Yang et al. (Collaboration), Nat. Nanotechnol. 11, 449 (2016).
- G. E. Volovik and N. B. Kopnin, Pis'ma v ZhETF 25, 26 (1977). [G. E. Volovik and N. B. Kopnin, JETP Lett. 25, 22 (1977)].
- M. M. Salomaa and G. E. Volovik, Rev. Mod. Phys. 59, 533 (1987).
- T. D. C. Bevan, A. J. Manninen, J. B. Cook, J. R. Hook, H. E. Hall, T. Vachaspati, and G. E. Volovik, Nature. 386, 689 (1997).
- 18. G.E. Volovik, JETP Lett. 103, 140 (2016).
- A.B. Butenko, A. A. Leonov, U.K. Rössler, and A.N. Bogdanov, Phys. Rev. B 82, 052403 (2010).
- S.E. Hog, A.Bailly-Reyre, and H.T. Diep, J. Magn. Magn. Mater. 455, 32 (2018).
- U. K. Rössler, A. A. Leinov, and A. N. Bogdanov, J. Phys. Conf. Ser. 303, 012105 (2011).
- T. Kurumaji, T. Nakajima, M. Hirschberger, A. Kikkawa, Y. Yamasaki, H. Sagayama, H. Nakao, Y. Taguchi, T. Arima, and Y. Tokura, Science 365, 914 (2019).
- T. Okubo, S. Chunghi, and H. Kawamura, Phys. Rev. Lett. 108, 017206 (2012).

- F. Büttner, C. Moutafis, M. Schneider et al. (Collaboration), Nat. Phys. 11, 225 (2015).
- L. Sun, R. X. Cao, B. F. Miao, Z. Feng, B. You, D. Wu, W. Zhang, A. Hu, and H. F. Ding, Phys. Rev. Lett. **110**, 167201 (2013).
- M. V. Sapozhnikov, J. Magn. Magn. Mater. **396**, 338 (2015).
- R. M. Vakhitov, R. V. Solonetsky, and A. A. Akhmetova, J. Appl. Phys. **128**, 153904 (2020).
- 28. H. Pei, S. Guo, L. Ren, C. Chen, B. Luo, X. Dong, K. Jin, R. Ren, and H. F. Zeeshan, Sci. Rep. 7, 1 (2017).
- S.E. Hog, F. Kato, H. Koibuchi, and H.T. Diep, J. Magn. Magn. Mater. 498, 166095 (2020).
- 30. A. P. Pyatakov, Phys. B: Cond. Mat. 542, 59 (2018).
- I. F. Sharafullin, M. K. Kharrasov, and H. T. Diep, Phys. Rev. B 99, 214420 (2019).
- 32. A. Manchon, H.C. Koo, J. Nitta, S.M. Frolov, and R. A. Duine, Nat. Mater. 14, 871 (2015).

# Корреляция между коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности в плотных простых жидкостях

С. А. Храпак, А. Г. Храпак<sup>1)</sup>

Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 сентября 2021 г. После переработки 28 сентября 2021 г. Принята к публикации 29 сентября 2021 г.

Отталкиваясь от зависимости транспортных коэффициентов от избыточной энтропии, исследована корреляция между должным образом нормированными коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности плотных жидкостей. Продемонстрировано, что корреляция существует и может рассматриваться как аналог соотношения Стокса–Эйнштейна между коэффициентами самодиффузии и сдвиговой вязкости. Представленные результаты для четырех простых модельных систем с различными парными потенциалами взаимодействия (Леннард–Джонс, Кулон, обратностепенной шестой степени и твердых сфер), а также шести реальных атомарных и молекулярных жидкостей (Ar, Kr, Xe, CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>) поддерживают этот вывод и позволяют идентифицировать несколько универсальных классов. Предлагаются удобные для практических применений выражения для соотношения между коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности.

DOI: 10.31857/S1234567821210072

1. Введение. Значительный прогресс в понимании транспортных свойств жидкостей был достигнут в последние десятилетия [1–4]. Тем не менее, наше понимание этих процессов остается неполным и фрагментарным по сравнению с газами и твердыми телами. Трудности с теоретическим описанием динамики жидкого состояния были недавно очень хорошо сформулированы Бражкиным [5]. Твердые тела и газы можно рассматривать в некотором (динамическом) смысле как "чистые" агрегатные состояния. В твердых телах движение атомов чисто колебательное, в то время как в разреженных газах атомы свободно движутся по прямолинейным траекториям между столкновениями. Это упрощает разработку теорий транспортных процессов. С другой стороны, жидкости представляют собой "смешанное" агрегатное состояние. Здесь присутствуют как колебательные, так и диффузионные движения атомов. Их относительный вклад в атомную динамику зависит от термодинамического состояния. Вблизи фазового перехода жидкость-твердое тело преобладает колебательное движение, и более актуальны твердотельные подходы к транспортным свойствам. При более низкой плотности и более высоких температурах преобладает баллистическое движение, и перенос аналогичен имеющему место в неидеальных газах.

$$D_{\rm R} = D \frac{\rho^{1/3}}{v_{\rm T}}, \quad \eta_{\rm R} = \eta \frac{\rho^{-2/3}}{m v_{\rm T}}, \quad \lambda_{\rm R} = \lambda \frac{\rho^{-2/3}}{v_{\rm T}}, \quad (1)$$

где  $D, \eta$  и  $\lambda$  – коэффициенты самодиффузии, сдвиговой вязкости и теплопроводности, а индекс R указывает на нормализацию Розенфельда. Здесь  $\rho$  – концентрация атомов,  $v_{\rm T} = \sqrt{T/m}$  – тепловая скорость, T – температура в энергетических единицах ( $\equiv k_{\rm B}T$ ) и m — масса атома. Скейлинг, предложенный Розенфельдом, имеет вид [7]

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

$$D_{\rm R} \simeq 0.6 {\rm e}^{0.8 s_{\rm ex}}, \, \eta_{\rm R} \simeq 0.2 {\rm e}^{-0.8 s_{\rm ex}}, \, \lambda_{\rm R} \simeq 1.5 {\rm e}^{-0.5 s_{\rm ex}}.$$
(2)

В отсутствие общей теории часто приходится полагаться на феноменологические подходы, полуколичественные модели и масштабные соотношения. Среди наиболее полезных соотношений, предложенных на данный момент, является связь между транспортными коэффициентами и внутренней энтропией простых систем, предложенная Розенфельдом [6]. Он продемонстрировал, что правильно приведенные транспортные коэффициенты являются приблизительно экспоненциальными функциями приведенной избыточной энтропии  $s_{\text{ex}} = (S - S_{\text{id}})/Nk_{\text{B}}$ , где S – энтропия системы, S<sub>id</sub> – энтропия идеального газа при той же температуре и плотности, N – количество частиц, а  $k_{\rm B}$  – постоянная Больцмана. Системнонезависимая нормализация транспортных коэффициентов, используемая Розенфельдом, имеет вид:

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: khrapak@mail.ru

Отметим, что  $s_{\rm ex}$  отрицательна, поскольку взаимодействия между атомами увеличивают степень структурного порядка по сравнению с невзаимодействующим идеальным газом. Было продемонстрировано, что многие простые и не очень простые системы удовлетворяют приблизительному скейлингу избыточной энтропии, хотя существуют и обратные примеры. Современное состояние проблемы скейлинга с использованием избыточной энтропии можно найти в обзоре [8].

Еще одно полезное соотношение – соотношение Стокса–Эйнштейна (SE) между коэффициентами самодиффузии и сдвиговой вязкости простых жидкостей. Для плотных простых жидкостей оно имеет вид

$$D\eta(\Delta/T) = \alpha_{\rm SE},$$
 (3)

где  $\Delta = \rho^{-1/3}$  – среднее межатомное расстояние, а  $\alpha_{\rm SE}$  – слабо зависящий от выбора системы коэффициент. Уравнение (3) также известно как соотношение SE без гидродинамического диаметра (в действительности, роль гидродинамического диаметра играет межатомное расстояние) [9].

Уравнение (3) выполняется для многих простых модельных и реальных жидкостей вблизи фазового перехода жидкость-твердое тело [9–11]. Обоснование было предложено в нескольких теоретических моделях [12–14]. В частности, разработанная Цванцигом теория, основанная на колебательном характере движения атомов в жидком состоянии на коротких временных масштабах [12], предсказывает коэффициент SE как  $\alpha_{\rm SE} \simeq 0.13(1 + \eta/2\eta_l) = 0.13(1 + c_l^2/2c_l^2)$ , где  $\eta_l$  – продольная вязкость, а  $c_{t(l)}$  – поперечная (продольная) скорость звука. В результате коэффициент  $\alpha_{\rm SE}$  теоретически может варьироваться от  $\simeq 0.13$  до  $\simeq 0.18$ , что согласуется с результатами моделирования и экспериментов для многих простых жидкостей [9–11].

Другие полезные приближения включают различные варианты скейлинга транспортных коэффициентов по температуре замерзания (см., например, [15–21]). В нашей недавней статье было продемонстрировано, что приведенные коэффициенты переноса жидкостей Леннард–Джонса (LJ) демонстрируют скейлинг по плотности замерзания, и этот скейлинг тесно связан со скейлингом по плотности коэффициентов переноса жидкостей твердых сфер [22]. Динамическая эквивалентность между жидкостью LJ и жидкостями твердых сфер также недавно обсуждалась [23]. В литературе предлагались различные простые модели для индивидуальных коэффициентов переноса (самодиффузия, вязкость и теплопроводность). Целью данной статьи является изучение корреляции между коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности для плотных простых жидкостей. Будет продемонстрировано, что корреляции действительно существуют. Это позволит нам предложить приблизительную связь между коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности, напоминающую соотношение SE. Этот подход потенциально позволяет оценить все транспортные свойства только по одному известному (самодиффузии, вязкости или теплопроводности).

2. Мотивация. В разреженных газах транспортные свойства определяются столкновениями между составляющими их атомами. Коэффициенты переноса можно оценить с помощью теории Чепмена– Энскога [24]. В первом приближении

$$D = \frac{3\sqrt{\pi}}{8} \frac{v_{\rm T}}{\rho \Omega_1}, \quad \eta = \frac{5\sqrt{\pi}}{8} \frac{m v_{\rm T}}{\Omega_2}, \quad \lambda = \frac{75\sqrt{\pi}}{32} \frac{v_{\rm T}}{\Omega_2}, \quad (4)$$

где  $\Omega_1$  и  $\Omega_2$  – интегралы столкновений (сечения передачи импульса и энергии, интегрированные с максвелловской функцией распределения по скоростям). Последние зависят от механизма взаимодействия между атомами. Поскольку и сдвиговая вязкость, и коэффициент теплопроводности обратно пропорциональны  $\Omega_2$ , соотношение между этими коэффициентами не зависит от точного механизма взаимодействия:

$$\frac{\lambda m}{\eta} = \frac{15}{4}.\tag{5}$$

Это соотношение является следствием процессов, лежащих в основе переноса импульса и энергии в разреженных газах, и не выполняется в жидком состоянии [25].

С другой стороны, используя нормировку Розенфельда (1) с соотношением SE без гидродинамического диаметра, мы получаем

$$D\eta(\Delta/T) = D_{\rm R}\eta_{\rm R}.$$
 (6)

В свою очередь из скейлинга избыточной энтропии (2) следует из  $\alpha_{\rm SE} = D_{\rm R}\eta_{\rm R} \simeq 0.12$ . Это разумный прогноз, хотя фактические значения коэффициента  $\alpha_{\rm SE}$  немного выше ( $\simeq 0.14$  для однокомпонентной плазмы и жидкостей Юкавы,  $\simeq 0.15$  для жидкостей LJ и  $\simeq 0.17$  для жидкости твердых сфер [11]).

Скейлинг по избыточной энтропии, примененный к соотношению между коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности, дает

$$\lambda_{\rm R} \simeq 4.10 \eta_{\rm R}^{5/8}.\tag{7}$$

Это указывает на аналогию с соотношением SE, хотя она является неполной. Механизмы диффузии и сдвиговой вязкости в плотных жидкостях остаются тесно связанными, в то время как механизм теплопроводности имеет другую природу. Преобладающий вклад в теплопроводность в плотных жидкостях вносят коллективные возбуждения (мы не рассматриваем жидкие металлы, где преобладающий вклад вносят перенос и рассеяние электронов) [26]. Несмотря на это различие, коэффициенты температуропроводности и кинематической вязкости некоторых благородных и молекулярных жидкостей демонстрируют сходную (системно-зависимую) температурную зависимость, а их минимумы относительно близки для разных веществ [26]. Отношение  $m\lambda/\eta$  (равное 15/4 в идеальном газе) демонстрирует немонотонную зависимость от плотности, но мало отличается от  $\simeq 4$ (отклонения  $\sim 50$  % были получены для жидкости LJ и  $\sim 30 \%$  для модели однокомпонентной плазмы [25]). Число Прандтля  $\Pr = c_{\rm p} \eta / m \lambda$  (где  $c_{\rm p}$  – теплоемкость при постоянном давлении) увеличивается при приближении к точке замерзания, но не слишком сильно отличается от единицы [27]. Таким образом, поиск взаимосвязей между коэффициентами теплопроводности и вязкости не является неразумным.

Ниже, используя литературные данные о сдвиговой вязкости и теплопроводности нескольких реальных и модельных систем, мы ответим на следующие вопросы: (i) существует ли убедительная корреляция между этими коэффициентами переноса; (ii) универсальна ли эта корреляция; и (iii) насколько справедлива форма скейлинга, описываемая уравнением (7).

**3.** Результаты. Нами проанализированы литературные данные для коэффициентов вязкости и теплопроводности нескольких реальных и модельных систем. Среди реальных исследуемых систем – сжиженные благородные газы (аргон, криптон и ксенон), метан, кислород и азот. В данной работе рассматриваются также модельные системы: жидкости LJ, однокомпонентная плазма (ОСР), жидкость с отталкивающим обратно степенным  $\propto 1/r^6$  (IPL6) законом взаимодействия и модель твердых сфер (HS).

При рассмотрении зависимости приведенных коэффициентов переноса  $D_{\rm R}$ ,  $\eta_{\rm R}$  и  $\lambda_{\rm R}$  от плотности простых жидкостей имеется существенное качественное различие. Коэффициент самодиффузии монотонно убывает с приближением к точке замерзания. Напротив, коэффициенты сдвиговой вязкости и теплопроводности немонотонно зависят от плотности. Они демонстрируют минимумы примерно при одинаковой плотности системы, что указывает на переход между газоподобным и жидкостным скейлингом коэффициентов переноса с ростом плотности. Хороший иллюстративный пример можно найти в

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

работе [22], где обсуждается скейлинг коэффициентов переноса по плотности замерзания в жидкостях LJ. В данной статье мы рассматриваем достаточно плотные жидкости с плотностями выше, чем те, которые соответствуют минимумам в  $\eta_R$  и  $\lambda_R$ . Это соответствует жидкостному режиму на фазовой диаграмме. В этом режиме и  $\eta_R$ , и  $\lambda_R$  монотонно возрастают с приближением к точке замерзания.

Данные для сжиженных благородных газов, а также кислорода и азота взяты из работы [28]. Данные для метана взяты из работы [29]. Существуют обширные наборы данных по транспортным свойствам жидкостей LJ. Поскольку приведенные коэффициенты переноса жилкостей LJ влоль изотерм демонстрируют квазиуниверсальный масштабный скейлинг по плотности замерзания [22], достаточно рассмотреть только одну изотерму. Мы выбрали изотерму  $T_* = T/\epsilon = 2$  ( $\epsilon$  – энергетическая шкала потенциала LJ) и использовали коэффициенты вязкости и теплопроводности, указанные в таблицах в работах [30, 31]. Для сильно неидеальной жидкостной однокомпонентной плазмы мы используем данные моделирования методом молекулярной динамики (MD) из работ [32, 33]. Кроме того, добавлены две точки для потенциала отталкивания IPL6, которые доступны в работе [34]. Наконец, транспортные данные для систем твердых сфер взяты из недавних расчетов методом МД, представленных в работах [35, 36].

Результаты для сжиженных благородных газов, жидкостей LJ, ОСР и IPL6 показаны на рис. 1. Видно, что коэффициенты вязкости и теплопроводности, действительно, хорошо коррелируют. Точки данных для рассмотренных различных одноатомных жидкостей имеют тенденцию группироваться вокруг квазиуниверсальной кривой. Зависимость, описываемая уравнением (7), основанная на избыточной энтропии, показана пунктирной кривой. В целом наблюдается довольно хорошее согласие. Для сжиженных благородных газов аргона, криптона и ксенона универсальная корреляция между  $\lambda_{\rm R}$  и  $\eta_{\rm R}$  особенно очевидна. На основе скейлинга по избыточной энтропии (7) может быть предложена следующая функциональная форма

$$\lambda_{\rm R} \simeq \alpha \eta_{\rm R}^{\beta} + \gamma.$$
 (8)

Анализируя данные для аргона, мы получили  $\alpha \simeq 24.88$ ,  $\beta \simeq 0.50$  и  $\gamma \simeq -0.40$ . Эта оценка применима также для криптона и ксенона. Точки данных для жидкости LJ близки к таковым для сжиженных благородных газов. При сильной неидеальности теплопроводность ОСР лежит несколько выше. Тем не

Argon 6 Krypton Xenon LJ ( $T_*=2$ ) 4 OCP  $\cap$ IPL6 Eq. (7) 2 Fit argon 0 2 4 6  $\eta_R$ Рис. 1. (Цветной онлайн) Корреляция между приведенным коэффициентом теплопроводности  $\lambda_{\rm R}$  и коэффициентом сдвиговой вязкости  $\eta_{\rm R}$  для простых атомар-

-

ным коэффициентом теплопроводности  $\lambda_{\rm R}$  и коэффициентом сдвиговой вязкости  $\eta_{\rm R}$  для простых атомарных жидкостей. Символы соответствуют имеющимся данным для различных реальных и модельных жидкостей (указаны на рисунке). Пунктирная кривая обозначает скейлинг уравнения (7) на основе избыточной энтропии. Сплошная кривая обозначает аппроксимацию, основанную на данных для аргона

менее, все точки сгруппированы достаточно близко, и мы можем рассматривать их как принадлежащие к одному классу универсальности.

На рисунке 2 представлена зависимость  $\lambda_{\rm R}$  от  $\eta_{\rm R}$ для молекулярных жидкостей: жидких азота, кислорода и метана. Здесь также наблюдается явная универсальность, но класс универсальности отличается от класса жидких благородных газов. Скейлинг уравнения (7) на основе избыточной энтропии не является идеальным в этом случае. В то же время функциональная форма уравнения (8) остается применимой. Используя данные по кислороду, мы получили  $\alpha \simeq 10.51, \, \beta \simeq 0.29$  и  $\gamma \simeq -5.25$ . Эти параметры справедливы и для азота. Данные для метана демонстрируют некоторое отклонение по мере роста плотности и увеличения приведенных коэффициентов переноса. Интересно, что точки для жидкости ОСР лежат относительно близко к данным для рассматриваемых молекулярных жидкостей.

Каноническая система отсчета в физике конденсированного состояния – это система твердых сфер. Часто предполагается, что определенные структурные и динамические свойства систем мягких взаимодействующих частиц могут быть интерпретированы по аналогии системам HS, даже несмотря на то, что существует кроссовер между мягкими и твер-



Рис. 2. (Цветной онлайн) Корреляция между  $\lambda_{\rm R}$  и  $\eta_{\rm R}$ для молекулярных жидкостей N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, и CH<sub>4</sub>. Символы соответствуют имеющимся данным [28, 29] и численным результатам для ОСР. Пунктирная кривая обозначает скейлинг уравнения (7) на основе избыточной энтропии. Сплошная кривая обозначает аппроксимацию, основанную на данных для кислорода

дыми сферами в жидкостных возбуждениях и термодинамике [37]. Недавние результаты скейлинга по шкале плотности замерзания транспортных свойств леннард-джонсовских жидкостей продемонстрировали, что, хотя коэффициенты диффузии и сдвиговой вязкости могут быть довольно хорошо сопоставлены с коэффициентами диффузии и вязкости HS, коэффициент теплопроводности плотных жидкостей HS систематически больше, чем коэффициент теплопроводности LJ жидкости [22]. Поэтому мы демонстрируем сравнение зависимости  $\lambda_{\rm R}$  от  $\eta_{\rm R}$  для особо мягкой жидкости ОСР и жидкости HS отдельно, см. рис. 3. Теплопроводность жидкости HS систематически выше, как и ожидалось. Подгонка с использованием уравнения (8) дает в пределе HS  $\alpha \simeq 22.62$ ,  $\beta \simeq 0.19$  и  $\gamma \simeq -18.14$ . Это определяет класс универсальности твердых сфер.

4. Заключение. Основные выводы можно сформулировать следующим образом. Существуют определенные корреляции между должным образом нормированными коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности плотных жидкостей. Это является аналогом соотношения Стокса–Эйнштейна между коэффициентами диффузии и вязкости. Однако взаимосвязь между вязкостью и теплопроводностью не является полностью универсальной. Определенная системная зависимость имеет место (и это также напоминает ситуацию с соотношением SE [10, 11]). Разные системы могут принадлежать к разным классам универсальности. В этом исследовании мы вы-

12

10

8

ž

Atomic fluids



Рис. 3. (Цветной онлайн) Корреляции между  $\lambda_{\rm R}$  и  $\eta_{\rm R}$  для систем HS и OCP. Пунктирная кривая соответствует скейлингу уравнения (7) на основе избыточной энтропии. Сплошная кривая – аппроксимация на основе данных для HS из работ [35, 36]

делили три таких класса: аргон (атомные жидкости), кислород (молекулярные жидкости) и твердые сферы. Если класс универсальности известен, знание одного транспортного коэффициента позволяет оценить два других. Это может быть очень полезным упрощением при описании различных явлений, относящихся к жидкому состоянию.

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

- Y. Frenkel, *Kinetic Theory of Liquids*, Dover, N.Y. (1955).
- J.-P. Hansen and I.R. McDonald, *Theory of Simple Liquids*, Elsevier, Amsterdam (2006).
- S. R. Groot and P. Mazur, Non-equilibrium Thermodynamics, Courier Corporation, N.Y. (1984).
- N. H. March and M. P. Tosi, *Introduction to Liquid State Physics*, World Scientific Pub Co Inc, River Edge, NJ (2002).
- 5. V.V. Brazhkin, Phys.-Uspekhi 60, 954 (2017).
- 6. Y. Rosenfeld, Phys. Rev. A 15, 2545 (1977).
- Y. Rosenfeld, J. Phys.: Condens. Matter 11, 5415 (1999).
- 8. J.C. Dyre, J. Chem. Phys. 149, 210901 (2018).
- L. Costigliola, D. M. Heyes, T. B. Schrøder, and J. C. Dyre, J. Chem. Phys. **150**, 021101 (2019).
- 10. S. Khrapak, Mol. Phys. **118**, e1643045 (2019).
- S. Khrapak and A. Khrapak, Phys. Rev. E 104, 044110 (2021).

12. R. Zwanzig, J. Chem. Phys. 79, 4507 (1983).

- U. Balucani, R. Vallauri, and T. Gaskell, Berichte der Bunsengesellschaft f
  ür physikalische Chemie 94, 261 (1990).
- U. Balucani and M. Zoppi, Dynamics of the Liquid State, Clarendon Press, Oxford (1994).
- 15. Y. Rosenfeld, Phys. Rev. E 62, 7524 (2000).
- H. Ohta and S. Hamaguchi, Phys. Plasmas 7, 4506 (2000).
- O.S. Vaulina and S.V. Vladimirov, Phys. Plasmas 9, 835 (2002).
- 18. G. Kaptay, Zeitschrift für Metallkunde 96, 24 (2005).
- O.S. Vaulina, X.G. Koss, Yu.V. Khrustalyov, O.F. Petrov, and V.E. Fortov, Phys. Rev. E 82, 056411 (2010).
- L. Costigliola, U.R. Pedersen, D.M. Heyes, T.B. Schrøder, and J.C. Dyre, J. Chem. Phys. 148, 081101 (2018).
- 21. S. Khrapak, AIP Adv. 8, 105226 (2018).
- S. A. Khrapak and A. G. Khrapak, Phys. Rev. E 103, 042122 (2021).
- L. L. Flores, J. M. Olais-Govea, M. Chávez-Páez, and M. Medina-Noyola, Phys. Rev. E 103, 050602 (2021).
- 24. S. Chapman and T. G. Cowling, The Mathematical Theory of Non-uniform Gases – An Account of the Kinetic Theory of Viscosity, Thermal Conduction and Diffusion in Gases, Cambridge University Press, Cambridge (1990).
- 25. S.A. Khrapak, Phys. Rev. E 103, 013207 (2021).
- 26. K. Trachenko, M. Baggioli, K. Behnia, and V. V. Brazhkin, Phys. Rev. B 103, 014311 (2021).
- 27. S. Khrapak and A. Khrapak, Molecules 26, 821 (2021).
- H. J. M. Hanley, R. D. McCarty, and W. M. Haynes, J. Phys. Chem. Ref. Data 3, 979 (1974).
- D. G. Friend, J. F. Ely, and H. Ingham, Natl. Inst. Stand. Technol., Tech. Note 1325 (1989).
- V.G. Baidakov, S.P. Protsenko, and Z.R. Kozlova, J. Chem. Phys. **137**, 164507 (2012).
- V.G. Baidakov and S.P. Protsenko, J. Chem. Phys. 140, 214506 (2014).
- J. Daligault, K. Rasmussen, and S.D. Baalrud, Phys. Rev. E 90, 033105 (2014).
- B. Scheiner and S. D. Baalrud, Phys. Rev. E 100, 043206 (2019).
- R. Grover, W. G. Hoover, and B. Moran, J. Chem. Phys. 83, 1255 (1985).
- S. Pieprzyk, M.N. Bannerman, A.C. Brańka, M. Chudak, and D.M. Heyes, Phys. Chem. Chem. Phys. 21, 6886 (2019).
- S. Pieprzyk, A.C. Brańka, D.M. Heyes, and M.N. Bannerman, Phys. Chem. Chem. Phys. 22, 8834 (2020).
- S. Khrapak, N. P. Kryuchkov, L. A. Mistryukova, and S. O. Yurchenko, Phys. Rev. E 103, 052117 (2021).

# Кулоновский центр в монослое дихалькогенидов переходных металлов

*М. М. Махмудиан*<sup>+\*1)</sup>, *А. В. Чаплик*<sup>+\*1)</sup>

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

\*Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 12 августа 2021 г. После переработки 30 сентября 2021 г. Принята к публикации 30 сентября 2021 г.

Теоретически исследованы электронные процессы с участием заряженной примеси в монослое дихалькогенидов переходных металлов (ДХПМ) и в графене со щелью (gapped graphene). В рамках минимальной двухзонной модели найден спектр связанных состояний, транспортное сечение рассеяния электронов на заряженном донорном центре и вероятность фотоионизации донора. Последнее обладает существенной долинной селективностью.

DOI: 10.31857/S1234567821210084

Введение. Специфическая зонная структура монослоев ДХПМ привлекла к этим объектам большое внимание и стала причиной их интенсивных экспериментальных и теоретических исследований [1–8]. Ряд интересных и необычных физических явлений возможен в этих двумерных полупроводниках. благодаря наличию двух неэквивалентных долин, в которых состояния электронов при одинаковой энергии имеют противоположные по знаку и равные по абсолютной величине средние моменты количества движения. Это приводит к так называемой долинной селективности оптического поглощения циркулярно поляризованного света [6]. С этим же связана собственная (intrinsic) намагниченность ДХПМ [6–8].

Представляется интересным проследить влияние упомянутой особенности зонной структуры на процессы электрон-примесного взаимодействия. В данной работе мы рассматриваем кулоновский примесный центр в монослое ДХПМ в рамках принятой для таких материалов модели с гамильтонианом [8]:

$$H = \begin{bmatrix} \frac{\Delta_c}{2} & 0\\ 0 & -\frac{\Delta_v}{2} \end{bmatrix} + \gamma \boldsymbol{\sigma}_{\tau} \hat{\mathbf{p}}, \qquad (1)$$

где  $\Delta_c = \Delta + 2\lambda_c \sigma \tau$ ,  $\Delta_v = \Delta - 2\lambda_v \sigma \tau$ ,  $\Delta$  – энергетическая щель,  $\lambda_c, \lambda_v$  – параметры спинового расщепления зоны проводимости (c) и валентной зоны (v), соответственно,  $\gamma$  – межзонная скорость (параметр материала),  $\sigma_{\tau} = (\tau \sigma_x, \sigma_y), \sigma$  – матрицы Паули,  $\tau = \pm 1$  – долинный индекс,  $\sigma = \pm 1$  – знак

проекции спина,  $\hat{\mathbf{p}}$  – оператор двумерного импульса. Присутствие кулоновского центра с потенциалом  $U(r) = -\alpha/r$  ( $\alpha > 0$  в случае притяжения) приводит нас к двумерному варианту задачи о релятивистском атоме водорода, но множитель au перед  $\sigma_x$  в гамильтониане и асимметрия щели из-за  $\Delta_c \neq \Delta_v$  вносят некоторые изменения в детали вычислений (ср. [9]). Двумерная задача о связанных состояниях на кулоновском центре и о резерфордовском рассеянии для дираковских электронов уже рассматривалась в литературе. Работа [10] содержит подробное изложение решения задачи о связанных состояниях двумерного атома водорода. В работах [11, 12] на примере графена исследуется поляризация вакуума безмассовых дираковских электронов и экранировка точечного заряда, в том числе при его сверхкритической величине. Рассеяние на кулоновском потенциале двумерных электронов с релятивистским законом дисперсии, помимо этих же работ [11, 12], рассматривалось в [13, 14]. В этих четырех статьях сечение представлено в виде ряда по угловым гармоникам, а в [14] авторы в области применимости теории возмущений в кулоновском поле приводят замкнутую формулу, содержащую релятивистские поправки порядка  $(v/c)^2$  к результату шредингеровской теории. Кулоновский центр в графене со щелью исследован в [15].

Во всех перечисленных работах авторы ведут вычисления для гамильтониана, не учитывающего асимметрию щели и либо вообще не пишут долинный индекс  $\tau$ , либо приводят результаты лишь для  $\tau = 1$  (что по сути одно и тоже). Но в случае ДХПМ

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: mahmood@isp.nsc.ru; chaplik@isp.nsc.ru

неэквивалентность долин в некоторых случаях приводит к реальным физическим следствиям, которые мы проследим в данной работе.

Волновые функции и спектр связанных состояний. Гамильтониан (1) приводит к системе уравнений для компонент  $\psi_1, \psi_2$  спинорной волновой функции, которые из-за асимметрии щели ( $\Delta_c \neq \Delta_v$ ) лишь постоянными коэффициентами отличаются от хорошо известных уравнений трехмерной задачи (см., например, [9]). Их решения имеют вид ( $\hbar = 1$ ):

$$\psi_{1} = r^{x_{j} - \frac{1}{2}} e^{-\lambda r} \sqrt{\frac{\Delta_{v}}{2} + E} \frac{K_{1} + K_{2}}{2i} e^{i\left(j - \frac{\tau}{2}\right)\varphi}, \quad (2)$$
  
$$\psi_{2} = \tau r^{x_{j} - \frac{1}{2}} e^{-\lambda r} \sqrt{\frac{\Delta_{c}}{2} - E} \frac{K_{1} - K_{2}}{2} e^{i\left(j + \frac{\tau}{2}\right)\varphi}.$$

Функции К<sub>1</sub> и К<sub>2</sub> определяются формулами

$$K_{1} = AF\left(\frac{1-\tau}{2} + x_{j} - y, 1 + 2x_{j}; 2\lambda r\right),$$
  

$$K_{2} = BF\left(\frac{1+\tau}{2} + x_{j} - y, 1 + 2x_{j}; 2\lambda r\right),$$
 (3)

где  $x_j = \sqrt{j^2 - \frac{\alpha^2}{\gamma^2}}, \ y = \frac{\alpha(\delta + 4E)}{4\gamma^2\lambda}, \ \delta = \Delta_v - \Delta_c.$ Здесь r и  $\varphi$  – цилиндрические координаты, j =

здесь r и  $\varphi$  – цилиндрические координаты,  $j = \pm 1/2, \pm 3/2..., \alpha = e^2/\varepsilon_{\text{eff}}$ , где  $\varepsilon_{\text{eff}}$  – эффективная диэлектрическая постоянная, зависящая от конкретной структуры: монослой ДХПМ может лежать на диэлектрической подложке или находиться в структуре типа "сэндвича".

Уровни энергии получаются из условия  $x_j - y = -n_r$ , где  $n_r = 0, 1, 2...,$  и даются формулой

$$E(n_r, j) = -\frac{\delta}{4} + \frac{\Delta_c + \Delta_v}{4} \left( 1 + \frac{\alpha^2}{\gamma^2 \left(n_r + \sqrt{j^2 - \frac{\alpha^2}{\gamma^2}}\right)^2} \right)^{-\frac{1}{2}}.$$
 (4)

Известное из 3D задачи ограничение на состояния с нулевым радиальным числом здесь несколько видоизменяется: при  $n_r = 0$  должно быть  $j\tau > 0$ , т.е. j > 0 в долине  $\tau = +1$  и j < 0 в другой долине. Ниже будет показано, что это оказывается существенным для оптических переходов из состояний  $n_r = 0$ .

Как видно из (4), энергия зависит только от  $j^2 = (m + \tau/2)^2$ . Отсюда следует, что совпадают уровни с противоположными орбитальными моментами m лишь для разных долин  $E_m^+ = E_m^-$ , что отличает ДХПМ от обычных полупроводников, где выполняется  $E_m = E_{-m}$ . Далее, в разных долинах совпадают уровни с соседними значениями  $m: E_m^+ = E_{m+1}^-$ 

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

и  $E_m^- = E_{m-1}^+$ , где верхний знак отвечает значению  $\tau$ . Это вырождение вполне аналогично совпадению уровней  $ns_{1/2}$  и  $np_{1/2}$ ,  $np_{3/2}$  и  $nd_{3/2}$  и т.д. в тонкой структуре атома водорода, только здесь роль спина играет номер долины.

Известно, что формула типа (4) для дираковского электрона в поле заряда Z имеет смысл в своей точной форме при  $Ze^2/\hbar c \sim 1$  и неприменима для Z > 137. В нашем случае роль скорости света играет параметр  $\gamma$ . Для соединения MoS<sub>2</sub>  $\gamma = 5.6 \cdot 10^7 \text{см/c}$ , т.е. уже при единичном заряде донорного центра радикал в (4) становится мнимым для некоторых значений *j*. Описание таких состояний требует учета отклонения поля от кулоновского на малых расстояниях. Это хорошо известная проблема сверхтяжелых атомов в теории Дирака. Ее принципиальное решение дано в работе [16], а полный обзор проблемы с библиографией вопроса содержится в обзоре [17]. Показано, что при обрезании кулоновского потенциала на некотором радиусе  $R_0$  исчезает корневая сингулярность в спектре энергий и уровень энергии  $E(n_r, j)$ , пройдя точку  $j = \alpha/\gamma$ , продолжает опускаться, пока не дойдет до границы нижнего континиума – в нашем случае это потолок валентной зоны. Результат, однако, теряет универсальность и существенно зависит от способа обрезки закона 1/r, т.е. не только от радиуса  $R_0$ , но и от деталей поведения потенциала при  $r < R_0$ . В рассматриваемой нами задаче граница применимости кулоновского потенциала R<sub>0</sub> определяется не радиусом заряженного донора, а диэлектрическим экранированием. Оно является следствием различия диэлектрических постоянных (ДП) в трехслойной структуре: монослой ДХПМ (вклад его поляризуемости в изменение электростатического поля можно охарактеризовать некоторой эффективной толщиной и ДП  $\varepsilon$  [18]) и два окружающих монослой полупространства –  $\varepsilon_1$ и  $\varepsilon_2$ . Область существенного отклонения потенциала от кулоновского становится важной при сильном диэлектрическом контрасте  $\varepsilon \gg \varepsilon_1, \varepsilon_2$ . Тогда фурьеобраз потенциала имеет вид  $4\pi e/(\varepsilon k^2 a + (\varepsilon_1 + \varepsilon_2)k)$ , где а – толщина промежуточного слоя, а сам потенциал логарифмически зависит от расстояния (см. [19–21]). При малой толщине "а" первое слагаемое в знаменателе, ответственное за отклонение от закона Кулона, становится существенным, если расстояние  $r \sim 1/k < a \varepsilon / (\varepsilon_1 + \varepsilon_2) = R_0$ . ДП объемного MoS<sub>2</sub> порядка 10,  $a \sim 5$  Å, поэтому для сэндвич-структуры  $R_0 = 6$  Å, а для монослоя на подложке  $R_0 = 10$  Å.

Радиус связанного состояния  $\langle r_j \rangle$  при  $n_r = 0$ для момента j, вычисленный с функциями (2), равен  $|j|(2x_j + 1)\gamma^2/\alpha\Delta = 2.5|j|(2x_j + 1)$  Å для параметров MoS<sub>2</sub>; при  $\varepsilon_{\text{eff}} = 4$  (сэндвич) отношение  $\alpha/\gamma$ равно 0.98, а в монослое на подложке – 1.56. Отсюда видно, что состояния с j = 1/2, 3/2 не могут быть описаны кулоновскими решениями по двум причинам: сверхкритический "заряд ядра" и отклонение поля от кулоновского из-за диэлектрического экранирования. Применимость изложенного выше расчета при  $n_r = 0$  начинается с j = 5/2 (с ростом  $n_r$  пороговое j уменьшается). Для графена на подложке SiC ( $\varepsilon = 7$ ,  $\gamma = 10^8$  см/с,  $\Delta = 0.26$  эВ) имеем:  $R_0$  практически такое же, как для MoS<sub>2</sub>,  $\langle r_j \rangle = 46|j|(2x_j+1)$  Å,  $\alpha/\gamma = 0.55$ , поэтому кулоновскими являются состояния, начиная с j = 3/2.

Резерфордовское рассеяние. В непрерывном спектре параметр  $\lambda$  становится чисто мнимым:  $\lambda = -ip$ , где  $\gamma p = [(E - \Delta_c/2) (E + \Delta_v/2)]^{1/2}$ , в волновой функции вклады  $K_1$  и  $K_2$  меняются местами при перемене знака  $\tau$ . Поэтому связь констант A и B можно представить в виде (тильдой отмечены величины, относящиеся к непрерывному спектру):

$$\frac{A}{B} = \left[\frac{x_j - i\tilde{y}}{j\tau + i\tilde{z}}\right]^{\tau} = e^{-2i\theta_j}, \tag{5}$$
$$\tilde{y} = \frac{\alpha \left(\delta + 4E\right)}{4\gamma^2 p}, \quad \tilde{z} = \frac{\alpha \left(\Delta_c + \Delta_v\right)}{4\gamma^2 p}.$$

Падающая волна с единичным потоком вдоль ос<br/>и $\boldsymbol{x}$ описывается спинором

$$\chi_0 = \frac{e^{ipx}}{\sqrt{2\gamma}} \begin{bmatrix} \left(\frac{E + \Delta_v/2}{E - \Delta_c/2}\right)^{1/4} \\ \tau \left(\frac{E - \Delta_c/2}{E + \Delta_v/2}\right)^{1/4} \end{bmatrix}.$$
 (6)

Разлагая эту функцию по цилиндрическим волнам свободного движения и обычным образом исключая сходящиеся волны, найдем спинорную амплитуду рассеяния:

$$f(\varphi) = \begin{bmatrix} f_1(\varphi) \\ f_2(\varphi) \end{bmatrix} = \frac{e^{-i\pi/4}}{2\sqrt{\pi\gamma p}} \sum_j \left( e^{2i\Phi_j + i\pi j} - 1 \right) \times \\ \times \begin{bmatrix} \left(\frac{E + \Delta_v/2}{E - \Delta_c/2}\right)^{1/4} e^{i(j - \frac{\pi}{2})\varphi} \\ \tau \left(\frac{E - \Delta_c/2}{E + \Delta_v/2}\right)^{1/4} e^{i(j + \frac{\pi}{2})\varphi} \end{bmatrix}.$$
(7)

Здесь фаза  $\Phi_i$  определена соотношением:

$$e^{2i\Phi_j} = e^{-i\pi x_j + i\theta_j} \frac{\Gamma(1 + x_j - iy)}{\Gamma(1 + x_j + iy)}.$$
 (8)

(Мы не выписываем в  $\Phi_j$  кулоновский логарифм радиуса r, так как он сокращается в формуле для сечения).

Ток рассеянных частиц  $\langle u_r \rangle$  находится как среднее значение радиальной компоненты оператора

 $\hat{u}_r = \gamma \boldsymbol{\sigma}_{\tau} \mathbf{n}_r = \gamma (\sigma_x \tau \cos \varphi + \sigma_y \sin \varphi).$  В билинейных комбинациях  $f_1 f_2^*$  и  $f_1^* f_2$ , входящих в  $\langle u_r \rangle$ , исчезает зависимость от au, так что рассеяние не обладает долинной селективностью. Полное сечение  $\sigma_{\rm tot} = \int \langle u_r \rangle r d\varphi$  расходится, как и "положено" при рассеянии на неэкранированном кулоновском центре. Однако транспортное сечение за счет множителя  $(1 - \cos \varphi)$  оказывается конечным без учета экранирования – хорошо известное свойство двумерного резерфордовского рассеяния, описываемого обычным уравнением Шредингера. Для его нахождения, как и в 3D случае, исключаем вклад рассеяния вперед, т.е. опускаем единицу в скобках формулы (7). Интересуясь здесь только сечением, можно не производить обычную регуляризацию кулоновской фазы, вычитая из всех  $\Phi_i$  некоторое  $\Phi_{i0}$ , поскольку в сечение входят лишь разности фаз, из которых этот вклад вместе с кулоновским логарифмом выпадает. "Транспортный" множитель  $(1 - \cos \varphi)$  после интегрирования  $\langle u_r \rangle$  по  $\varphi$  оставляет в двойной сумме по j и j' лишь 3 члена: j = j', j = j' - 1 и j = j' + 1, причем третий вклад сводится ко второму сдвигом индекса суммирования. Окончательно получаем:

$$\sigma_{tr} = \frac{2}{p} \sum_{j}^{\prime} \cos^2\left(\Phi_j - \Phi_{j+1}\right).$$
 (9)

Разность  $\Phi_j - \Phi_{j+1}$  при  $j \to \infty$  асимптотически стремится (в зависимости от знака j) к  $\pm \pi/2 + o(1/j^2)$ . Таким образом, далекие члены суммы в (9) убывают как  $1/j^4$ , и ряд быстро сходится. Штрих у знака суммы означает, что в нее не включены вклады от моментов  $j = \pm 1/2, \pm 3/2$ . Как уже было сказано, эти состояния в ДХПМ не являются чисто кулоновскими, и их надо описывать с учетом "обрезания" закона Кулона на малых расстояниях. Очень близкая к данной нерелятивистская задача о резонансном рассеянии заряженных частиц рассмотрена в учебнике Ландау и Лифшица [14] (в рассматриваемом нами случае резонансного усиления рассеяния нет, так как отсутствует близкий к дну зоны проводимости уровень энергии в запрещенной зоне). В амплитуде рассеяния изменение потенциала в области  $r < R_0 \sim 10^{-7}$ см приведет к изменению фаз для  $j = \pm 1/2, \pm 3/2$ . Вклад этих значений момента в сумму по j не может, очевидно, превышать 4, тогда как в наиболее актуальной области энергий, в которой мы провели численное суммирование (температура электронов не выше 0.1 эВ) сумма всего ряда значительно больше. Соответствующий график приведен на рис. 1. Зависимость транспортного сечения



Рис. 1. Транспортное сечение рассеяния электрона на однократно заряженном центре для  $MoS_2$  в сендвичструктуре;  $\Delta_c = 1.66$  эВ,  $\Delta_v = 1.36$  эВ,  $\gamma = 5.6 \cdot 10^7$  см/с,  $\epsilon_{\text{eff}} = 4$ , E в электрон-вольтах. Степенная аппроксимация изображена сплошной линией, точки – численное суммирование ряда в (9)

от энергии, отсчитанной от дна зоны проводимости хорошо спрямляется в логарифмических координатах и дает закон  $9.88 \cdot 10^{-8}$  см/ $E^{1.002}$ , E в электронвольтах. Это очень близко соответствует точному результату нерелятивистского резерфордовского рассеяния в квазиклассическом пределе  $(e^2/\epsilon_{\text{eff}}hv \gg 1)$ :  $\sigma_{tr} = \pi e^2 / \epsilon_{\text{eff}} E$  (см. [13]). Такого совпадения и следовало ожидать, так как вблизи экстремумов зон закон дисперсии элементарных возбуждений в двухзонной модели совпадает с таковым для обычного гамильтониана уравнения Шредингера, а параметры  $\Delta$  и  $\gamma$ таковы, что выполняется условие квазиклассичности в той же области энергий. В качестве другого примера мы рассчитали то же сечение для графена на подложке SiC ( $\Delta = 0.26$  эВ,  $\gamma = 10^8$  см/с,  $\epsilon_{\text{eff}} = 4$ в случае структуры SiC – графен-вакуум (є самой подложки равно 7). В этом случае состояния с моментами, не равными  $\pm 1/2$ , попадают в кулоновскую область, поэтому в сумме (9) вклад слагаемых  $\pm 1/2$ заменен на единицу.

Расчет показал, что (как и ожидалось при существенно меньшей щели  $\Delta$ ) отличие от результата для сечения резерфордовского рассеяния в обычном полупроводнике становится вполне заметным: при степенной аппроксимации зависимости  $\sigma_{tr}(E)$  показатель степени близок к 0.9:  $\sigma_{tr} = 16.14 \cdot 10^{-8} \text{ см}/E^{0.865}$ . Соответствующая кривая приведена на рис. 2.

Фотоионизация донора. Рассмотрим переходы примесь-зона под действием циркулярно поля-



Рис. 2. Транспортное сечение рассеяния для графена на подложке SiC. Степенная аппроксимация изображена сплошной линией, точки – численное суммирование ряда в (9)

ризованного излучения. Оператор взаимодействия равен  $H_{\text{int}} = \frac{e}{c}A_0\gamma\kappa\hat{\mathbf{v}} = \frac{eA_0\gamma}{c\sqrt{2}}(\tau\sigma_x + i\xi\sigma_y)$ , где  $A_0$  – амплитуда вектор-потенциала световой волны,  $\kappa\left(\frac{1}{\sqrt{2}},\frac{i\xi}{\sqrt{2}}\right)$  – вектор поляризации,  $\xi = \pm 1$  для правой (левой) поляризации света. Фотоионизация циркулярно поляризованным излучением из состояния  $E_0, j$  в состояние E, j' подчиняется правилу отбора по числу j, которое определяется только угловой частью волновой функции и поэтому не зависит от деталей поведения аксиально симметричного потенциала. При любом  $\tau$  имеем  $j' = j + \xi$ . Вероятность процесса W равна сумме двух вкладов:

$$W = W^{+} + W^{-} =$$

$$= (1 + \xi\tau) \left( E + \frac{\Delta_{v}}{2} \right) \left( \frac{\Delta_{c}}{2} - E_{0j} \right) f(j + \tau) +$$

$$+ (1 - \xi\tau) \left( E - \frac{\Delta_{c}}{2} \right) \left( E_{0j} + \frac{\Delta_{v}}{2} \right) f(j - \tau). \quad (10)$$

Функция  $f(j \pm \tau)$  есть результат интегрирования в матричном элементе перехода между состояниями дискретного и непрерывного спектров. Хотя интеграл этот берется в замкнутой форме, получающееся выражение очень громоздко. В уравнении (10) мы явно выделили множители, показывающие зависимость W от долинного индекса и от поляризации излучения, а также определяющие поведение вероятности ионизации вблизи порога процесса при  $E \rightarrow \Delta_c/2$ . Очевидна селективность сечения фотоионизации, причем ее энергетическая зависимость качественно отлична от аналогичной зависимости переходов зона–зона для свободных электронов в монослое ДХПМ. Как известно, в последнем случае селективность межзонных переходов определяется множителем (в симметричной модели  $\Delta_c = \Delta_v = \Delta$ )  $(\Delta/2E - \xi\tau)^2$  и равна единице на самом пороге ионизации  $\Delta/2$ . В нашем случае отношение  $W^+/W^-$  при приближении к порогу  $(p \to 0)$  стремится к конечному пределу, зависящему от j и зонных параметров. Например, при ионизации с уровня  $n_r = 0, j = 5/2$ , который, как оценено выше, уже попадает в область применимости кулоновской модели, коэффициент селективности на пороге равен 0.843.

На рисунке 3 показан результат соответствующего численного расчета коэффициента селективности, который определяется отношением  $Q = |(W^+ - W^-)/(W^+ + W^-)|$ , где  $W^+$ ,  $W^-$  – вероятности ионизации в долинах +1 и –1 соответственно.



Рис. 3. Коэффициент селективности фотоионизации донора с уровня (0,5/2) в MoS<sub>2</sub> в сендвич-структуре ( $\Delta_c = 1.66$  эВ,  $\Delta_v = 1.36$  эВ,  $\gamma = 5.6 \cdot 10^7$  см/с,  $\epsilon_{\rm eff} = 4$ ) как функция энергии электрона в конечном состоянии. Порог ионизации равен 0.06 эВ

Заключение. В работе выяснена специфика связанных состояний электрона на заряженном примесном центре в ДХПМ: при нулевом радиальном числе состояния с различными по знаку орбитальными числами "распределяются по долинам" в соответствии с правилом  $j\tau > 0$ . Величина энергии любого уровня не зависит от долинного индекса  $\tau$ , однако зависимость спектра от  $\tau$  присутствует в соотношениях, определяющих какие состояния оказываются вырожденными, а кратность вырождения вдвое больше, чем в однодолинных материалах. Транспортное сечение рассеяния на кулоновском центре конечно без учета экранирования и не обладает долинной селективностью, но амплитуда рассеяния явно содержит долинный индекс. Сечение фотоионизации донора, напротив, является долинно селективным для циркулярно поляризованного излучения. При приближении возбуждающей частоты к порогу ионизации коэффициент селективности стремится к конечному пределу, зависящему от j и зонных параметров.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант #17-12-01039).

- G. Sundaram and Q. Niu, Phys. Rev. B 59, 14915 (1999).
- D. Xiao, J. Shi, and Q. Niu, Phys. Rev. Lett. 95, 137204 (2005).
- T. Thonhauser, D. Ceresoli, D. Vanderbilt, and R. Resta, Phys. Rev. Lett. 95, 137205 (2005).
- D. Ceresoli, T. Thonhauser, D. Vanderbilt, and R. Resta, Phys. Rev. B 74, 024408 (2006).
- J. Shi, G. Vignale, D. Xiao, and Q. Niu, Phys. Rev. Lett. 99, 197202 (2007).
- T. Thonhauser, Int. J. Mod. Phys. B 25(11), 1429 (2011).
- Л. И. Магарилл, А. В. Чаплик, Письма в ЖЭТФ 114, 78 (2021).
- D. Xiao, W. Yao, and Q. Niu, Phys. Rev. Lett. 99, 236809 (2007).
- В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Теоретическая физика*, Наука, М. (1968), т. IV, ч. I, пп. 36.
- S.H. Guo, X.L. Yang, F.T. Chan, K.W. Wong, and W.Y. Ching, Phys. Rev. A 43, 1197 (1991).
- A. V. Shytov, M. I. Katsnelson, and L. S. Levitov, Phys. Rev. Lett. 99, 236801 (2007).
- A. V. Shytov, M. I. Katsnelson, and L. S. Levitov, Phys. Rev. Lett. 99, 246802 (2007).
- 13. D.S. Novikov, Phys. Rev. B 76, 245435 (2007).
- 14. Q.-g. Lin, Phys. Lett. A 260, 17 (1999).
- В. М. Кулешов, В. Д. Мура, Н. Б. Нарожный, А. М. Федотова, Ю. Е. Лозовик, Письма в ЖЭТФ 101, 282 (2015).
- I. Pomeranchuk and Ya. Smorodinsky, J. Phys. USSR 9, 97 (1945).
- 17. Я.Б. Зельдович, В.С. Попов, УФН 105, 403 (1971).
- 18. М.В. Дурнев, М.М. Глазов, УФН 188, 913 (2018).
- 19. Н.С. Рытова, Вестник МГУ, Сер. физ. 3, 30 (1967).
- 20. А.В. Чаплик, М.В. Энтин, ЖЭТФ 61, 2496 (1971).
- 21. Л.В. Келдыш, Письма в ЖЭТФ 29, 716 (1979).

# Topological phase transitions in strongly correlated systems: application to $m Co_3Sn_2S_2$

V. Yu. Irkhin<sup>1)</sup>, Yu. N. Skryabin

M. N. Mikheev Institute of Metal Physics, 620108 Ekaterinburg, Russia

Submitted 28 September 2021 Resubmitted 30 September 2021 Accepted 30 September 2021

#### DOI: 10.31857/S1234567821210096

Recently, the layered kagome lattice compound  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  has been a subject of numerous experimental and theoretical investigations. Its electronic structure contains Weyl points, Fermi arcs and nodal rings, which play an important role in the anomalous Hall effect. Single-crystal experimental data on the  $\text{Co}_3\text{In}_x\text{Sn}_{2-x}\text{S}_2$ kagome system [1] show that these systems have an almost two-dimensional itinerant magnetism and a chiral spin state; in addition, a strongly correlated state with a high electronic heat capacity is formed. The important role of correlations is confirmed by a considerable enhancement of  $\gamma T$ -linear specific heat even in the ferromagnetic phase [1], especially at approaching the magnetic-nonmagnetic critical point somewhat below x = 1.

The ferromagnetism in Co<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>S<sub>2</sub> breaks timereversal T-symmetry and is necessary for the existence of topological Weyl points. Above  $T_C$ , intrinsic magnetic field disappears, the Weyl points annihilate and the Dirac points acquire a gap. This restores T-symmetry and eliminates the topological behavior. A similar, but quantum transition occurs with disappearance of ferromagnetism in the  $Co_3In_xSn_{2-x}S_2$  system at the hole doping [2]. The doping shifts the Weyl nodes away from the Fermi level. For small doping, the nodal rings are located around the Fermi energy, and for  $x \sim 0.2$ , the nodal lines surrounding the L point in the Brillouin zone cross the Fermi surfaces (Fig. 1). With further increasing x, the nodal lines are split into two rings as with the annihilation of Weyl points in the presence of the spin-orbit coupling. For x > 0.6, the nodal lines are located far from the Fermi level, resulting in the small Berry curvature on the whole Fermi surfaces [2]. At x = 1 the system becomes insulating; according to [1], this anomalous nonmetallic state may originate from the Fermi energy tuning through a Dirac point.

In the present work we treat the model picture of correlated half-metallic ferromagnetism in  $Co_3Sn_2S_2$  and



Fig. 1. (Color online) Schematic Fermi surfaces (solid green lines) for  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  in the  $k_x - k_z$  plane at  $k_y = 0$  according to [2]. The thin black solid line shows the nodal lines in the absence of spin-orbit coupling for (a) x = 0.2 and (b) x = 0.4. The upper and lower triangles on the nodal lines in (a) stand for the Weyl points with topological charges +1 and -1 in the presence of spin-orbit coupling

provide a description of these transitions within the topological classification [3].

The half-metallic ferromagnetism of  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  occurs in the partially filled  $\text{Co} 3d_{x^2-y^2}$  band which crosses the Fermi level. The associated moment of  $1\mu_B$  is spread over three Co atoms, in agreement with the  $0.33\mu_B$  per Co magnetic moment from first-principle calculations and the experimental moment which is slightly less than  $1\mu_B/\text{f.u.}$  This enables one to formulate a local Hubbard model for the Co atom cluster [4].

According to [4], across the magnetic transition,  $Co_3Sn_2S_2$  evolves from a Mott ferromagnet to a correlated metallic state. In fact, the "Mott ferromagnet" is a half-metallic ferromagnetic state, so that we have a partial Mott transition in the minority spin subband.

The picture of half-metallic ferromagnetism can be qualitatively described by the simplest narrow-band Hubbard model with large on-site repulsion U. In this model, doubly occupied states (doubles) are absent owing to the Hubbard splitting, but states with both spin projections are still present. Thus the situation is different from the Stoner model where spin splitting becomes infinitely large. The physics does not qualitatively change in the case of finite Hubbard U, since the dou-

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: valentin.irkhin@imp.uran.ru

bles are automatically eliminated in the saturated halfmetallic state [5]. We can use the slave fermion representation the Hubbard projection operators describing motion of holes in the correlated state on the background of magnetic moments.  $X_i(0,\sigma) = |i0\rangle \langle i\sigma| = f_i^{\dagger} b_{i\sigma}$  where  $f_i$ are fermions and  $b_{i\sigma}$  are Schwinger boson operators. In the saturated ferromagnetic state the  $b_{i\uparrow}$  boson is condensed, and  $b_{i\downarrow}$  becomes magnon annihilation operator. The spin-up (majority) states propagate freely on the background of strong ferromagnetic ordering and possess an exotic spectrum of chiral Weyl fermions in the internal magnetic field.

The spin down (minority) Green's function in the leading approximation is obtained as a convolution of the Green's functions for free fermions and bosons, so that  $N(t_1) + f(t_2, t_3)$ 

$$G_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \sum_{\mathbf{q}} \frac{N(\omega_{\mathbf{q}}) + f(t_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})}{E - t_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega_{\mathbf{q}}},$$
(1)

where  $N(\omega)$  and f(E) are the Bose and Fermi functions,  $\omega_{\mathbf{q}}$  is the magnon spectrum,  $t_{\mathbf{k}}$  the band energy. Similar results for a Hubbard ferromagnet were obtained earlier in the many-electron representation of X-operators [5], the analogy with Anderson's spinons being discussed. The Green's function (1) has a purely non-quasiparticle nature. The number of minority states is equal to the number of majority states  $n_0$  owing to the sum rule

$$\sum_{\mathbf{k}} \langle X_{-\mathbf{k}}(0,\sigma) X_{\mathbf{k}}(\sigma,0) \rangle = \langle X_i(0,0) \rangle = n_0 \qquad (2)$$

for both projections  $\sigma$ , so that the current carriers (Hubbard's holes) are in a sense spinless.

The description of the transition to the half-metallic state can be described as a partial (orbital-selective) Mott transition in the minority spin subband. The Lifshitz transitions with vanishing quasiparticle poles can be viewed as quantum phase transitions with a change of the topology of Fermi surface, but without symmetry breaking. Indeed, the Fermi surface itself is the singularity in the Green's function, which is characterized by topological invariant  $N_1$  and topologically protected: it is the vortex line in the frequency-momentum space [3]. In the gapped phase, usual Fermi surface does not exist, but its topology is preserved if we take into account the Luttinger contribution. Then the Luttinger theorem (the conservation of the volume enclosed by the Fermi surface) is still valid. Thus the Fermi surface becomes ghost (hidden) in the Mott phase for both spin projections and in our half-metallic situation for minority states, since the Fermi level lies in the corresponding gap.

On the contrary, the transition with disappearance of the Weyl points is essentially topological: topological invariants are changed. In the Weyl semimetal phase, the Weyl points have topological charges  $N_3 = +1$  and -1 and annihilate in the critical Dirac semimetal. Further on, in the normal paramagnetic state the topology owing to the Berry curvature vanishes. Thus the conservation law for the topological charge [3] is fulfilled. In the insulator case, we have a transition from topological to normal insulator with restoring time-reversal symmetry. A still more complicated situation occurs in the case of Chern insulators with a change of the Chern number [6, 7].

In the half-metallic ferromagnetic state Hubbard correlations do not result in narrowing of bare bands for majority states, but in the paramagnetic state the situation changes: we come to the regime of narrow correlated bands for both spin projections. These may be characterized either by strongly renormalized quasiparticle residue, or even by a non-Fermi-liquid (e.g., marginal Fermi-liquid) behavior. Besides absence of *T*-breaking internal magnetic field in the paramagnetic phase, this can be important for vanishing of topological effects. Thus the topological properties and strong correlations in  $Co_3Sn_2S_2$  are intricately linked, so that one cannot be adequately considered without the other [4].

According to [8], at finite temperatures the magnetic structure includes the out-of-plane ferromagnetism, inplane antiferromagnetism, and hidden phases. The corresponding values of transition temperatures are  $T_C =$ = 182 K,  $T_N = 177$  K, and  $T_{\rm com} = 150$  K. The corresponding first-order phase transition may again indicate strong half-metallic magnetism and be important for a combined description of the non-topological ferromagnetic and topological transitions.

The research was carried out within the state assignment of FASO of Russia (theme "Flux" # AAAA-A18-118020190112-8 and theme "Quantum" # AAAA-A18-118020190095-4).

This is an excerpt of the article "Topological phase transitions in strongly correlated systems: application to  $Co_3Sn_2S_2$ ". Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364021210013

- M. A. Kassem, *PhD Dissertation*, Kyoto Univ., Kyoto (2016).
- Y. Yanagi, J. Ikeda, K. Fujiwara, K. Nomura, A. Tsukazaki, and M.-T. Suzuki, Phys. Rev. B 103, 205112 (2021).
- 3. G. E. Volovik, Phys.-Uspekhi 61, 89 (2018).
- A. Rossi, V. Ivanov, S. Sreedhar, A. L. Gross, Z. Shen, E. Rotenberg, A. Bostwick, Ch. Jozwiak, V. Taufour, S. Y. Savrasov, and I.M. Vishik, Phys. Rev. B 104, 155115 (2021).
- V. Yu. Irkhin and M. I. Katsnelson, J. Phys.: Cond. Mat. 2, 7151 (1990).
- L. Muechler, E. Liu, J. Gayles, Q. Xu, C. Felser, and Y. Sun, Phys. Rev. B 101, 115106 (2020).
- 7. V. Yu. Irkhin, Yu. N. Skryabin, JETP 133, 116 (2021).
- D.-H. Shin, J.-H. Jun, S.-E. Lee, and M.-H. Jung, arXiv:2105.03892.

#### Cu-site disorder in $CuAl_2O_4$ as studied by XPS spectroscopy

 $I. S. Zhidkov^{+*1)}, A. A. Belik^{\times}, A. I. Kukharenko^{+}, S. O. Cholakh^{+}, L. S. Taran^{*}, A. Fujimori^{\circ}, S. V. Streltsov^{*+}, E. Z. Kurmaev^{*+}$ 

<sup>+</sup>Institute of Physics and Technology, Ural Federal University, 620002 Yekaterinburg, Russia

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

<sup>×</sup> International Center for Materials Nanoarchitectonics (WPI-MANA), National Institute for Materials Science (NIMS), Namiki 1-1, Tsukuba, 305-0044, Ibaraki, Japan

<sup>o</sup>Department of Applied Physics, Waseda University, Shinjuku-ku, 169-8555 Tokyo, Japan

Submitted 21 September 2021 Resubmitted 30 September 2021 Accepted 30 September 2021

#### DOI: 10.31857/S1234567821210102

The copper aluminate (CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) find a various applications in modern techniques [1-3]. Therefore much attention is paid to fundamental properties that are determined primarily by its crystal structure of CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. In CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> spinel the Cu<sup>2+</sup>-ions must be located in the center of A-tetrahedral sites and non-magnetic Al<sup>3+</sup> ions are in the center of octahedral B-sites. In this case, the Cu<sup>2+</sup> d-states split into  $t_2$  and e states. The degeneracy of  $t_{2g}$ -states can be removed due to spin-orbit coupling (SOC) or Jahn–Teller distortion, which lowers the  $T_d$  symmetry of the crystal field. As a rule, the experimental results show that the crystal structure of CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> at atmospheric pressure is cubic without any signs of tetragonal distortion [2].

However, possible stabilization of the cubic phase inevitable leads to formation of the spin-orbit entangled  $J_{\text{eff}} = 1/2$  state and strong exchange anisotropy, which may result in the spin-liquid ground state [4, 5]. This hypothesis was used in particular to explain absence of the long-range magnetic order in CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> even at very low temperature [5]. Alternative explanation is based on presence of intrinsic disorder between tetra and octa sites, which prevents onset of antiferromagnetism.

It is no coincidence that in some early works it was assumed that about 30 % of  $Cu^{2+}$  ions occupy octahedral positions [2, 3]. In this connection, of particular interest is the use of local spectral methods sensitive to the nearest surrounding of the exciting atoms. In the present paper we applied the of X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) which is an element- and a site-selective probe.

CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> was prepared from a stoichiometric mixture of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (99.9%) and CuO (99.9%). The mixture was pressed into a pellet and annealed on Pt foil at 1193 K for 84 h and at 1293 K for 38 h in air with several intermediate grindings. PHI 5000 VersaProbe spectrometer were used for XPS measurements. X-ray spot size was 200  $\mu$ m and Al K $\alpha$  (1486 eV) was used. The calculations of CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> were carried out using the Vienna ab initio simulation package [6].

Figure 1 displays XPS  $\operatorname{Cu} 2p$  (a) and Auger  $\operatorname{Cu} LMM$ (b) spectra of CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. The XPS Cu  $2p_{3/2}$  spectrum has two peak structure ( $Cu_1$  and  $Cu_2$ ) and is shifted to high-energy side with respect to that of Cu and  $Cu_2O$ . Another feature of bivalent copper in  $CuAl_2O_4$  is the presence of a CT (charge transfer) satellite S at the same binding energy as in CuO arising from multiplet splitting effects due to the interaction between the Cu 2pcore hole and the  $3d^9$  electronic configuration [7]. The Auger Cu LMM spectra also provide the evidence that the main oxidation state of copper is 2+ [8]. It is generally believed that  $CuAl_2O_4$  at atmospheric pressure is in the cubic phase without any signs of tetragonal distortion [5]. The spin-orbit coupling can be responsible for suppression of the Jahn-Teller distortions and absence of corresponding splitting in the  $Cu-t_2$  states [9]. However, the local symmetry breaking induced by Jahn–Teller distortions cannot be completely ruled out, since for this the spin-orbit coupling constant  $\lambda$  must exceed some critical value [10].

The energy difference of  $Cu_1$  and  $Cu_2$  peaks in XPS Cu 2p spectra is found around 1.2 eV, which is much larger than possible splitting due to both the spin-orbit coupling or the crystal-field splitting because of the Jahn-Teller distortions. In fact this energy difference

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: i.s.zhidkov@urfu.ru



Fig. 1. (Color online) XPS Cu 2p (a) and Auger Cu LMM (b) spectra of CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. The reference spectra are taken from [7,8]

is comparable with value fixed in splitting of Cu L XAS spectra [11] and the ratio of their intensities suggests that the Cu<sub>1</sub> and Cu<sub>2</sub> peaks correspond to the contributions of tetra- and octa-sites, respectively and estimates degree of disorder in 30 %. Therefore, we can conclude that the independent site-selective and element-selective X-ray measurements confirm a finite site-disorder in CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.

The comparison of the obtained calculations results shows that taking into account the spin-orbit interaction does not lead to significant changes in the distribution of the total density of occupied states.

In conclusion, our results show the presence of a substantial Cu-Al disorder by the XPS measurements. This disorder may affect formation of an antiferromagnetic order and development of static Jahn–Teller distortions.

The DFT calculations are supported Russian Science Foundation (Project 20-62-46047). The XPS was carried out within the state assignments # AAAA-A18-118020190098-5 and FEUZ 2020-0060. I.S. Zhidkov thank grant program of President of Russia (MK-989.2020.2).

This is an excerpt of the article "Cu-site disorder in  $CuAl_2O_4$  as studied by XPS spectroscopy". Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364021210062

- Y. H. Huang, S. F. Wang, A. P. Tsai, and S. Kameoka, Ceram. Int. 40, 4541 (2014).
- W. Lv, B. Liu, Q. Qiu, F. Wang, Z. Luo, P. Zhang, and S. Wei, J. Alloys Compd. 479, 480 (2009).
- D. Ding, W. Cai, M. Long, H. Wu, and Y. Wu, Sol. Energy Mater. Sol. Cells 94, 1578 (2010).
- S.A. Nikolaev, I.V Solovyev, A.N. Ignatenko, V.Y. Irkhin, and S.V. Streltsov, Phys. Rev. B 98, 201106 (2018).
- R. Nirmala, K.-H. Jang, H. Sim, H. Cho, J. Lee, N.-G. Yang, S. Lee, R. M. Ibberson, K. Kakurai, M. Matsuda, S.-W. Cheong, V. V. Gapontsev, S. V. Streltsov, and J.-G. Park, J. Phys.: Condens. Matter. 29, 13LT01 (2017).
- 6. G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B 47, 558 (1993).
- 7. M.C. Biesinger, Surf. Interface Anal. 49, 1325 (2017).
- M. C. Biesinger, L. W. M. Lau, A. R. Gerson, and R. S. C. Smart, Appl. Surf. Sci. 257, 887 (2010).
- C. H. Kim, S. Baidya, H. Cho, V. V. Gapontsev, S. V. Streltsov, D. I. Khomskii, J.-G. Park, A. Go, and H. Jin, Phys. Rev. B 100, 161104 (2019).
- S.V. Streltsov and D. I. Khomskii, Phys. Rev. X 10, 031043 (2020).
- H. Cho, C.H. Kim, Y. Lee, K. Komatsu, B.G. Cho, D.Y. Cho, T. Kim, C. Kim, Y. Kim, T.Y. Koo, Y. Noda, H. Kagi, D.I. Khomskii, D. Seoung, and J.G. Park, Phys. Rev. B 103, L081101 (2021).

### РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

## ПИСЬМА

#### B

## ЖУРНАЛ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

#### том 114

Выпуск 10 25 ноября 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

<sup>©</sup> Российская академия наук, 2021

<sup>©</sup> Редколлегия журнала "Письма в ЖЭТФ" (составитель), 2021

#### Нарушение четности в рассеянии протона на углероде и кислороде

А. И. Мильштей $H^{+*}$ , Н. Н. Николае $B^{\times 1}$ , С. Г. Сальнико $B^{+*}$ 

+ Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

\*Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

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

Поступила в редакцию 3 ноября 2021 г. После переработки 3 ноября 2021 г. Принята к публикации 3 ноября 2021 г.

Обсуждаются эффекты нарушения пространственной четности при взаимодействии релятивистских поляризованных протонов с ядрами <sup>12</sup>С и <sup>16</sup>О. В рамках подхода Глаубера получены оценки Р-нечетных асимметрий в полном и упругом сечениях рассеяния, сечении диссоциации и в неупругом сечении рассеяния с рождением мезонов. Наши расчеты показывают, что асимметрия должна быть наиболее заметна в упругом сечении и в сечении диссоциации.

DOI: 10.31857/S1234567821220018

Введение. В настоящее время эффекты нарушения пространственной четности в рассеянии лептонов на нуклонах при не очень больших энергиях детально изучены как теоретически, так и экспериментально. Полученные экспериментальные данные хорошо описываются в рамках Стандартной модели. Гораздо меньше существует экспериментальной информации о нарушении четности в рассеянии нуклона на нуклоне, нуклоне на ядре и ядра на ядре [1– 7]. Теоретические предсказания для этих процессов сильно отличаются [8-18]. Поляризационные эксперименты на коллайдере NICA [19, 20] могут внести важный вклад в понимание явления нарушения четности в нуклонном секторе. Возможные постановки экспериментов на NICA по поиску нарушения четности при взаимодействии продольно поляризованных протонов или дейтронов с неполяризованной мишенью обсуждались в работах [21, 22]. Оценки Рнечетной асимметрии в нуклон-нуклонном рассеянии в области энергий NICA даны в нашей недавней работе [23], а в протон-дейтронном рассеянии в работе [24].

Полное сечение нуклон-нуклонного рассеяния является суммой сечения упругого рассеяния и сечения неупругого рассеяния, сопровождаемого рождением мезонов. В полное сечение рассеяния нуклонов на ядре и ядра на ядре дают также вклад процессы квазиупругого рассеяния, сопровождаемые вылетом нуклонов или возбуждением ядер. Поскольку эффекты нарушения четности малы, то при планировании экс-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

периментов необходимо найти процессы, в которых эти эффекты являются усиленными. С экспериментальной точки зрения удобны плотные ядерные мишени, такие как углерод или вода [4], и несомненный интерес представляет исследование эффектов нарушения пространственной четности при рассеянии поляризованных протонов на ядрах с точки зрения возможного усиления Р-нечетного эффекта количеством нуклонов в ядре. В этой работе мы исследуем нарушение пространственной четности в рассеянии поляризованного протона на ядрах углерода <sup>12</sup>С и кислорода <sup>16</sup>О.

# Эффекты слабого взаимодействия в протон-ядерном рассеянии.

В нашей работе мы используем подход Глаубера [25–27]. В этом подходе амплитуда T упругого рассеяния протона на ядрах <sup>12</sup>С и <sup>16</sup>О в системе, где и протон и ядро являются релятивистскими частицами, имеет вид (здесь и далее  $\hbar = c = 1$ )

$$T(\mathbf{q}_{\perp}) = -2i \int d^2 \rho \, e^{-i\mathbf{q}_{\perp} \cdot \boldsymbol{\rho}} \Big[ 1 - e^{-\mathcal{T}(\boldsymbol{\rho})} \Big],$$
  
$$\mathcal{T}(\boldsymbol{\rho}) = \frac{i}{2} \int \frac{d^2 Q_{\perp}}{(2\pi)^2} \times$$
  
$$\times e^{i\mathbf{Q}_{\perp} \cdot \boldsymbol{\rho}} S(\mathbf{Q}_{\perp}) \Big[ T^{pp}(\mathbf{Q}_{\perp}) + T^{pn}(\mathbf{Q}_{\perp}) \Big].$$
(1)

Здесь  $T^{pp}(\mathbf{Q}_{\perp})$  и  $T^{pn}(\mathbf{Q}_{\perp})$  – амплитуды протон-протонного и протон-нейтронного рассеяния,  $S(\mathbf{Q}_{\perp})$  – формфактор, который в модели оболочек равен

$$S(\mathbf{Q}_{\perp}) = \left[ Z - \frac{(Z-2)}{6} Q_{\perp}^2 a^2 \right] \exp\left(-\frac{1}{4} Q_{\perp}^2 a^2\right), \quad (2)$$

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: nikolaev@itp.ac.ru

где Z – заряд соответствующего ядра. Для углерода мы использовали значение  $a = 1.6 \, \text{фм}$ , а для кислорода  $a = 1.7 \, \text{фм}$ . Упругое сечение  $\sigma_{\text{el}}$  и полное сечение  $\sigma_{\text{tot}}$  рассеяния протона на ядре определяются формулами

$$\sigma_{\rm el} = \int \frac{d^2 q}{(4\pi)^2} |T(\mathbf{q}_{\perp})|^2 =$$
  
=  $2 \int d^2 \rho \Big[ 1 - \operatorname{Re} e^{-\mathcal{T}(\boldsymbol{\rho})} - \frac{1}{2} \Big( 1 - e^{-2\operatorname{Re}\mathcal{T}(\boldsymbol{\rho})} \Big) \Big],$   
 $\sigma_{\rm tot} = -\operatorname{Im} T(0) = 2 \int d^2 \rho \Big[ 1 - \operatorname{Re} e^{-\mathcal{T}(\boldsymbol{\rho})} \Big].$  (3)

Для сечения диссоциации  $\sigma_{\rm dis}$  с возбуждением или вылетом нуклонов из ядра и сечения  $\sigma_{\rm inel}$  с рождением мезонов имеем

$$\sigma_{\rm dis} = \int d^2 \rho \Big[ e^{-2\operatorname{Re} \tau(\rho)} \Big( e^{\Omega(\rho)} - 1 \Big) \Big],$$
  

$$\sigma_{\rm inel} = \int d^2 \rho \Big[ 1 - e^{-2\operatorname{Re} \tau(\rho)} e^{\Omega(\rho)} \Big],$$
  

$$\Omega(\rho) = \frac{1}{4} \iint \frac{d^2 Q_{\perp}}{(2\pi)^2} \frac{d^2 Q'_{\perp}}{(2\pi)^2} e^{i(\mathbf{Q}_{\perp} - \mathbf{Q}'_{\perp}) \cdot \rho} S(\mathbf{Q}_{\perp} - \mathbf{Q}'_{\perp})$$
  

$$\times \Big[ T^{pp}(\mathbf{Q}_{\perp}) T^{pp *}(\mathbf{Q}'_{\perp}) + T^{pn}(\mathbf{Q}_{\perp}) T^{pn *}(\mathbf{Q}'_{\perp}) \Big]. \quad (4)$$

Заметим, что  $\sigma_{\text{tot}} = \sigma_{el} + \sigma_{\text{dis}} + \sigma_{inel}$ .

Представим амплитуды  $T^{pp}(\mathbf{q}_{\perp})$  и  $T^{pn}(\mathbf{q}_{\perp})$  в виде суммы вкладов сильного и слабого взаимодействий,  $T^{pN}(\mathbf{q}_{\perp}) = T_s^{pN}(\mathbf{q}_{\perp}) + T_W^{pN}(\mathbf{q}_{\perp})$ , где N = p, n. В области энергий NICA можно использовать следующую параметризацию для вклада сильных взаимодействий [28]:

$$T_s^{pN}(\mathbf{q}_{\perp}) = -\delta_{\lambda_1\lambda_3}\delta_{\lambda_2\lambda_4}(\epsilon+i)\,\sigma_s\exp\left(-\frac{1}{2}Bq_{\perp}^2\right),$$
  

$$\epsilon = -0.5, \quad \sigma_s = 50\,\mathrm{M6}, \quad B = 9\,\mathrm{\Gamma}\mathrm{s}\mathrm{B}^{-2}, \tag{5}$$

где  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  – спиральности начальных частиц,  $\lambda_3$  и  $\lambda_4$  – соответствующие спиральности конечных частиц ( $\lambda_i = \pm 1$ ). Используя эту параметризацию, находим вклад сильных взаимодействий в сечения протон-ядерного рассеяния:

$$\begin{split} \mathcal{T}_{s}(\boldsymbol{\rho}) &= (1 - i\epsilon) \, \Phi(\rho), \quad \Omega_{s}(\boldsymbol{\rho}) = \gamma \, \Phi(\rho), \\ \Phi(\rho) &= \frac{\sigma_{s}}{\pi R^{2}} \Big[ Z - \frac{2a^{2}(Z-2)}{3R^{2}} \Big( 1 - \frac{\rho^{2}}{R^{2}} \Big) \Big] \, e^{-\rho^{2}/R^{2}}, \\ R^{2} &= a^{2} + 2B, \quad \gamma = \frac{(1 + \epsilon^{2})\sigma_{s}}{8\pi B} = 0.69, \\ \sigma_{s,\text{el}} &= 2 \int d^{2}\rho \Big[ 1 - e^{-\Phi(\rho)} \cos(\epsilon \Phi(\rho)) - \frac{1}{2} \Big( 1 - e^{-2\Phi(\rho)} \Big) \Big] \\ \sigma_{s,\text{tot}} &= 2 \int d^{2}\rho \Big[ 1 - e^{-\Phi(\rho)} \cos(\epsilon \Phi(\rho)) \Big], \\ \sigma_{s,\text{dis}} &= \int d^{2}\rho \Big[ e^{-(2 - \gamma) \, \Phi(\rho)} - e^{-2 \, \Phi(\rho)} \Big], \end{split}$$

$$\sigma_{s,\text{inel}} = \int d^2 \rho \Big[ 1 - e^{-(2-\gamma) \Phi(\rho)} \Big]. \tag{6}$$

Эффекты нарушения четности являются следствием интерференции амплитуды слабого взаимодействия и амплитуды сильного взаимодействия. Они линейны по вкладу  $T_W^{pN}$  слабых взаимодействий в амплитуду протон-нуклонного рассеяния, который был рассмотрен нами в работе [23]:

$$\begin{split} T_W^{pp}(\mathbf{q}_{\perp}) &= \lambda_1 \delta_{\lambda_1 \lambda_2} \delta_{\lambda_1 \lambda_3} \delta_{\lambda_1 \lambda_4} t_W^{pp}(\mathbf{q}_{\perp}), \\ T_W^{pn}(\mathbf{q}_{\perp}) &= \lambda_1 \delta_{\lambda_1 \lambda_3} \delta_{\lambda_2 \lambda_4} t_W^{pn}(\mathbf{q}_{\perp}), \\ t_W^{pp}(\mathbf{q}_{\perp}) &= c_{pp} R(\mathbf{q}_{\perp}), \ t_W^{pn}(\mathbf{q}_{\perp}) = c_{pn} F^2(\mathbf{q}_{\perp}), \\ F(\mathbf{q}_{\perp}) &= \frac{\Lambda^4}{(\Lambda^2 + q_{\perp}^2)^2}, \\ R(\mathbf{q}_{\perp}) &= \frac{4}{\pi} \int \frac{F^2(\mathbf{k}_{\perp}) d^2 k_{\perp}}{(\mathbf{k}_{\perp} - \mathbf{q}_{\perp})^2 + m_{\rho}^2}, \\ c_{pp} &= 5 \text{ H6}, \ c_{pn} &= -7.8 \text{ H6}, \\ \Lambda &= 1 \Gamma \text{>B}, \ m_{\rho} = 770 \text{ M>B}. \end{split}$$
(7)

Соответствующий вклад  $\mathcal{T}_W(\rho)$  в функцию  $\mathcal{T}(\rho)$ в формуле (1) является чисто мнимой величиной,  $\mathcal{T}_W(\rho) = i\xi(\rho)$ , где

$$\xi(\rho) = \frac{1}{2} \int \frac{d^2 Q_{\perp}}{(2\pi)^2} e^{i\mathbf{Q}_{\perp}\cdot\boldsymbol{\rho}} \times \\ \times \left[\frac{1}{2} t_W^{pp}(\mathbf{Q}_{\perp}) + t_W^{pn}(\mathbf{Q}_{\perp})\right] S(\mathbf{Q}_{\perp}).$$
(8)

Здесь множитель 1/2 перед  $t_W^{pp}(\mathbf{Q}_{\perp})$  связан с тем, что амплитуда слабого взаимодействия  $T_W^{pp}$  отлична от нуля только для протонов ядра, имеющих ту же спиральность, что и налетающий протон ( $\lambda_2 = \lambda_1$ ).

Поправка  $\Omega_W(\rho)$  в функцию  $\Omega(\rho)$  в формуле (4) за счет слабых взаимодействий имеет вид

$$\Omega_W(\boldsymbol{\rho}) = -\frac{1}{2}\epsilon\sigma_s \times \\ \times \iint \frac{d^2 Q_\perp}{(2\pi)^2} \frac{d^2 Q'_\perp}{(2\pi)^2} e^{i(\mathbf{Q}_\perp - \mathbf{Q}'_\perp) \cdot \boldsymbol{\rho}} S(\mathbf{Q}'_\perp - \mathbf{Q}_\perp) \times \\ \times \left[\frac{1}{2} t_W^{pp}(\mathbf{Q}'_\perp) + t_W^{pn}(\mathbf{Q}'_\perp)\right] \exp\left(-\frac{1}{2} B Q_\perp^2\right).$$
(9)

В результате находим поправки к сечениям за счет слабых взаимодействий:

$$\sigma_{W,\,\text{el}} = \sigma_{W,\,\text{tot}} = -2 \int d^2 \rho \, e^{-\Phi(\rho)} \sin(\epsilon \Phi(\rho)) \xi(\rho),$$
  
$$\sigma_{W,\,\text{dis}} = -\sigma_{W,\,\text{inel}} = \int d^2 \rho \, e^{-(2-\gamma)\Phi(\rho)} \Omega_W(\rho). \quad (10)$$

**Обсуждение результатов.** Перейдем теперь к численным оценкам сечений и соответствующих

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

633

асимметрий  $\mathcal{A} = \sigma_W / \sigma_s$  при рассеянии поляризованного протона с  $\lambda_1 = 1$  на ядрах углерода и кислорода. Используя приведенные выше формулы, находим для <sup>12</sup>С:

$$\begin{aligned} \sigma_{s,\,\text{cd}}^{p\,\text{C}} &= 410\,\text{MG}, \quad \sigma_{W,\,\text{tot}}^{p\,\text{C}} = -3.7\,\text{HG}, \quad \mathcal{A}_{\text{tot}}^{p\,\text{C}} = -0.9\cdot10^{-8}, \\ \sigma_{s,\,\text{el}}^{p\,\text{C}} &= 126\,\text{MG}, \quad \sigma_{W,\,\text{el}}^{p\,\text{C}} = -3.7\,\text{HG}, \quad \mathcal{A}_{el}^{p\,\text{C}} = -2.9\cdot10^{-8}, \\ \sigma_{s,\,\text{inel}}^{p\,\text{C}} &= 228\,\text{MG}, \quad \sigma_{W,\,\text{inel}}^{p\,\text{C}} = 1\,\text{HG}, \quad \mathcal{A}_{\text{inel}}^{p\,\text{C}} = 4.4\cdot10^{-9}, \\ \sigma_{s,\,dis}^{p\,\text{C}} &= 56\,\text{MG}, \quad \sigma_{W,\,\text{dis}}^{p\,\text{C}} = -1\,\text{HG}, \quad \mathcal{A}_{\text{dis}}^{p\,\text{C}} = -1.8\cdot10^{-8}. \end{aligned}$$

$$(11)$$

Для <sup>16</sup>О получаем:

$$\begin{aligned} \sigma_{s,\,\mathrm{ed}}^{p\,\mathrm{O}} &= 517\,\mathrm{M6}, \ \sigma_{W,\,\mathrm{tot}}^{p\,\mathrm{O}} &= -4.8\,\mathrm{H6}, \ \mathcal{A}_{\mathrm{tot}}^{p\,\mathrm{O}} &= -0.9\cdot10^{-8} \\ \sigma_{s,\,\mathrm{el}}^{p\,\mathrm{O}} &= 169\,\mathrm{M6}, \ \sigma_{W,\,\mathrm{el}}^{p\,\mathrm{O}} &= -4.8\,\mathrm{H6}, \ \mathcal{A}_{\mathrm{el}}^{p\,\mathrm{O}} &= -2.7\cdot10^{-8} \\ \sigma_{s,\,\mathrm{inel}}^{p\,\mathrm{O}} &= 284\,\mathrm{M6}, \ \sigma_{W,\,\mathrm{inel}}^{p\,\mathrm{O}} &= 1.2\,\mathrm{H6}, \ \mathcal{A}_{\mathrm{inel}}^{p\,\mathrm{O}} &= 4.2\cdot10^{-9}, \\ \sigma_{s,\,\mathrm{dis}}^{p\,\mathrm{O}} &= 64\,\mathrm{M6}, \ \sigma_{W,\,\mathrm{dis}}^{p\,\mathrm{O}} &= -1.2\,\mathrm{H6}, \ \mathcal{A}_{\mathrm{dis}}^{p\,\mathrm{O}} &= -1.8\cdot10^{-8} \end{aligned}$$

$$(12)$$

Видно, что асимметрия наиболее заметна в упругом сечении и в сечении диссоциации. Как было отмечено нами в [23, 24] при анализе нуклон-нуклонного и нуклон-дейтронного взаимодействия, подавление асимметрии в неупругом рассеянии есть следствие условия унитарности. Поэтому с экспериментальной точки зрения представляется выгодным измерение асимметрии или в упругом рассеянии, или в сумме упругого сечения и сечения диссоциации, для которой  $\mathcal{A}_{el+dis}^{pC} \approx \mathcal{A}_{el+dis}^{pO} = -2.6 \cdot 10^{-8}$ .

Общий вывод из сравнения *p*С и *p*О рассеяния с изученными в [23, 24] процессами pN и pd рассеяния следующий. Ожидаемые Р-нечетные асимметрии в сечениях *p*С и *p*О рассеяния очень близки друг к другу и отличаются менее, чем на 10 % от аналогичных величин в рассеянии протонов на неполяризованных дейтронах. Это происходит из-за того, что вклады сильного и слабого взаимодействий в сечения рассеяния протонов на ядрах растут примерно одинаково с ростом числа нуклонов в ядре. Исключением является квазиупругое рассеяние, в котором мы предсказываем усиление асимметрии в pC и pO взаимодействии почти вдвое по сравнению с *pd* взаимодействием. Как и в случае дейтронной мишени, протонная и нейтронная поправки к сечениям за счет слабого взаимодействия частично компенсируют друг друга, так что в рассеянии на ядрах Р-нечетная асимметрия меньше, чем в *pp* рассеянии. Однако с экспериментальной точки зрения и протонная (водородная), и дейтериевая мишени могут быть менее удобны из-за низкой плотности.

Заключение. Мы проанализировали эффекты несохранения четности в процессах рассеяния поляризованных протонов на ядрах <sup>12</sup>С и <sup>16</sup>О при энергиях коллайдера NICA. Используя подход Глаубера, мы получили оценки для поправок за счет слабого взаимодействия к полному, упругому, неупругому сечениям и сечению диссоциации, а также соответствующие спиновые асимметрии, см. (11) и (12). Согласно нашим результатам, предпочтительными являются эксперименты по измерению асимметрии в сечении  $\sigma_{\rm el}$  или  $\sigma_{\rm el+dis}$ . Полученные результаты должны учитываться при планировании экспериментов на коллайдере NICA.

Работа выполнена при поддержке гранта Российскийого фонда фундаментальных исследований #18-02-40092 МЕГА.

- J. M. Potter, J. D. Bowman, C. F. Hwang, J. L. McKibben, R. E. Mischke, D. E. Nagle, P. G. Debrunner, H. Frauenfelder, and L. B. Sorensen, Phys. Rev. Lett. 33, 1307 (1974).
- D. E. Nagle, J. D. Bowman, C. Hoffman, J. McKibben, R. Mischke, J. M. Potter, H. Frauenfelder, and L. Sorenson, AIP Conf. Proc. 51, 224 (1978).
- R. Balzer, R. Henneck, Ch. Jacquemart, J. Lang, M. Simonius, W. Haeberli, Ch. Weddigen, W. Reichart, and S. Jaccard, Phys. Rev. Lett. 44, 699 (1980).
- N. Lockyer, T. A. Romanowski, J. D. Bowman, C. M. Hoffman, R. E. Mischke, D. E. Nagle, J. M. Potter, R. L. Talaga, E. C. Swallow, D. M. Alde, D. R. Moffett, and J. Zyskind, Phys. Rev. D **30**, 860 (1984).
- V. Yuan, H. Frauenfelder, R. W. Harper, J. D. Bowman, R. Carlini, D. W. MacArthur, R. E. Mischke, D. E. Nagle, R. L. Talaga, and A. B. McDonald, Phys. Rev. Lett. 57, 1680 (1986).
- P. D. Eversheim, W. Schmitt, S. Kuhn, F. Hinterberger, P. von Rossen, J. Chlebek, R. Gebel, U. Lahr, B. von Przeworski, M. Wiemer, and V. Zell, Phys. Lett. B 256, 11 (1991).
- A. R. Berdoz, J. Birchall, J. B. Bland et al. (Collaboration), Phys. Rev. C 68, 034004 (2003).
- V. Brown, E. Henley, and F. Krejs, Phys. Rev. C 9, 935 (1974).
- E. M. Henley and F. R. Krejs, Phys. Rev. D 11, 605 (1975).
- В.Б. Копелиович, Л.Л. Франкфурт, Письма в ЖЭТФ 22, 601 (1975).
- L. L. Frankfurt and V. B. Kopeliovich, Nucl. Phys. B 103, 360 (1976).
- B. Desplanques, J. Donoghue, and B. Holstein, Ann. Phys. (N.Y) **124**, 449 (1980).
- L. L. Frankfurt and M. I. Strikman, Phys. Lett. B 107, 99 (1981).
- 14. A. Barroso and D. Tadić, Nucl. Phys. A 364, 194 (1981).
- 15. T. Oka, Prog. Theor. Phys. 66, 977 (1981).
- G. Nardulli and G. Preparata, Phys. Lett. B 117, 445 (1982).

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

- T. Goldman and D. Preston, Nucl. Phys. B 217, 61 (1983).
- 18. B.G. Zakharov, Yad. Fiz. 42, 756 (1985).
- V. D. Kekelidze, R. Lednicky, A. Matveev, I. N. Meshkov, A. S. Sorin, and G. V. Trubnikov, Proc. of 3rd Large Hadron Collider Physics Conf. (LHCP 2015), 565 (2016).
- I. Savin, A. Efremov, D. Peshekhonov, A. Kovalenko, O. Teryaeva, O. Shevchenko, A. Nagajcev, A. Guskov, V. Kukhtin, and N. Toplilin, EPJ Web Conf. 85, 02039 (2015).
- И. А. Кооп, А.И. Мильштейн, Н.Н. Николаев, А.С. Попов, С.Г. Сальников, П.Ю. Шатунов, Ю.М. Шатунов, Письма в ЭЧАЯ, 17, 122 (2020) [Phys. Part. Nucl. Lett. 17, 154 (2020)].
- 22. I.A. Koop, A.I. Milstein, N.N. Nikolaev, A.S. Popov,

S.G. Salnikov, P.Yu. Shatunov, and Yu.M. Shatunov, Phys. Part. Nucl. **52**, 549 (2021).

- А.И. Мильштейн, Н.Н. Николаев, С.Г. Сальников, Письма в ЖЭТФ, 111, 215 (2020) JETP Lett. 111, 197 (2020)].
- А.И. Мильштейн, Н.Н. Николаев, С.Г. Сальников, Письма в ЖЭТФ, 112, 352 (2020) [JETP Lett. 112, 332 (2020)].
- 25. R. J. Glauber, Phys. Rev. 100, 242 (1955).
- 26. V. Franco and R. J. Glauber, Phys. Rev. 142, 1195 (1966).
- R. J. Glauber and G. Matthiae, Nucl. Phys. B 21, 135 (1970).
- J. Ryckebusch, D. Debruyne, P. Lava, S. Janssen, B. van Overmeire, and T. van Cauteren, Nucl. Phys. A 728, 226 (2003).

### Прямое измерение корреляционной функции оптико-терагерцовых бифотонов

А. А. Леонтьев<sup>1)</sup>, К. А. Кузнецов, П. А. Прудковский, Д. А. Сафроненков, Г. Х. Китаева

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

Поступила в редакцию 18 октября 2021 г. После переработки 18 октября 2021 г. Принята к публикации 19 октября 2021 г.

Впервые измерена корреляционная функция второго порядка, характеризующая квантовую корреляцию оптического и терагерцового фотонов, генерируемых при спонтанном параметрическом рассеянии света. Предложена схема эксперимента, основанная на анализе аналоговых показаний терагерцового и оптического детекторов, обсуждаются результаты применения различных подходов к исключению влияния шумов электронной и тепловой природы на измеряемый уровень корреляций. Полученные результаты открывают возможности для продвижения в терагерцовый диапазон квантово-оптических технологий, таких как квантовая калибровка детекторов, создание однофотонных источников, построение изображений с использованием однопиксельных детекторов.

DOI: 10.31857/S123456782122002X

I. Введение. Спонтанное параметрическое рассеяние (СПР) [1] – один из наиболее известных нелинейно-оптических процессов, способных генерировать квантово-коррелированные пары фотонов (бифотоны). Парные фотоны, частоты которых лежат в оптическом диапазоне, широко используются в современных квантовых технологиях, от квантовой связи [2], вычислений [3], метрологии [4] до различных типов квантовой спектроскопии, визуализации и зондирования [5-8]. Вместе с тем, процесс СПР способен генерировать бифотоны и в других спектральных диапазонах. Большой интерес для продвижения квантовых технологий в терагерцовый (ТГц) диапазон частот представляют так называемые оптико-терагерцовые бифотоны, генерируемые при сильно-невырожденном по частотам СПР [9–13]. При этом каждый бифотон состоит из одного фотона оптической ("сигнальной") частоты, близкой к частоте лазерной накачки нелинейного процесса, и одного фотона терагерцовой ("холостой") частоты, имеющего почти на 2 порядка меньшую энергию. В последнее время был опубликован ряд пионерских работ по применению оптико-терагерцовых бифотонных полей в ТГц спектроскопии [11, 14, 15], квантовом зондировании [16,17] и фотометрии [18,19]. Однако до сих пор весь экспериментальный прогресс в этом направлении был связан с регистрацией излучения только оптического сигнала, частотноугловые характеристики которого связаны с пара-

метрами его ТГц спутника. Одна из сдерживающих причин – большие трудности в создании ТГц приемников, которые могут работать в режиме однофотонного детектирования и потенциально позволяют использовать высокоскоростные схемы совпадений. На данный момент известно, что такие детекторы существуют в очень ограниченном виде. Так, в [20] показана работа ТГц детектора на тонких пленках GaAs/AlGaAs с квантовыми точками. Данный детектор способен оперировать в режиме счета фотонов с рекордно низким значением эквивалентной мощности шума NEP < 10-20 Вт · Гц<sup>-0.5</sup>. Однако детекторы этого типа работают при предельно низких температурах ( $\sim 10^{-1} - 10^{-2}$  K). Также нерешенной проблемой является создание детектора с разрешением числа фотонов в ТГц диапазоне, поскольку изменения фототока, связанные с детектированием дополнительного ТГц фотона, обычно слишком малы [21]. Измерения ТГц составляющей поля СПР были проведены нами впервые сравнительно недавно и опубликованы в работах [22, 23]. Была предложена схема, в которой достаточно слабые потоки ТГц фотонов, генерируемые в условиях СПР, детектировались с помощью высокочувствительного аналогового детектора, ТГц сверхпроводникового болометра Scontel [24]. Нижний предел значений коэффициента параметрического усиления составил 0.3; ниже этого уровня измеряемый сигнал был неразличим на фоне собственных электронных шумов детектора и сигнала от шумового теплового излучения кристалла, находящегося при температуре 4.8 К.

 $<sup>^{1)}</sup>$ e-mail: aa.leontjev@physics.msu.ru

Вместе с тем, для большого числа квантовооптических приложений, обладающих большими перспективами в ТГц диапазоне, таких как: калибровка квантовой эффективности и спектральной чувствительности детекторов [25, 26], получение изображений с помощью однопиксельного детектора [6,8], создание источников единичных фотонов [1,2] и других, важно непосредственное измерение нормированной корреляционной функции второго порядка  $q^{(2)} = \langle N_i N_s \rangle / (\langle N_i \rangle \langle N_s \rangle)$  для бифотонного поля (*N* – числа фотонов; здесь и далее индексы *i* и *s* относятся к холостому и сигнальному каналам соответственно). Эта характеристика обычно рассматривается как количественная мера уровня корреляций, и определяется в оптике на основе измерения скоростей счета однофотонных детекторов и схемы совпадения их выходных импульсов. В принципе, наличие однофотонного детектора не является необходимым условием измерения  $g^{(2)}$ , ведь именно по показаниям аналоговых детекторов в интерферометре Хэнбери Брауна и Твисса определялась эта величина в самых ранних работах [27]. В работе [12] теоретически анализируется подход к определению  $g^{(2)}$  оптико-терагерцового бифотонного поля на основании данных о статистике токовых показаний детекторов. Однако при этом не учитывается возможное влияние шумовых показаний детекторов, которое может существенным образом снизить получаемый на практике результат. Экспериментальный анализ различных путей обработки первичных статистических данных был проведен в следующей работе [28], но на примере измерения  $q^{(2)}$  оптических бифотонов. Эта величина была сначала прокалибрована по стандартной методике, доступной именно в оптике, а потом был найден способ обработки аналоговых сигналов оптических детекторов, исключающий влияние шумов. Полученные результаты делают возможным измерение достаточно слабых квантовых добавок к классическому уровню  $q^{(2)}$  и открывают пути измерения оптико-терагерцовых корреляций.

В настоящей работе мы сообщаем о результатах первых прямых измерений корреляционных функций оптико-терагерцового бифотонного поля. В разделе II описана оригинальная экспериментальная установка, в которой детектором оптического излучения являлся однофотонный лавинный фотодиод, а детектором ТГц излучения – аналоговый ТГц болометр. В разделе III сообщается о регистрации и методе обработки статистических данных, основанном на перекрестной постселекции аналоговых показаний; полученные результаты сравниваются с теоретическими предсказаниями. В разделе IV обсуждается другой подход к обработке данных, доступный при применении аналоговых приемников как в холостом, так и в оптическом каналах установки, и способный максимально усилить эффект от оптикотерагерцовых корреляций. Результаты этого подхода демонстрируются на примере данных, получаемых при замене однофотонного приемника на аналоговый в схеме регистрации оптических волн. В заключительном разделе V сформулированы выводы.

**II. Экспериментальная установка.** Схема установки для измерения корреляционных параметров оптико-терагерцовых бифотонов показана на рис. 1. В качестве источника накачки использовалась вторая гармоника импульсно-периодического излучения Nd<sup>3+</sup>: YLF-лазера с модуляцией добротности. Длительность импульса составляла 10 нс, частота повторения 4 кГц, изменение мощности накачки производилось путем изменения тока лазерного диода. Излучение второй гармоники генерировалось на длине волны 523.5 нм в кристалле титанил-фосфата калия (КТР на рис. 1), радиус пучка накачки на нелинейном кристалле составлял около 300 мкм. В качестве источника оптико-терагерцовых бифотонов использовался кристалл Mg:LiNbO<sub>3</sub> длиной 0.9 см (LN), неколлинеарные бифотоны генерировались при взаимодействии еее, оптическая ось кристалла была ориентирована нормально к плоскости рассеяния в режиме фазового синхронизма. Для регистрации терагерцовых фотонов в холостом (ТГц) канале использовался болометр на горячих электронах на основе пленки NbN в сверхпроводящем состоянии, находящейся вместе с кристаллом Mg:LiNbO<sub>3</sub> в вакуумном откачном криостате при рабочей температуре 4.8 К. При этом рабочее значение эквивалентной мощности шума (NEP) болометра составляло около  $2.5 \cdot 10^{-13} \,\mathrm{Bt} \cdot \Gamma \mathrm{u}^{-0.5}$ [24]. Подобный НЕВ болометр способен детектировать ТГц излучение с частотой до ЗТГц. Для выделения участка спектра холостых волн перед детектором НЕВ располагался полосовой фильтр производства "Tydex" (F1) с центральной частотой 1 ТГц и шириной полосы пропускания 0.25 ТГц. для фильтрации рассеянного излучения накачки использовалась пленка из политетрафторэтилена (Zitex G-106). В качестве входного и выходного окон криостата использовались фильтры ITO, подавляющие влияние внешнего теплового излучения на ТГц частотах. Для детектирования сигнальных (оптических) фотонов использовался лавинный фотодиод "Laser Components" (AD). Для отсечки прямого излучения накачки после кристалла в



Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки для измерения нормированной корреляционной функции второго порядка для оптико-терагерцового бифотонного поля

схеме регистрации сигнальных (оптических) фотонов стоял поглотитель накачки (Trap). С целью последующей фильтрации рассеянного излучения накачки использовались узкополосные фильтры "Optigrate" (F2) на решетках Брэгга (Bragg grating Notch filters). Для выделения поперечных мод сигнального излучения, связанных условиями фазового синхронизма с детектируемыми модами холостого канала, в оптическом канале помещалась линза (L1) с фокусным расстоянием  $F_1 = 21 \, \text{см}$  на расстоянии 2F<sub>1</sub> от кристалла, излучение при этом проходило через систему щелей регулируемой ширины (S1,2). Далее сигнальное излучение фокусировалось в монохроматор модели МДР-41 короткофокусной линзой (L2) с фокусным расстоянием  $F_2 = 5 \,\mathrm{cm}$ . После монохроматора излучение через линзовый переходник/каплер (L3) заводилось в многомодовое оптоволокно, а затем - в лавинный фотодиод с волоконным входом (AD).

Как уже отмечалась, в отличие от обычных оптических квантовых измерений с помощью однофотонных детекторов и схем совпадений, при измерении корреляций между оптическими и ТГц фотонами приходится измерять корреляционную функцию, используя детекторы с аналоговым выводом данных. Для обработки аналоговых (токовых) показаний сигнального и холостого детекторов использовался стробируемый интегратор Вохсаг SRS 250, способный одновременно определять "почти мгновенные" (средние за малый интервал времени строба) значения токов детекторов сигнального и холостого каналов. При этом также производилась филь-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

трация детектируемых показаний от фоновых шумов – за счет измерения поступающих показаний за время импульса строба  $\tau = 6$  нс, синхронизованного с импульсами лазерной накачки с помощью PIN-диода (PD). Связь Вохсаг интегратора с компьютером (PC) осуществлялась с помощью аналогоцифрового преобразователя (ADC) с частотой дискретизации 192 кГц.

III. Измерение корреляционной функции второго порядка с применением метода постелекции аналоговых показаний. В идеальном случае, когда полностью отсутствуют вклады от шумов электронной и темновой природы, оптикотерагерцовая корреляционная функция может определяться путем усреднения отдельных токовых показаний сигнального  $(I_s^j)$  и холостого  $(I_i^j)$  детекторов и их произведений  $I_s^j I_i^j$  [12]. Соответственно, если выборка статистических данных осуществлялась в течение *n* интервалов стробирования (j = 1 ... n), то

$$g^{(2)} = \frac{\langle I_s^j I_i^j \rangle}{\langle I_s^j I_i^j \rangle} = \frac{\sum_{j=1}^n I_s^j I_i^j}{\sum_{j=1}^n I_s^j \sum_{j=1}^n I_i^j} n.$$
(1)

По этой формуле рассчитывались значения  $g^{(2)}$  и в нашем эксперименте, однако вычисление производилось после предварительной процедуры дискриминации шумовых показаний в первичном статистическом наборе показаний каждого детектора. Для этого был выбран подход, предварительно опробованный в оптическом диапазоне частот при измерении заранее откалиброванных значений бифотонных



Рис. 2. (Цветной онлайн) Гистограммы распределений токовых показаний лавинного фотодиода (a) и ТГц болометра (b), снятые при средней мощности накачки 110 мВ

корреляционных функций [28]. Дискриминация основывалась на результатах анализа гистограмм распределений показаний детекторов, один из которых обладал однофотонными свойствами. На рисунке 2 приведены примеры таких гистограмм, полученных от лавинного фотодиода (рис. 2а) и ТГц болометра (рис. 2b) в течение одного и того же времени набора данных. Видно существенное различие характера гистограмм, связанное с тем, что из двух приемников только лавинный фотодиод, выбранный для нашей схемы, обладает свойствами однофотонного детектора. Как показал детальный анализ гистограмм использованного ТГц болометра [29], широкий пик, наблюдаемый на распределениях типа представленного на рис. 2b, может быть разложен на набор сливающихся распределений, каждое из которых соответствует детектированию одного, двух, и т.д. фотонов за время строба. Шумовые показания практически неотделимы от полезных в этом случае. Напротив, на гистограмме распределения тока в лавинном фотодиоде (рис. 2а) хорошо выделены несколько областей: однофотонный пик (справа), область частично стробированных импульсов (середина) и область шумов (слева). Область значений чисто шумовых показаний легко определяется при измерении гистограммы показаний фотодиода при перекрытом излучении лазера. Приравнивая нулю показания с соответствующими амплитудами в статистическом наборе данных фотодиода, полученных уже в условиях действующей накачки, мы исключаем деструктивное влияния данных шумов на итоговые показания сигнального детектора. Однако, если в сигнальном канале отсутствует полезный импульс, а регистрируется только шум, то и в холостом канале вероятнее всего регистрируется только шум в течение данного времени строба. Аналогичная дискриминация ("зануление") этих показаний ТГц болометра позволяет избавиться и от шумового вклада

Таким образом, исходя из гистограммы распределения токов в сигнальном канале, была применена следующая процедура дискриминации шумов:

1) При выключенном лазере измерялись гистограммы шумовых токов лавинного фотодиода. Находилось максимальное значение шумового показания  $I_{s.noise}^{j}$ .

2) После включения лазера те токи сигнального детектора, которые удовлетворяли условию  $I_s^j \leq I_{s,\text{noise}}^j$ , приравнивались к нулю. Измеренные одновременно с ними токи холостого детектора также занулялись.

3) После дискриминации значения из обновленного массива данных подставлялись в формулу (1) и рассчитывались значения  $g^{(2)}$ .

На рисунке 3 точками представлены значения  $q^{(2)}$ , полученные таким образом в условиях различной мощности накачки. В качестве ошибок указан среднестатистический разброс, рассчитанный исходя из дисперсии показаний, собранных в каждом канале. Очевидно, возможны также систематические ошибки, связанные с изменением мощности остаточных тепловых шумов при изменении температуры в криостате под действием излучения накачки. Величина наблюдаемых добавок к классическому уровню  $q^{(2)} = 1$  невелика, однако растет с уменьшением мощности накачки, как это должно происходить при СПР. К сожалению, дальнейшее продвижение в область малых мощностей накачки пока ограничено уровнем шумового сигнала ТГц болометра, который оказывается существенно выше полезного сигнала. Для сравнения полученных экспериментально значений с теоретическими ожиданиями приве-



Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости нормированной корреляционной функции второго порядка  $g^{(2)}$  от мощности накачки. Точки – измеренные значения и их среднестатистический разброс, кривая – результат теоретической аппроксимации

денная на рис. З зависимость аппроксимировалась по формуле

$$g^{(2)} = 1 + \frac{1}{\beta^2 M},\tag{2}$$

справедливой для случая спонтанного режима параметрического рассеяния [12]. Для коэффициента параметрического усиления подставлялись значения, рассчитанные по формуле

$$\beta = 0.09 \sqrt{P_{\text{pump}}[\text{mW}]}.$$
 (3)

Аналогично подходу работы [26], здесь мы исходим из зависимости  $\beta$  от мощности накачки, определенной экспериментально по нарастанию ТГц сигнала в режиме высокого усиления [27]. Величина М должна соответствовать произведению числа регистрируемых в нашей установке продольных и поперечных мод:  $M = M_{\parallel}M_{\perp}$ . Она использовалась в качестве аппроксимационного параметра. В результате было получено значение  $M = 440 \pm 40$ . С учетом результатов предварительного теоретического анализа числа поперечных мод Шмидта в случае генерации оптикотерагерцовых бифотонов [30, 31] можно ожидать, что в условиях нашего эксперимента регистрируется число поперечных мод  $M_{\perp}$ , близкое к 1. Таким образом, полученное в результате аппроксимации значение М в основном описывает число регистрируемых продольных мод, достаточно высокое при выбранных временах строба и спектральных полосах приемни-KOB.

Дальнейшее понижение числа регистрируемых продольных мод могло бы приводить к росту измеряемых значений  $g^{(2)}$ . Быстродействие выбранного ТГц болометра позволяет сделать это. Однако, так же, как и при выборе менее мощной накачки, это будет приводить к снижению регистрируемых потоков ТГц фотонов. Для регистрации столь низких потоков потребуются ТГц болометры с меньшим значением NEP и, скорее всего, меньшей рабочей температурой при таком же высоком быстродействии.

**IV. Измерение корреляций при пороговой** дискриминации показаний. На следующем этапе однофотонный лавинный фотодиод в экспериментальной установке (рис. 1) был заменен на фотодетектор H7422-50 Hamamatsu с высокочувствительным фотоумножителем (ФЭУ). Аналогично ТГц болометру, этот детектор принципиально не мог работать в режиме счета однофотонных импульсов. На рисунке 4 представлен пример гистограммы распре-



Рис. 4. Гистограмма распределения токовых показаний фотоэлектронного умножителя в сигнальном канале СПР (средняя мощность накачки 92 мВ)

деления его токовых показаний. В отличие от гистограммы использованного ранее лавинного фотодиода, в гистограмме показаний данного ФЭУ нельзя выделить область, где присутствует только шум. Метод дискриминации, примененный в предыдущем разделе, нельзя использовать. При этом наличие шумов, "зашитых" в исходных данных, существенно снижает корреляционную функцию бифотонов, если ее рассчитывать по формуле (1) без какой-либо предварительной дискриминации экспериментально измеренных показаний.

Тем не менее, шумовой вклад в корреляционную функцию должен уменьшаться, если рассматривать только высокие значения токовых показаний  $I_s^j$  и  $I_i^j$ . Проверяя эту идею, мы предложили следующую процедуру дискриминации, которую назвали пороговой: заменяли на 0 те значения  $I_s^j$ , которые исходно были ниже некоторого порогового значения  $I_{s,thr}^j$ ,



Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость эффективной нормированной корреляционной функции g<sub>eff</sub> от порогов дискриминации показаний в сигнальном и холостом каналах

одновременно и независимо аналогичная процедура  $I_i^j \to 0$ , если  $I_i^j < I_{i,\text{thr}}$ , применялась к показаниям детектора холостого канала. Постепенно увеличивая пороги  $I_{s,\text{thr}}$  и  $I_{i,\text{thr}}$ , мы рассчитывали корреляционную функцию на каждом шаге, применяя соотношение (1) к обновленному набору статистических данных. Результаты, полученные при средней мощности накачки 92 мВт, представлены в качестве примера на рис. 5 в виде трехмерного графика зависимости рассчитанной корреляционной функции от порогов дискриминации в каждом канале. Видно, что с ростом порогов дискриминации получаются все большие значения получаемой таким образом эффективной корреляционной функции, существенно превышающие теоретические ожидания и результаты измерения в предыдущем разделе.

Причина получения столь завышенных значений в первую очередь связана с тем, что, увеличивая порог отсечки выше уровня чисто шумовых показаний, мы фактически присваиваем квантовой эффективности чувствительного элемента каждого детектора некоторую новую нелинейную зависимость от падающего на него числа фотонов. Получается так, что при низких потоках фотонов чувствительность детектора нулевая, а при превышении соответствующего искусственно введенного порога она возрастает до своего обычного (паспортного) значения. Соответственно, с ростом порогового уровня зависимость выходного тока от числа падающих фотонов приобретает нелинейные слагаемые все большего порядка:

$$I_{s,i}^{j} = \alpha_{s,i} N_{s,i}^{i} + \beta_{s,i} (N_{s,i}^{j})^{2} + \gamma_{s,i} (N_{s,i}^{j})^{3} + \dots$$
(4)

Это означает, что определяемая по формуле (1) величина корреляционной функции будет получать все более завышенные значения по сравнению с истинной корреляционной функцией второго порядка  $g^{(2)} \equiv \langle N_i^j N_s^j \rangle / (\langle N_i^j \rangle \langle N_s^j \rangle)$ . Например, упрощенно предполагая, что коэффициенты в разложении (4) слабо флуктуируют при переходе от одного строба к другому, и, ограничиваясь только квадратичными членами в нелинейной зависимости, мы получаем:

$$g_{\text{eff}} \equiv \frac{\langle I_s^j I_i^j \rangle}{\langle I_s^j \rangle \langle I_i^j \rangle} \approx g^{(2)} + \frac{\beta_s}{\alpha_s} \frac{\langle (N_s^j)^2 N_i^j \rangle}{\langle N_s^j \rangle \langle N_i^j \rangle} + \frac{\beta_i}{\alpha_i} \frac{\langle N_s^j (N_i^j)^2 \rangle}{\langle N_s^j \rangle \langle N_i^j \rangle} + \frac{\beta_i \beta_s}{\alpha_i \alpha_s} \frac{\langle (N_s^j)^2 (N_i^j)^2 \rangle}{\langle N_s^j \rangle \langle N_i^j \rangle}.$$
(5)

. .

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

Дальнейший учет членов нелинейных зависимостей приводит к включению корреляционных функций еще более высоких порядков, что неизбежно приводит к нарастанию измеряемого таким образом уровня корреляции.

Таким образом, пороговая процедура дискриминации позволяет регистрировать добавки к  $g^{(2)}$  за счет высших корреляционных моментов поля. Данная процедура не позволяет измерить непосредственно величину нормированной корреляционной функции второго порядка, поэтому, например, ею нельзя пользоваться в таких квантово-оптических технологиях, как калибровка квантовой эффективности детекторов по методу Клышко [22]. Однако она может быть очень полезна в тех приложениях, где конкретный выбор меры корреляций не важен. Например, при построении "фантомных" изображений в ТГц лучах с помощью однопиксельного терагерцового детектора и оптической ССD камеры.

V. Заключение. В работе предложена и впервые экспериментально реализована схема прямого измерения корреляционной функции второго порядка  $q^{(2)}$  для оптико-терагерцовых бифотонных полей, генерируемых при спонтанном параметрическом рассеянии света. Схема основана на регистрации показаний оптического и терагерцового детекторов в аналоговых режимах. Исследованы два подхода к дискриминации отдельных аналоговых показаний, позволяющие исключить негативное влияние шумов детекторов. Первый подход требует применения детектора с однофотонным характером отклика в оптическом канале установки и основан на постселекции аналоговых показаний обоих детекторов в соответствии с уровнем показаний оптического однофотонного приемника. Показано, что эта схема позволяет измерить количественно значения нормированной корреляционной функции второго порядка даже в случае, когда терагерцовый детектор не является однофотонным. Полученные зависимости  $q^{(2)}$  от мощности оптической накачки согласуются с результатами теоретических расчетов. Во втором методе дискриминации подвергаются показания, не превышающие порогового уровня, выбранного для данного приемника. Этот метод не избирателен к типу приемника и его действие демонстрируется на примере схемы, когда и оптический приемник не имеет однофотонного отклика. Показано, что применение этого метода позволяет измерить высокие уровни корреляции за счет дополнительных вкладов от корреляционных функций более высоких порядков.

Полученные результаты открывают возможности для продвижения квантово-оптических технологий в терагерцовый диапазон. Метод постселекции при обработке статистических данных может найти применение при квантовой калибровке терагерцовых детекторов, создании однофотонных источников терагерцового излучения. Подход с пороговой дискриминацией будет полезен при построении изображений с использованием однопиксельных терагерцовых детекторов и развитии других новых методов квантовой визуализации терагерцового излучения.

Работа выполнена при финансовой поддержке грантов Российского фонда фундаментальных исследований # 20-32-90232, 20-02-00621А.

- D.N. Klyshko, *Photons and Nonlinear Optics*, Gordon and Breach, N. Y., NY, USA (1988).
- 2. N. Gisin and R. Thew, Nat. Photonics 1, 165 (2007).
- F. Flamini, N. Spagnolo, and F. Sciarrino, Rep. Prog. Phys. 82, 016001 (2019).
- V. Giovannetti, S. Lloyd, and L. Maccone, Nat. Photonics 5, 222 (2011).
- G.B. Lemos, V. Borish, G.D. Cole, S. Ramelow, R. Lapkiewicz, and A. Zeilinger, Nature 512, 409 (2014).
- P.-A. Moreau, E. Toninelli, T. Gregory, and M. J. Padgett, Laser Photonics Rev. 12, 1700143 (2018).
- A. V. Paterova and L. A. Krivitsky, Light Sci. Appl. 9, 82 (2020).
- J.-Z. Yang, M.-F. Li, X.-X. Chen, W.-K. Yu, and A.-N. Zhang, Appl. Phys. Lett. **117**, 214001 (2020).
- G. K. Kitaeva and V. V. Kornienko, Int. J. Quantum Inf. 15, 1740024-1 (2017).
- G. Kh. Kitaeva, V. V. Kornienko, A. A. Leontyev, and A. V. Shepelev, Phys. Rev. A 98, 063844 (2018).
- K. A. Kuznetsov, E. I. Malkova, R. V. Zakharov, O. V. Tikhonova, and G. Kh. Kitaeva, Phys. Rev. A 101, 053843 (2020).
- G. Kh. Kitaeva, A. A. Leontyev, and P. A. Prudkovskii, Phys. Rev. A **101**, 053810 (2020).
- R. V. Zakharov and O. V. Tikhonova, Laser Phys. 29, 124010 (2019).
- K. A. Kuznetsov, G. Kh. Kitaeva, S. P. Kovalev, S. A. Germansky, A. M. Buryakov, A. N. Tuchak, and A. N. Penin, Appl. Phys. B **122**, 223 (2016).
- M. Kutas, B. Haase, J. Klier, D. Molter, and G. von Freymann, Optica 8, 438 (2021).
- T. I. Novikova, K. A. Kuznetsov, A. A. Leontyev, and G. Kh. Kitaeva, Appl. Phys. Lett. **116**, 264003 (2020).
- 17. M. Kutas, B. Haase, P. Bickert, F. Riexinger, D. Molter, and G. von Freymann, Sci. Adv. 6, 8065 (2020).
- G.K. Kitaeva, P.V. Yakunin, V.V. Kornienko, and A.N. Penin, Appl. Phys. B **116**, 929 (2014).

- V.V. Kornienko, G.Kh. Kitaeva, F. Sedlmeir, G. Leuchs, and H.G.L. Schwefel, APL Photonics 3, 051704 (2018).
- S. Komiyama, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 17, 54 (2011).
- D.F. Santavicca, B. Reulet, B.S. Karasik, S.V. Pereverzev, D. Olaya, M.E. Gershenson, L. Frunzio, and D.E. Prober, Appl. Phys. Lett. 96, 083505 (2010).
- G. Kh. Kitaeva, V. V. Kornienko, K. A. Kuznetsov, I. V. Pentin, K. V. Smirnov, and Yu. B. Vakhtomin, Opt. Lett. 44, 1198 (2019).
- V.D. Sultanov, K.A. Kuznetsov, A.A. Leontyev, and G.K. Kitaeva, JETP Lett. **112**, 269 (2020).
- S. Seliverstov, S. Maslennikov, S. Ryabchun, M. Finkel, T. Klapwijk, N. Kaurova, Y. Vakhtomin, K. Smirnov,

B. Voronov, and G. Goltsman, IEEE Trans. Appl. Supercond. **25**, 2300304 (2015).

- S. V. Polyakov and A. L. Migdall, Opt. Express 15, 1390 (2007).
- A. N. Penin and A. V. Sergienko, Appl. Opt. **30**, 3582 (1991).
- 27. R. H. Brown and R. Q. Twiss, Nature 177, 27 (1956).
- D. A. Safronenkov, N. A. Borshchevskaya, T. I. Novikova, K. G. Katamadze, K. A. Kuznetsov, and G. Kh. Kitaeva, Opt. Express 29, 637 (2021).
- P. Prudkovskii, A. Leontyev, K. Kuznetsov, and G. Kitaeva, Sensors 21, 4964 (2021).
- L. S. Dvernik and P. A. Prudkovskii, Appl. Phys. B 127, 85 (2021).
- 31. П. А. Прудковский, Письма в ЖЭТФ **114**, 204 (2021).

### Физические процессы при формировании стационарной ультрахолодной неидеальной плазмы

*С. Я.* Бронин<sup>+</sup>, *Е. В.* Вихров<sup>+</sup>, *Б. Б.* Зеленер<sup>+\*×</sup>, *Б. В.* Зеленер<sup>+1)</sup>

+ Объединенный институт высоких температур РАН, 127412 Москва, Россия

\*Национальный исследовательский ядерный университет Московский инженерно-физический институт, 115409 Москва, Россия

<sup>×</sup> Национальный исследовательский университет Московский энергетический институт, 111250 Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 сентября 2021 г. После переработки 6 октября 2021 г. Принята к публикации 12 октября 2021 г.

Мы представляем результаты прямого моделирования формирования двухкомпонентной стационарной неидеальной ультрахолодной плазмы при помощи непрерывного ионизирующего лазера. Показано, что формирование стационарной плазмы так же, как и в случае импульсной ионизации, определяется электрическим полем, создаваемым покидающими плазму быстрыми электронами. Это поле ускоряет ионы и удерживает оставшиеся электроны в плазме. При этом за счет непрерывной ионизации в определенный момент времени, зависящий от начальной энергии электронов и ионов, а также от плотности плазмы, достаточно быстро устанавливается стационарное распределение частиц плазмы по плотности и температуре частиц, которое может существовать в течение длительного времени.

DOI: 10.31857/S1234567821220031

Введение. Исследования ультрахолодной плазмы (УХП), которая последние 20 лет экспериментально и теоретически интенсивно изучается [1, 2], представляют большой интерес для понимания физических процессов в классической невырожденной плазме. УХП получается при однократной ионизации ультрахолодного газа (обычно щелочного или щелочно-земельного металла), находящегося в магнитооптической ловушке в глубоком вакууме, при помощи импульсного [1, 2] или непрерывного лазера [3]. Так как температура газа в этой ловушке составляет несколько милликельвинов, а плотность  $10^7 - 10^{11} \,\mathrm{cm}^{-3}$ , то плазма достаточно разрежена и при этом взаимодействием заряд-нейтрал по сравнению с кулоновским взаимодействием можно пренебречь, т.е. рассматривать ее отдельно как полностью ионизованную. Начальная кинетическая энергия электронов определяется величиной отстройки ионизирующего лазера от потенциала ионизации и обычно лежит в интервале 0-200 К. Начальная температура ионов практически равна температуре атомов. Эта плазма является термически неравновесной и может быть неидеальной, если взаимодействие зарядов между собой на среднем расстоянии будет сравнимо или больше их кинетической энергии. Параметр неидеальности для взаимодействия электрон-ион может достигать единицы, а для взаимодействия ион-ион – десятки. Вырождение в этой плазме отсутствует и все процессы в ней рассматриваются классически. В работах [4–8] показано, что свойства этой плазмы, выраженные в безразмерном виде: такие как коэффициенты диффузии зарядов, проводимость, теплопроводность, вязкость, диэлектрическая проницаемость, коэффициенты преломления, поглощения, отражения, а также вероятность распределения ионного микрополя соответствуют любой классической неидеальной невырожденной плазме.

Еще один аспект интереса к исследованию УХП связан с физикой разлета этой плазмы в вакуум после ее создания. Вообще явление быстрого ускорения ионов при свободном расширении разреженной плазмы – одна из интересных особенностей кинетики плазмы. Оно было обнаружено еще в 1930 г. Танбергом [9] в импульсном газовом разряде. Качественное объяснение этого эффекта, основанное на механизме амбиполярного ускорения ионов электронами, было дано только в начале 1960-х гг. Плютто [10], а также Хенделем и Ребулом [11]. Оно состоит в том, что изза более высокой подвижности электронов создается электрическое (амбиполярное) поле, которое предотвращает вылет электронов и в то же время ускоряет ионы в направлении вакуума или менее плотной среды. В дальнейшем это явление наблюдали в поляр-

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: bzelener@mail.ru

ном ветре, в катодных вспышках, в вакуумных дугах, а также во взрывающихся проволоках, в лабораторной плазме, в лазерной искре. Кроме того, недавние эксперименты по созданию струй высокоэнергетических ионов от короткоимпульсного взаимодействия с твердотельными мишенями возродили интерес к описанию процесса свободного разлета плазмы в вакуум [12–17].

Новые возможности для изучения разлета плазмы в вакуум возникли с созданием УХП. Расширение УХП характеризуется хорошо контролируемыми начальными условиями и относительно медленной динамикой, что создает явные преимущества для изучения проблемы. Также УХП является классической в широком диапазоне параметров и может быть неидеальной, что дает возможность изучения влияния неидеальности на ее разлет. В настоящее время получен достаточно большой экспериментальный материал по расширению УХП различных элементов (Xe, Sr, Rb, Ca) [1, 2, 18, 19] в зависимости от плотности, числа частиц, начальных температур электронов и ионов.

Одним из лучших способов, позволяющих максимально точно и детально изучить процесс разлета УХП является его моделирование методом молекулярной динамики. В наших работах [20, 21] мы представили результаты, полученные прямым моделированием методом молекулярной динамики (ММД) процесса разлета двухкомпонентной плазмы в вакуум, происходящего при ее создании импульсным лазером, который выключается после ее возникновения. В работе [21] представлены результаты разлета сферического облака двухкомпонентной плазмы Sr в вакуум в широком диапазоне числа частиц, плотности и начальных температур электронов. Были последовательно рассмотрены все этапы разлета в зависимости от параметров плазмы. Показано, что, при всех рассмотренных условиях, имеет место одинаковый характер процесса разлета. После вылета быстрых электронов из облака плазмы избыточный положительный заряд локализуется на внешней границе в узком слое. Этот слой имеет характерную форму фронта с резким спадом концентрации заряда. По мере расширения плазмы скорость перемещения заряженного слоя становится постоянной и значительно превышает звуковую скорость ионов. При этом зависимость радиальной скорости ионов от радиуса имеет автомодельный характер задолго до финальной стадии разлета. На основе проведенных расчетов удалось определить зависимость всех характеристик разлета от числа частиц и других начальных параметров. Экстраполяция этих зависимостей на реальные эксперименты позволила провести сравнение различных экспериментальных данных с результатами моделирования. На основании результатов моделирования были сформулированы уравнения для функций распределения и получены автомодельные решения для различных этапов разлета.

Другой вариант создания УХП реализуется при использовании непрерывного ионизующего лазера [3]. В этом случае атомы, непрерывно поступающие и охлаждаемые в магнитооптической ловушке, непрерывно ионизуются. Так как заряды не удерживаются в ловушке, то они ее покидают с течением времени. Но за счет непрерывной ионизации в определенный момент времени, зависящий от начальной энергии электронов и ионов, а также от плотности плазмы, достаточно быстро устанавливается стационарное распределение частиц плазмы по плотности и температуре, которое может существовать в течение длительного времени. До настоящего времени этот режим подробно не исследовался.

В настоящей работе представлены некоторые результаты, выполненные ММД расчетов формирования УХП при ионизации непрерывным лазером. Так же, как и в случае разлета при создании плазмы импульсным лазером при стационарном режиме, образуется дисбаланс заряда, который формирует электрическое поле, удерживающее электроны и ускоряющее ионы. Напряженность поля в облаке плазмы при этом соответствует поведению напряженности поля однородно заряженного шара. Получено стационарное распределение частиц плазмы в зависимости от параметров. Показано отличие разлета частиц в стационарной плазме от разлета при импульсном способе ее создания.

Физическая модель. Для моделирования ММД образования стационарной ультрахолодной плазмы была использована следующая физическая модель. Возникновение заряженных частиц осуществлялось равномерно по паре зарядов (электрон и ион Ca<sup>40</sup>) каждые 5 · 10<sup>-8</sup> с. В нулевой момент времени скорости частиц обоих типов распределены по Максвеллу с заданной начальной кинетической энергией. Начальные координаты задаются так, что плотность частиц подчиняется нормальному закону распределения, дисперсия которого зависит от распределения интенсивности лазерного излучения. Для интегрирования уравнений движения используется схема Верле в скоростной форме. Минимальный шаг по времени при расчете движения электронов  $\delta t =$ = 10<sup>-12</sup> с. Так как массы частиц существенно различаются, шаг по времени выбран различным для ионов и электронов (пропорционально корню квад-

2021





Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость концентрации и<br/>онов от радиуса и от времени: (a) –  $\sigma = 0.02$  см; (b) –  $\sigma = 0.07$  см.<br/>Синие кружки – t = 10 мкс; красные треугольники – t = 30 мкс; фиолетовые квадраты – t = 180 мкс; черный пунктир – t = 220 мкс



Рис. 2. (Цветной онлайн) Разность чисел и<br/>онов и электронов внутри сферы радиуса r в зависимости от времени: (a) –<br/>  $\sigma = 0.02$  см: синий пунктир – r = 0.05 см; красная сплошная – r = 0.1 см; (b) –  $\sigma = 0.07$  см: синий пунктир – r = 0.1 см;<br/>
красная сплошная – r = 0.2 см

ратному из отношения масс). Такой прием позволяет ускорить вычисления без ущерба для точности. При решении уравнений движения учитывалось кулоновское взаимодействие между частицами (все частицы со всеми). Так как число частиц в расчетах составляет больше 10000, то для уменьшения времени счета используется специально разработанный для настоящих расчетов алгоритм распараллеливания расчетов (*parallelization techniques*). В процессе расчетов обеспечивалось сохранение энергии с точностью до 1 %.

Влияние рекомбинации на результаты расчетов не существенно. Это связано с тем, что рекомбинация в ультрахолодной плазме носит столкновительный характер. Все остальные процессы рекомбина-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021



Рис. 3. (Цветной онлайн) Напряженность электрического поля в зависимости от радиуса для разных моментов времени: (a) –  $\sigma = 0.02$  см; (b) –  $\sigma = 0.07$  см. Красная сплошная – t = 4 мкс; синий длинный пунктир – t = 10 мкс; бирюзовый штрих-пунктир – t = 90 мкс; черный короткий пунктир – t = 200 мкс. (c) – Безразмерные значения электрического поля E в зависимости от  $\xi = r/\sigma_r$  ( $\sigma_r = (\langle r^2 \rangle)^{1/2}$ );  $\int E(\xi)d\xi = 1$ . Стационарный режим –  $\sigma = 0.07$  см, t = 200 мкс – красная сплошная. Импульсный режим – синий пунктир



Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость кинетической энергии различных групп частиц, и потенциальной энергии, отнесенных к полной энергии, от времени: (a) –  $\sigma = 0.02$  см; (b) –  $\sigma = 0.07$  см. Красная сплошная линия – кинетическая энергия электронов плазмы  $E_{pe}/E$ ; синий штрих-пунктир – кинетическая энергия ионов плазмы  $E_i/E$ ; зеленая штриховая линия – кинетическая энергия свободных электронов, покинувших область плазмы  $(E_e - E_{pe})/E$ ; черный пунктир – полная потенциальная энергия всех частиц U/E

ции в ней практически отсутствуют, так как концентрация зарядов составляет  $n = 10^5 - 10^{10} \,\mathrm{cm}^{-3}$ , а температура электронов  $T_e = 1 - 30$  К. При этом первоначальный захват электрона происходит на уровень энергии, равный  $k_b T_e$  ( $k_b$  – постоянная Больцмана). Этому уровню энергии соответствует главное квантовое число в диапазоне k = 70-400. Вероятность радиационного перехода высоковозбужденных состояний в основное пропорционально  $k^{-5}$  и для этих состояний значительно меньше вероятности столкновительной рекомбинации. Вклад других рекомбинационных процессов мал из-за низкой концентрации частиц. Коэффициент трехчастичной рекомбинации был рассчитан нами методом молекулярной динамики для параметра неидеальности  $\Gamma_{ei}$  =  $=e^2(4\pi n_i/3)^{1/3}/k_bT_e < 1.5$ . Эти результаты, а также совпадающие с ними в этом диапазоне результаты работ других авторов приведены в [22]. В настоящей работе значение параметра неидеальности  $\Gamma_{ei} \approx 0.1$ . При его определении нужно учитывать то, что плотность электронов меняется с течением времени от нуля до некоторого значения, которое в несколько раз меньше плотности ионов при r = 0 за счет вылета электронов из облака плазмы. Для этого параметра неидеальности доля рекомбинировавших электронов на основании рассчитанного коэффициента рекомбинации составляет менее 1 % от количества электронов в стационарном состоянии при t = 200 мкс.

Рассмотрено два варианта, отличающиеся размером области, в которой происходит ионизация атомов. В обоих вариантах координаты возникающих частиц имеют гауссово распределение с дисперсиями  $\sigma = 0.07$  см и 0.02 см.

Все эти условия выбирались на основании анализа экспериментальных данных [3].

**Результаты.** На рисунках 1–5 приведен пример расчетов для начальных температур электронов  $T_{e0} = 5 \text{ K}$  и ионов  $T_{i0} = 10^{-3} \text{ K}$ . На рисунке 1 представлено распределение плотности ионов в зависимости от радиуса облака плазмы для разных значений времени и для двух значений размеров области ионизации  $\sigma = 0.02 \text{ см}$  (рис. 1а) и  $\sigma = 0.07 \text{ см}$  (рис. 1b). Из рисунка 1 видно, что установление стационарного режима наступает при  $t \approx 200 \text{ мкс. Плотность ионов в центре достигает при заданных начальных условиях <math>n_i = 3 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$  ( $\sigma = 0.02 \text{ см}$ ) и  $n_i = 10^5 \text{ см}^{-3}$  ( $\sigma = 0.07 \text{ см}$ ), что примерно соответствует экспериментальным оценкам.

На рисунке 2 показана разность между числами ионов и электронов внутри сферы радиуса *r* в зави-



Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость кинетической энергии на одну частицу и средней температуры ионов от времени: (a)  $\sigma = 0.02$  см; (b) –  $\sigma = 0.07$  см. Красная сплошная линия – средняя температура ионов плазмы  $\langle T_i \rangle$ ; синий штрих-пунктир – кинетическая энергия ионов плазмы  $E_i(t)$ 

симости от времени для двух значений радиуса. С течением времени устанавливается постоянный дисбаланс заряда, что приводит к образованию стационарного электрического поля.

На рисунке 3a, b приведены результаты расчета напряженности электрического поля в зависимости от радиуса для разных моментов времени. Приведенные значения поля представляют собой усредненные по угловым координатам при фиксированном значении радиуса радиальные компоненты напряженности поля, рассчитанной как сумма вкладов всех заряженных частиц. Следует отметить немонотонное изменение напряженности поля с изменением времени. Вид кривых напряженности поля при различных моментах времени имеет подобный характер: монотонный рост при малых r после максимума сменяется спадом  $1/r^2$ . Такое поведение напряженности поля означает, что избыток заряда равномерно распределен внутри облака. Полученному распределению электрического поля соответствует потенциальная яма для электронов с глубиной, достигающей 10 К при  $t \ge 150$  мкс, радиус которой можно оценить в 1 мм ( $\sigma = 0.02$  см) и 2 мм ( $\sigma = 0.07$  см). Электрическое поле ускоряет ионы плазмы и не позволяет оставшимся электронам покинуть плазменное облако.

В предыдущих работах [20, 21] моделировался разлет УХП при ее создании импульсным лазером.

Как было показано в этих работах, этот разлет осуществлялся также за счет образования дисбаланса заряда вследствие вылета части электронов. Однако формирование поля носило другой характер и приводило к образованию ионного фронта. На рисунке 3с представлены безразмерные значения электрического поля E в зависимости от  $\xi = r/\sigma_r \ (\sigma_r = (\langle r^2 \rangle)^{1/2}),$ для установившегося стационарного режима и для варианта импульсной ионизации. Значения поля нормированы таким образом, что  $\int E(\xi)d\xi = 1$ . Различие в поведении электрического поля обусловлено тем, что в импульсном варианте избыточный заряд сосредоточен в узком слое на периферии плазмы, тогда как в стационарном случае заряд в области плазмы распределен равномерно. Как показано в работе [21], зависимость безразмерных значений электрического поля от параметра  $\xi = r/\sigma_r$  практически одинакова в широком диапазоне определяющих параметров.

На рисунке 4 представлены все составляющие полной энергии системы.

На рисунке 4 представлены, в частности, зависимости кинетической энергии электронов плазмы и свободных электронов, отнесенные к полной энергии. Под свободными электронами понимаются те электроны, которые покинули облако плазмы и находятся на расстоянии большем, чем самый дальний ион. Кинетическая энергия электронов плазмы пада-
ет примерно в три раза за 200 мкс. Также на рис. 4 показана кинетическая энергия ионов, которая за 200 мкс за счет их ускорения полем сближается с энергией улетевших электронов. На рисунке 5 представлена зависимость кинетической энергии на одну частицу и средней температуры ионов от времени для двух размеров области ионизации. Как видно из этого рисунка, доля поступательной энергии в кинетической энергии ионов является подавляющей, а средняя температура ионов с течением времени остается примерно постоянной.

Заключение. Таким образом, при формировании стационарной УХП, происходящего в результате непрерывной ионизации лазерным излучением, в определенный момент времени, который зависит от начальной энергии электронов и ионов, а также от размера области ионизации  $\sigma$ , устанавливается стационарное распределение плотности и температуры частиц плазмы, которое может существовать в течение длительного времени. При этом плазма может быть в зависимости от параметров существенно неидеальна. Как следует из расчетов для расмотренных вариантов с разными размерами области, в которой происходит ионизация атомов, начальная кинетическая энергия электронов уменьшается в несколько раз, а температура ионов, несмотря на увеличение, остается достаточно низкой. Можно ожидать, что при определенных начальных условиях удастся получить значительные параметры неидеальности как для электронов так и для ионов. Полученные результаты пока недостаточны для того, чтобы определить зависимости всех характеристик формирования стационарной неидеальной плазмы от начальных параметров. Предполагается дальнейшее продолжение расчетов для формулировки на их основе этих зависимостей, а также для сравнения с экспериментом.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант #18-12-00424). Работа также поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (Государственное задание #075-00460-21-00) в части разработки программы с использованием алгоритмов параллельных вычислений для проведения расчетов в Объединенном суперкомпьютерном центре РАН.

Авторы выражают благодарность Межведомственному суперкомпьютерному центру РАН за предоставленные вычислительные ресурсы.

- T. S. Killian, T. Pattard, T. Pohl, and J. M. Rost, Phys. Rep. 449, 7 (2007).
- M. Lyon and S. L. Rolston, Rep. Prog. Phys. 80, 017001 (2017).
- Б. Б. Зеленер, Е. В. Вильшанская, С. А. Саакян,
   В. А. Саутенков, Б. В. Зеленер, В. Е. Фортов, Письма в ЖЭТФ 113, 92 (2021).
- A. A. Bobrov, A. M. Bunkov, S. Ya. Bronin, A. B. Klyarfeld, B. B. Zelener, and B. V. Zelener, Phys. Plasmas 6, 082102 (2019).
- T. S. Strickler, T. K. Langin, P. McQuillen, J. Daligault, and T. C. Killian, Phys. Rev. X 6, 021021(2016).
- A. A. Bobrov, A. M. Bunkov, S. Ya. Bronin, A. B. Klyarfeld, B. B. Zelener, and B. V. Zelener, Phys. Plasmas 27, 010701 (2020).
- A. A. Bobrov, S. Ya. Bronin, D. S. Korchagin, B. B. Zelener, and B. V. Zelener, Phys. Plasmas 27, 122103 (2020).
- S. Ya. Bronin, B. B. Zelener, and B. V. Zelener, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. 268, 107621 (2021).
- 9. R. Tanberg, Phys. Rev. 35, 1080 (1930).
- 10. A.A. Plyutto, ЖЭТФ **39**, 15891 (1960).
- H. W. Hendel and T. T. Reboul, Phys. Fluids 5, 360 (1962).
- 12. P. Mora, Phys. Rev. E **91**, 013107 (2015).
- 13. C. Sack and H. Schamel, Phys. Rep. 156, 311 (1987).
- 14. P. Mora, Phys. Plasmas 12, 112102 (2005).
- D. Bennaceur-Doumaz, D. Bara, E. Benkhelifa, and M. Djebli, J. Appl. Phys. **117**, 043303 (2015).
- I. S. Elkamash and I. Kourakis, Phys. Rev. E 94, 053202 (2016).
- 17. Y. Hu and J. Wang, Phys. Rev. E 98, 023204 (2018).
- T. C. Killian, S. Kulin, S. D. Bergeson, L. A. Orozco, C. Orzel, and S. L. Rolston, Phys. Rev. Lett. 83, 4776 (1999).
- M. K. Warrens, G. M. Gorman, S. J. Bradshaw, and T. C. Killian, Phys. Plasmas 28, 022110 (2021).
- E. V. Vikhrov, S. Ya. Bronin, A. B. Klyarfeld, B. B. Zelener, and B. V. Zelener, Phys. Plasmas 27, 127702 (2020).
- E. V. Vikhrov, S. Ya. Bronin, A. B. Klyarfeld,
   B. B. Zelener, and B. V. Zelener, Phys. Rev. E 104, 015212 (2021).
- A. A. Bobrov, B. B. Zelener, B. V. Zelener, and D. R. Khikhlukha, High Temp. 51, 615 (2013).

### Релятивистский самозахват экстремального лазерного света в неоднородной плазме

В. Ю. Быченков $^{1)+*}$ , М. Г. Лобок $^{*+}$ 

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

\*Центр фундаментальных и прикладных исследований, Федеральное государственное унитарное предприятие "Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова", Росатом, 127030 Москва, Россия

> Поступила в редакцию 22 сентября 2021 г. После переработки 13 октября 2021 г. Принята к публикации 16 октября 2021 г.

С использованием трехмерного кинетического моделирования методом "частица-в-ячейке" доказана возможность реализации режима релятивистского самозахвата лазерного импульса сверхвысокой интенсивности в плазме с неоднородным профилем плотности. Выявлены необходимые для этого условия фокусировки лазерного света в зависимости от градиентной длины плотности плазмы и проведено сравнение эффективности лазерно-инициированного ускорения электронов со случаем однородной плазмы. Последнее показало, что при правильном выборе положения фокуса лазерного света и размера пятна фокусировки на профиле плотности режим релятивистского самозахвата лазерного импульса и его использование для инновационных применений так же эффективны, как и в случае однородной мишени.

DOI: 10.31857/S1234567821220043

1. Проблема устойчивого нелинейного распространения в плазме короткого мощного лазерного импульса на расстояния, значительно превышающие рэлеевскую длину, является критической для так называемого кильватерного ускорения электронов [1, 2], поскольку последнее должно обеспечить достаточно высокую энергию частиц. Кильватерное ускорение - это многообещающий подход к ускорению электронов до высоких энергий на лабораторном масштабе для создания компактных источников рентгеновского и гамма-излучения, а также различных продуктов фотоядерных реакций. Однако в классической схеме кильватерного ускорения заряд ускоренных электронов типично оказывается на уровне, заметно меньшем 1 нК, что сдерживает ее применение для таких приложений. Для них требуется, чтобы, с одной стороны, лазерный импульс устойчиво проходил много рэлеевских длин, а с другой распространяться в достаточно плотной плазме, которая могла бы обеспечить существенно более высокий полный заряд ускоренного сгустка электронов. На этом пути требуется полное понимание достижимости устойчивого распространения релятивистски интенсивных лазерных импульсов с учетом релятивистских эффектов в реальной плазменной среде, отвечающей экспериментальным возможностям ее создания.

Наиболее хорошо известной реализацией трехмерной ускоряющей структуры является так называемый кильватерный баббл ("bubble") [3] – каверна с вытесненными под действием лазерного импульса электронами, в котором имеются продольное электрическое поле (вдоль оси распространения лазерного импульса), которое ускоряет некоторое число электронов, и фокусирующее на ось кулоновское поле. Такая структура хорошо исследована в разреженной плазме,  $n_e \ll n_c$ , с плотностью электронов  $n_e$ , много меньшей критической плотности  $n_c$  для лазерных импульсов длиной  $L \leq l_p$ , короче или порядка плазменной длины волны,  $l_p = 2\pi c/\omega_p$  (где  $\omega_p$  – электронная плазменная частота, а c – скорость света), и поперечной шириной баббла, d > L. Применение таких ускоряющих структур связывается с разработкой источника высокоэнергетичных электронов от суб-гигаэлектронвольтных до мультигигаэлектронвольтных энергий с хорошей коллимированностью и приемлемой монохроматичностью для практических приложений. Однако полный заряд генерируемого сгустка электронов, ускоряемых в баббле, невысок – типично на мульти-пикокулонном уровне, тогда как целый ряд обсуждаемых практических приложений не требует таких высоких энергий электронов и качества генерируемого пучка, но имеет запрос на гораздо большее число ускоренных частиц, пусть и с меньшей энергией, порядка 100 МэВ. Этому требованию удовлетворяют характеристики электронов, достига-

 $<sup>^{1)}{\</sup>rm e\text{-}mail:}$  by chenkovvy@lebedev.ru

емые при распространении импульса лазерного света в режиме релятивистского самозахвата (PPC), предложенном и идентифицированном в работах [5, 4], где соответствующий заряд электронов оказывается на мульти-нанокулонном уровне.

Исследование с использованием трехмерного моделирования методом "частица-в-ячейке" (PIC, "particle in cell") [4, 5] выявило возможность реализации распространения релятивистски интенсивного лазерного импульса в однородной плазме с околокритической плотностью в виде солитона, как движущейся со скоростью, близкой к скорости света плазменной каверны, заполненной лазерным светом ("лазерная пуля"), с вытолкнутыми его электромагнитным давлением электронами. Лазерная пуля устойчиво проходит расстояние порядка десяти рэлеевских длин в рассматриваемой достаточно плотной плазме, пока из-за потерь не происходит полное истощение лазерного импульса. В РРС дифракционная расходимость сбалансирована релятивистской нелинейностью среды таким образом, что самофокусировки на ось не происходит и самосогласованно устанавливающийся радиус каверны остается практически неизменным в течение всего времени распространения импульса, вплоть до его истощения. При этом длина лазерного импульса заметно превышает как плазменную длину волны, так и его ширину. Такой режим распространения, по существу, аналогичен выявленному почти 60 лет назад самозахвату слабых лазерных импульсов с кубической нелинейностью [6-8], и поэтому был назван релятивистским самозахватом [5, 4]. Отметим, что формирование световой пули свойственно и конденсированным средам [9], но если в них ее формирование происходило по мере распространения излучения, то в рассматриваемом случае сильных световых полей входящий в плазму импульс так и распространялся на большие расстояния, практически сохраняя, благодаря релятивистской нелинейности, свою исходную форму.

В настоящей работе мы дополняем исследование [5, 4] изучением устойчивости реализации РРС применительно к случаю, когда граница на входе лазерного импульса не резкая, а имеет вид преплазмы. Дело в том, что типичной мишенью для кильватерного ускорения электронов служит газовая микроструя и если однородность плотности газа по ее сечению – вопрос уже решенный, то вблизи границы с вакуумом имеет место естественная неоднородность. Современные технологии допускают тонкое манипулирование профилем плотности газовой мишени [10–12], однако такое манипулирование вряд ли будет возможным на масштабах нескольких лазерных длин волн. В этой

связи, естественно, возникают вопросы, не разрушит ли преплазма РСС и, если нет, то насколько может снизиться его эффективность в плане возможности генерации электронных сгустков с зарядом, сопоставимым с получаемым в однородной плазме. Здесь мы численно исследуем, как конечный градиент плотности и месторасположение фокуса на профиле плотности влияют на формирование лазерной пули. Мы ставим своей целью определить условия, обеспечивающие устойчивое вхождение лазерного импульса в мишень и максимальный заряд ускоренного сгустка высокоэнергетичных электронов, а также условия, при которых РРС не реализуется, рассматривая два характерных случая: (1) резкий градиент плотности, с градиентной длиной L порядка рэлеевской длины, на входе в среду лазерного импульса и (2) существенно более плавный градиент.

2. Проведенное в последние годы трехмерное численное PIC моделирование показало, что устойчивое распространение в однородной плазме релятивистски интенсивного лазерного импульса, т.е. с безразмерной амплитудой поля  $a_0 \gg 1$ , на расстояние, много большее рэлеевской длины, требует определенного согласования между поперечным размером распространяющегося баббла, плотностью плазмы и интенсивностью лазерного импульса (см., например, [4, 13–15]). Именно только при этом оказывается возможным эффективное ускорение электронов, самоинжектирующихся в плазменную каверну в условиях полной кавитации электронов, что типично для рассматриваемого ультра-релятивистского случая,  $a_0 \gg 1$ . Впоследствии было доказано, что выявленное в численных экспериментах согласование лазерно-плазменных параметров, с нелинейнооптической точки зрения, отвечает самозахватной моде в плазме с релятивистской нелинейностью [5, 16]. Обнаруженное лазерно-плазменное согласование записывается в виде соотношения

$$R \simeq \alpha \frac{c}{\omega_p} \sqrt{a_0} = \alpha \frac{c}{\omega} \sqrt{a_0 \frac{n_c}{n_e}},\tag{1}$$

где  $\omega$  – частота лазера,  $n_e$  – электронная плотность плазмы,  $a_0 = eE_L/m_e\omega c$  – стандартная безразмерная амплитуда ( $E_L$ ) лазерного поля,  $n_c$  – нерелятивистская критическая плотность для лазерного излучения,  $\omega_p$  – стандартная (ленгмюровская) частота плазмы, R – самосогласованный радиус каверны, а  $\alpha$  – численный коэффициент порядка единицы. Таким образом, только определенный радиус каверны для заданных интенсивности и плотности плазмы отвечает стабильному распространению импульса. Результаты моделирования показали:  $\alpha \approx 1.12$  [13] и  $\alpha \approx 2$  [14, 15, 4]. С физической точки зрения соотношение (1) следует из согласования дифракционного угла ( $\theta_d$ ) расходимости лучей лазерного света из фокального пятна радиуса R с числовой апертурой (NA) релятивистского плазменного волновода с вытолкнутыми из сердцевины электронами (в плазме, описываемой релятивистским показателем преломления  $n_p$ )

$$\theta_d \simeq NA, \text{ где } \theta_d = \frac{2c}{\omega R} \text{ и } NA = \sqrt{1 - n_p^2}, \quad (2)$$

$$n_p = \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\gamma_e \omega^2}}, \text{ где } \gamma_e = \sqrt{1 + \frac{a_0^2}{2}} \simeq \frac{a_0}{\sqrt{2}}.$$

Такое согласование качественно отвечает теоретичекой модели [5, 16]. При этом условие релятивистского самозахвата (1), благодаря устойчивому распространению лазерного импульса, обеспечивало генерацию ультрарелятивистских электронов с максимальным полным зарядом.

**3.** Мы изучили ускорение электронов в режиме лазерной пули с помощью трехмерного PIC-моделирования высокопроизводительным релятивистским электромагнитным кодом VSim, подобно [4, 5], с тем отличием, что лазерный импульс падает на однородный слой плазмы с экспоненциальным профилем электронной плотности преплазмы,  $n_e(x) \propto \exp(x/L)$  (см. рис. 1). Целью являлось



Рис. 1. (Цветной онлайн) Лазерно-плазменная геометрия численного моделирования для пологого (кривая *1*) и резкого (кривая *2*) профилей плотности преплазмы

выяснение, каким образом и насколько можно приблизиться к получению высокоэнергетичного (> 30 МэВ) электронного сгустка с зарядом (числом частиц), близким к тому, который достигается в случае однородной плазмы [4, 5]. Лазерный импульс с энергией  $\simeq 4 \, \text{Дж}$ , линейно поляризованный по оси z, распространялся вдоль оси x и имел следующие характеристики: длину волны  $\lambda = 2\pi c/\omega_l = 1$  мкм,

гауссовскую временную огибающую длительности по полувысоте (FWHM)  $\tau = 30 \, \mathrm{dc}$  (характерную длину ст = 9 мкм) и гауссовский амплитудный профиль фокального пятна с FWHM размером, d, который варьировался от  $3\lambda$  до  $6\lambda$ . Например, для  $d = 4\lambda$ безразмерная амплитуда лазерного поля,  $a_0 = 24$ , соответствовала максимальной интенсивности лазерного импульса  $\simeq 8 imes 10^{20} \, \mathrm{Br/cm^2}$  и мощности 135 ТВт, которая сейчас достигается на большом числе установок. Лазерный импульс фокусировался на различные участки неоднородного профиля плазменной мишени, состоящей из электронов и ионов гелия, чтобы определить оптимальное положение фокуса, которое приводило бы к наименьшему отличию энергии и заряда ускоренных электронов от идеального случая однородной мишени с резкой границей. Плотность электронов однородной части мишени соответствовала условию согласования (1),  $n_e \simeq 0.1 n_c$ , которое в случае однородной полуограниченной плазмы обеспечивало стабильное распространение лазерного импульса на многих рэлеевских длинах и генерацию сгустка электронов с максимальным полным зарядом ( $Q \lesssim 8\,\mathrm{nKr}$ ) ультрарелятивистских частиц ( $\varepsilon_e \gtrsim 30 \,\mathrm{MəB}$ ) [4, 5]. Моделирование проводилось с использованием метода движущегося окна с шагом пространственной сетки  $0.02\lambda$  ×  $0.1\lambda$  ×  $0.1\lambda$  в окне моделирования  $X \times Y \times Z = 58\lambda \times 44\lambda \times 44\lambda.$ 

Как видно из табл. 1А, в случае относительно небольшой преплазмы,  $L = 10 \lambda$  (1 вариант), с характерным масштабом неоднородности, меньшим рэлеевской длины,  $X_R \approx d^2/\lambda$ , фокусировка лазерного излучения в пятно  $d \simeq 4$  мкм (как в случае однородной плазмы [5]) в определенную область преплазмы не приводит к сколько-нибудь существенному изменению заряда и полной энергии (коэффициента конверсии) ускоряемого сгустка электронов высоких энергий ( $\varepsilon_e \gtrsim 30 \,\mathrm{MeB}$ ) по сравнению со случаем однородной мишени, также иллюстрируемым табл. 1Б, отличаясь от него лишь в пределах  $\sim 20$  %. Эта область плотностей выделена на рис. 1 штриховкой  $(-20\lambda \lesssim x \lesssim -5\lambda)$ . Интерес к энергиям электронов  $\varepsilon_e \gtrsim 30 \,\mathrm{M}$ эВ связан с возможностью их использования для ряда важных приложений [17]. Таблица 1 также показывает, что коррекцией размера фокального пятна можно добиться вообще отсутствия снижения полного заряда высокоэнергетичных электронов и коэффициента конверсии в быстрые электроны (табл. 1В), которые даже могут быть несколько выше, чем в случае однородной мишени (см. случай d = 5.6 мкм). Последнее достигается при согласовании размера пятна фокусировки с плотностью плазмы в фокусе для заданной энергии импульса (4Дж) и более плавным вхождением импульса в неоднородную плазму, тогда как для полуограниченной среды возникают некоторые потери при "ударе" импульса по мишени. Наиболее оптимальные режимы отмечены полужирным шрифтом в табл. 1. Отметим, что при фокусировке света на область x = -10 мкм оптимальный диаметр фокального пятна d = 5.6 мкм как раз отвечает локальному выполнению условия согласования (1).

**Таблица 1.** Характеристики эффективности  $(\eta, Q)$  генерации высокоэнергетичных электронов для разных условий фокусировки

А	L = 10 мкм, $d = 4$ мкм	
Положение	Конверсия в	Заряд (нКл)
фокуса	электроны	электронов
(мкм)	$> 30 \text{ M} \Im B$	$> 30 \mathrm{M}\Im\mathrm{B}$
x = -20	$\eta=17.0\%$	Q = 6.7
x = -10	$\eta=17.9\%$	Q=7.0
x = -5	$\eta=15.8\%$	Q = 6.9
x = 0	$\eta = 14.4\%$	Q = 6.4
Б	L = 0 мкм, $d = 4$ мкм	
x = -10	$\eta=18.9\%$	Q = 7.9
$0^{[5]}$	$\eta = 19.1\%$	Q=7.0
x = 10	$\eta=14.9\%$	Q = 7.0
В	L = 10 мкм, $x = -10$ мкм	
d = 3	$\eta = 15.7\%$	Q = 7.2
d = 4	$\eta=17.9\%$	Q = 7.0
d=5	$\eta=19.6\%$	Q = 7.0
d = 5.6	$\eta=19.5\%$	Q = 8.0

На рисунке 2 показано вхождение лазерного импульса из вакуума в мишень с преплазмой (вверху и внизу) и без (посредине) для двух последующих моментов времени (слева – направо). Для мишени с преплазмой при оптимальной фокусировке в пятно  $(d = 5.6\lambda)$  на плоскость  $x = -10\lambda$  (рис. 2, вверху) видно, что вошедший лазерный импульс (верхний, справа) испытывает несколько меньшие возмущения по сравнению с тем, что имеет место при менее удачной фокусировке (рис. 2, посредине и внизу, справа). Такие возмущения выражаются в том, что в последних случаях импульс теряет свою энергию сильнее и не так эффективно ускоряет электроны, причем качество пучка ускоренных электронов ухудшается как для однородной (рис. 2, посредине), так и неоднородной (рис. 2, внизу) мишеней. Если в оптимальном случае потери лазерной энергии в области плазменного канала ( $|y| < 3\lambda$ ) пренебрежимо малы, то для однородной плазмы они составляют (5-7) % (посредине, справа), а для случая  $d=4\lambda$  и  $x=10\lambda$ уже около 20 %.

Спектр высокоэнергетичных электронов (серая кривая) для мишени с короткой преплазмой в условиях оптимальной фокусировки на нее лазерного излучения ( $d = 5.6\lambda$ ,  $x = -10\lambda$ ) показан на рис. 3 в сравнении со случаями менее удачной фокусировки  $(d = 4\lambda, x = -5\lambda)$  и однородной мишени (прерывистая кривая). По числу частиц и характерному диапазону энергий этот спектр демонстрирует такую же эффективную, и даже слегка лучшую, генерацию высокоэнергетичных электронов (ср. соответствующие кривые в диапазоне энергий 150 МэВ  $\gtrsim \varepsilon_e \gtrsim 30 \,\mathrm{M}$ эВ), как и в случае однородной полуограниченной плазмы, и такую же, платообразного вида, форму, свидетельствующую об обогащении спектра высокоэнергетичными частицами. Отметим, что при фокусировке лазера на плоскость  $x = -20\lambda$  в самосогласованное пятно размером  $d = 7.8\lambda$  полный заряд высокоэнергетичных электронов и коэффициент конверсии оказываются существенно ниже, чем в случае  $d = 5.6\lambda$ ,  $x = -10\lambda$ . В этом случае для рассматриваемого градиента плотности исходное пятно фокусировки ( $d = 7.8\lambda$ ) оказывается слишком большим, чтобы самосогласованно уменьшаться по мере проникновения импульса в плазму, не допуская его филаментации, как в случае  $d = 5.6\lambda$ ,  $x = -10\lambda$ .

В целом, в случае рассмотренного короткой преплазмы, не превышающего по размеру рэлеевской длины, фокусировка на него лазерного излучения не приводит к существенному изменению основных характеристик генерируемого электронного пучка, причем при соответствующем подборе области фокусировки и размера фокального пятна возможно и небольшое улучшение их характеристик. Такая стабильность в генерации электронного сгустка хорошего качества связана с подавлением филаментационной неустойчивости для размеров фокального пятна в пределах, определяемых условием РРС (1), и пренебрежимой малостью потерь энергии лазера в короткой плазменной короне,  $L_d \gg L$ . Длина истощения,  $L_d$ , находилась в [17],

$$L_d \simeq a_0(c\tau) n_c/8n_e \,, \tag{3}$$

соответствуя теоретической оценке [18] по порядку величины и скейлингу от лазер-плазменных параметров. Например, для случая  $d = 5.6\lambda$  ( $a_0 \simeq 17$ ) ( $x = -10\lambda$ ) имеем  $L_d \simeq 190$  мкм  $\gg L = 10$  мкм.

4. Мы также провели исследование, подобное вышеприведенному, но для случая значительно более плавного изменения профиля плотности плазмы,  $L = 50\lambda$ , который, безусловно, легче реализу-



Рис. 2. (Цветной онлайн) Вхождение в мишень лазерного импульса в случае короткой преплазмы для фокусировки с  $d = 5.6\lambda$ ,  $x = -10\lambda$  (вверху) и  $d = 3\lambda$ ,  $x = -10\lambda$  (внизу), а также для полуограниченной однородной плазмы для фокусировки с  $d = 4\lambda$ ,  $x = 10\lambda$  (посредине)

ем на практике. В отличие от короткой преплазмы, чтобы добиться отсутствия потерь в заряде и коэффициенте конверсии в высокоэнергетичные электроны (>30 MэB) требуется подгонка размера лазерного пятна под электронную плотность плазмы в области фокуса, в соответствии с (1). Результаты численного PIC моделирования иллюстрируются рис. 4, на котором показан полный заряд электронного сгустка с энергией частиц > 30 МэВ в зависимости от расстояния для нескольких вариантов фокусировки четырехджоульного лазерного импульса на неоднородный профиль плотности плазмы с указанием соответствующих коэффициентов конверсии,  $\eta$ . На рисунке 4 четко прослеживается улучшение эффективности ускорения электронов в однородной части мишени (x > 0) при оптимизации фокусировки (см. кривые снизу вверх). В целом, выход высокоэнергетичных электронов и коэффициент конверсии оказываются более критичны к выбору условий фокусировки на неоднородный профиль плотности, чем в



Рис. 3. Спектр высокоэнергетичных электронов (пунктирная кривая) в неоднородной мишени с короткой преплазмой ( $L = 10\lambda$ ) для оптимальной фокусировки лазерного излучения при  $d = 5.6\lambda$  и  $x = -10\lambda$  в сравнении со спектрами для менее удачной фокусировки на профиль плотности ( $d = 4\lambda$  и  $x = -5\lambda$ ; черная сплошная кривая) и для однородной мишени ( $d = 4\lambda$  и x = 0; серая кривая)



Рис. 4. Заряд сгустка высокоэнергетичных электронов, генерируемых в неоднородной мишени с характерным масштабом неоднородности плотности,  $L = 50\lambda$  для следующих вариантов фокусировки:  $d = 7.8\lambda$ ,  $x = -100\lambda$ ,  $\eta = 21.3$  (пунктирная кривая);  $d = 5.6\lambda$ ,  $x = -50\lambda$ ,  $\eta = 12.7$  (сплошная черная кривая);  $d = 4\lambda$ ,  $x = -50\lambda$ ,  $\eta = 8.5$  (серая кривая)

случае короткой преплазмы. Вместе с тем, при оптимальном ( $d = 7.8\lambda$  и  $x = -100\lambda$ ) условии согласования (1) по-прежнему возможно добиться высокого полного заряда ускоренных электронов и высокого коэффициента конверсии, не отличающихся от значений для полуограниченной однородной мишени и даже несколько их превосходящих. Это связано с тем, что, несмотря на существенное возрастание лазерных потерь, длина истощения импульса (1) в оптимальном случае все еще остается существенно больше расстояния от области фокуса до однородной части мишени,  $L_d > |x|$ . Это подтверждает устой-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

чивость РРС, отвечающего структуре типа солитона в бездиссипативной среде [19]. На рисунке 5 оп-



Рис. 5. Спектр высокоэнергетичных электронов, генерируемых в неоднородной плазме ( $L = 50\lambda$ ) для условий оптимальной фокусировки,  $d = 7.8\lambda$  и  $x = -100\lambda$  (черная прерывистая кривая) в сравнении со спектром для однородной плазмы [20] (серая кривая)

тимальный спектр ускоренных электронов для случая преплазмы сравнивается со спектром для случая однородной среды, из сравнения которых легко убедиться, что при правильно выбранной фокусировке наличие преплазмы не ухудшает параметры ускоренных электронов. Как и в случае короткой преплазмы, мы отмечаем необходимость нахождения оптимального положения фокуса лазера с самосогласованным размером горячего пятна, (1), на неоднородном профиле плотности для реализации "идеального" РРС. При этом, благодаря условию согласования (1), не требуется иметь такое же малое фокальное пятно, как в случае однородной плазмы, что благоприятно для эксперимента.

5. Подводя итог проведенному исследованию, отметим, что нами получен ответ на возможность реализации РРС лазерного импульса в неоднородной плазме, что важно для проведения соответствующих целенаправленных экспериментов. Если для стандартного кильватерного ускорения в разреженной газовой плазме этот вопрос давно снят проведенными экспериментами, то для рассматриваемого случая мишени с околокритической плотностью было неясно, насколько в реальной ситуации неоднородной плазмы можно рассчитывать на преимущество получения электронных сгустков ультрарелятивистских энергий с рекордным полным зарядом при использовании обсуждаемого режима самозахвата лазерного света. Теперь можно утверждать, что РРС может быть реализован при фокусировке мощного лазерного импульса на мишень с околокритической плотностью, естественно, имеющей неоднородный профиль на границе с вакуумом. Это обосновывает возможность создания эффективного источника высокоэнергетичных электронов для таких социально значимых приложений, как глубокая гаммарадиография плотных объектов [20], электронная радиотерапия [21] и ядерная фармакология [22]. При этом важно отметить, что если в случае однородной мишени достижение необходимой для РРС высокой интенсивности импульса требует фокусировки в достаточно малое пятно, то на естественно возникающем профиле плотности на границе мишень-вакуум достаточно иметь пятно большего размера, что легче реализовать в эксперименте.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда # 17-12-01283.

- T. Tajima and J. M. Dawson, Phys. Rev. Lett. 43, 267 (1979).
- E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, and A. Ting, Rev. Mod. Phys. 81, 1229 (2009).
- A. Pukhov and J. Meyer-ter-Vehn, Appl. Phys. B 74, 355 (2002).
- M.G. Lobok, A.V. Brantov, D.A. Gozhev, and V.Yu. Bychenkov, Plasma Phys. Control. Fusion 60, 084010 (2018).
- V. Yu. Bychenkov, M. G. Lobok, V. F. Kovalev, and A. V. Brantov, Plasma Phys. Control. Fusion 61, 124004 (2019).
- В. И. Таланов, Известия ВУЗов. Радиофизика 7, 564 (1964).
- R.Y. Chiao, E. Garmire, and C. Townes, Phys. Rev. Lett. 13, 479 (1964).
- С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, Р. В. Хохлов, ЖЭТФ 50, 1537 (1966).

- Е. Д. Залозная, А. Е. Дормидонов, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, В. П. Кандидов, Письма в ЖЭТФ 113, 817 (2021).
- M.-W. Lin, Y.-M. Chen, C.-H. Pai, C.-C. Kuo, K.-H. Lee, J. Wang, S.-Y. Chen, and J.-Y. Lin, Phys. Plasmas 13, 110701 (2006).
- J. Faure, C. Rechatin, O. Lundh, L. Ammoura, and V. Malka, Phys. Plasmas 17, 083107 (2010).
- B. Guo, Z. Cheng, S. Liu, X.N. Ning, J. Zhang, C.H. Pai, J.F. Hua, H.H. Chu, J. Wang, and W. Lu, Plasma Phys. Control. Fusion **61**, 035003 (2019).
- S. Gordienko and A. Pukhov, Phys. Plasmas 12, 043109 (2005).
- W. Lu, M. Tzoufras, C. Joshi, F.S. Tsung, W.B. Mori, J. Vieira, R.A. Fonseca, and L.O. Silva, Phys. Rev. Accel. Beams 10, 061301 (2007).
- P. E. Masson-Laborde, M. Z. Mo, A. Ali, S. Fourmaux, P. Lassonde, J. C. Kieffer, W. Rozmus, D. Teychenné, and R. Fedosejevs, Phys. Plasmas 21, 123113 (2004).
- V. F. Kovalev and V. Yu. Bychenkov, Phys. Rev. E 99, 043201 (2019).
- M.G. Lobok, A.V. Brantov, and V.Yu. Bychenkov, Phys. Plasmas 26, 123107 (2019).
- C. D. Decker, W. B. Mori, K. C. Tzeng, and T. Katsouleas, Phys. Plasmas 3, 2047 (1996).
- 19. В. Ф. Ковалев, В. Ю. Быченков, Изв. ВУЗов. Радиофизика, **63**, 825 (2020).
- M.G. Lobok, A.V. Brantov, and V.Yu. Bychenkov, Phys. Plasmas 27, 123103 (2020).
- L. Labate Luca, D. Palla, D. Panetta, F. Avella,
   F. Baffigi, F. Brandi, F. Di Martino, L. Fulgentini,
   A. Giulietti, P. Köster, D. Terzani, P. Tomassini,
   C. Traino, and L. A. Gizzi, Sci. Rep. 10, 17307 (2020).
- 22. Zh. Ma, H. Lan, W. Liu, S. Wu, Y. Xu, Zh. Zhu, and W. Luo, Matter Radiat. Extremes 4, 064401 (2019).

#### Stochastization of long living spin-cyclotron excitations in a spin-unpolarised quantum Hall system

S. Dickmann<sup>1)</sup>, B. D. Kaysin

Institute of Solid State Physics, Russian Academy of Sciences, 142432 Chernogolovka, Russia

Submitted 22 September 2021 Resubmitted 6 October 2021 Accepted 7 October 2021

DOI: 10.31857/S1234567821220055

We address the kinetics of long-lived cyclotron spinflip exitations (CSFEs, actually magnetoexcitons) in a purely electronic quantum Hall system with filling factor  $\nu = 2$ . The initial coherent state of CSFEs with two-dimensional wave vector  $\mathbf{q} = 0$  induced by laser pumping is stochastized over time due to emission of acoustic phonons. The elementary emission process requires participation of two magnetoexitons, so the effective rate of phonon emission is proportional to the excitation density squared, and the stochastization process occurs nonexponentially with time.

It is known that the lifetime of CSFEs (see [1, 2]) reaches a record magnitude, 1 ms, in a spin-unpolarised quantum Hall system [3]. In this paper we study the CSFE stochastization, i.e. decay of an initial coherent multi-excitonic state, where all excitations have equal 2D momenta  $\mathbf{q} = 0$ , into a diffusive incoherent state provided that the total number of excitations remains constant. When the "zero momentum" ensemble subsequently becomes stochastic, the main mass of excitons in the K-space diffuses to the vicinity of the CSFE energy dispersion minimum  $\mathcal{E}_m$ , where this energy counted from its value at the zero momentum is  $\mathcal{E}_q \sim \mathcal{E}_m < 0$ at  $q \sim q_m \approx 0.9/l_B$  ( $l_B$  is the magnetic length), and finally CSFEs completely relax/annihilate therefrom. The stochastization occurs without any change of the spin state, thus, certainly, it is much faster than the total CSFE-relaxation process. However, the stochastization is also associated, like relaxation, with emission of phonons and limited by the laws of conservation of energy and momentum. In the translationary invariant system, the one-exciton process associated with the emission of a phonon is kinematically forbidden: the energy and momentum preservation conditions are never fulfilled in the case.

We use an approach of "excitonic representation" (for more details see, e.g., [2] and [4]), which main idea is to abandon the basis of Fermi one-electron states and switch to the basis of so-called exciton states that diagonalize some essential part of the Coulomb interaction. Besides, in the case of CSFE, exciton states are eigen states of the Coulomb Hamiltonian to the first order in parameter representing ratio of the characteristic Coulomb energy to the cyclotron one, and allow to calculate the dispersion function  $\mathcal{E}_q$ . Exciton states, in contrast to single electron states, possess a natural quantum number, namely, the 2D momentum whose existence is the consequence of the translational invariance.

We consider the situation where the CSFE ensemble represents a rarefied gas: the number of excitons N is much smaller than  $\mathcal{N}_{\phi}$  (number of magnetic flux quanta). Our two-excitonic process is transition from the initial coherent state  $|N\rangle$ , where all CSFEs are zero-momentum magnetoexcitons, to the state  $|N; \mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2\rangle$ , where two of them acquire nonzero momenta  $\mathbf{q}_1$  and  $\mathbf{q}_2$ . This transition obeys the momentum and energy conservation laws:

$$\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 - \mathbf{q} = 0 \tag{1}$$

and  $\mathcal{E}_{q_1} + \mathcal{E}_{q_1} + \epsilon_{\rm ph}(\mathbf{k}) = 0,$  (2) where  $\epsilon_{\rm ph}$  is the acoustic phonon energy, and  $\mathbf{k} = (-\mathbf{q}, k_z)$  is the phonon wave vector.

Using the excitonic representation approach, one can express any interaction in terms of special exciton operators. The interaction of electrons with 3D acoustic phonons is described by Hamiltonian proportional to the phonon annihilation operator  $\hat{\mathcal{P}}_{\mathbf{k},s}$  (see [5–7]):

$$\hat{H}_{\text{e-ph}} = \sum_{\mathbf{q}, k_z, s} \hat{\mathcal{P}}_{\mathbf{k}, s} \mathcal{H}_{\text{e-ph}}(\mathbf{q}, s) + \text{H.c.}$$
(3)

(index s denotes possible phonon polarizations), where  $\mathcal{H}_{e-ph}(\mathbf{q}, s)$  is the electron-phonon vertex averaged over transverse coordinate z in the quantum well. With the help of the excitonic representation we calculate the transition matrix element of operator (3) between the initial state  $|N\rangle$  and the final one  $\hat{\mathcal{P}}_{\mathbf{k},s}^{\dagger}|N;\mathbf{q}_{1},\mathbf{q}_{2}\rangle$ ,

$$\mathcal{M}_{\mathbf{k},s,\mathbf{q}_{1},\mathbf{q}_{2}} = \frac{\langle \mathbf{q}_{2},\mathbf{q}_{1};N|\hat{\mathcal{P}}_{\mathbf{k},s}\hat{H}_{\mathrm{e-ph}}|N\rangle}{\left(\langle N|N\rangle\langle \mathbf{q}_{2},\mathbf{q}_{1};N|N;\mathbf{q}_{1},\mathbf{q}_{2}\rangle\right)^{1/2}},\quad(4)$$

and, thus, find the probability of transition per unit of time according to the well-known formula

$$W_{\mathbf{k},s,\mathbf{q}_1,\mathbf{q}_2} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \mathcal{M}_{\mathbf{k},s,\mathbf{q}_1,\mathbf{q}_2} \right|^2 \delta[\mathcal{E}_{q_1} + \mathcal{E}_{q_2} + \epsilon_{\rm ph}(\mathbf{k})].$$
(5)

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: dickmann@issp.ac.ru

If we perform the summation

$$R_{\mathbf{p}} = \sum_{\mathbf{k}, s, \mathbf{q}_2} W_{\mathbf{k}, s, \mathbf{p}, \mathbf{q}_2},\tag{6}$$

we obtain the total probability of transition to a state, where one of "nonzero" magnetoexcitons has a fixed wave vector:  $\mathbf{q}_1 = \mathbf{p}$  (or  $\mathbf{q}_2 = \mathbf{p}$ ).

The value  $R_{\mathbf{p}}$  (6) represents the rate of appearance of a magnetoexciton with momentum  $\mathbf{p}$  due to the considered process of direct transition from the initial coherent state  $|N\rangle$  to any state  $|N; \mathbf{p}, \mathbf{q}\rangle$  with unfixed number  $\mathbf{q}$ . When studying the problem kinetically, it will mean the rate of filling of a "one-particle" magnetoexcitonic state with specific momentum  $\mathbf{p}$  (in fact,  $R_{\mathbf{p}}$  does not depend on the  $\mathbf{p}$  direction). It is obvious that the total rate induced by phonon-emission,  $R = \sum_{\mathbf{p}} R_p$ , is, on the one hand, the rate of the coherent state  $|N\rangle$ decay/stochastization, and, on the other hand, the rate of appearance of nonzero magnetoexcitons in the system. The physical meaning of the value R allows us to consider the kinetic equation:

$$dN/dt = -R \equiv -\frac{N^2}{\mathcal{N}_{\phi}\mathcal{T}}.$$
(7)

For our specific case, when B = 4.18 T (cf. [8]), we get numerical value  $\mathcal{T} \approx 0.88 \text{ ns.}$  Solving Eq. (7), we obtain the time law of change of the number of q = 0 excitations:

$$n(t) = n(0)/[1 + t n(0)/\mathcal{T}],$$
 (8)

where  $n(t) = N/N_{\phi}$  is the concentration of zeromomentum CSFEs, while  $n(0) = N(0)/N_{\phi}$  is the given total CSFE concentration in the system. When dividing the 'partial' rate  $R_p$  by the total one R we obviously obtain a "one-particle" nonzero magnetoexciton distribution function,  $F_p = N_{\phi}R_p/R$  ( $F_p$  is normalized as:  $\int F_p p dp = 1$ ). Value  $F_p$  is the final distribution function when the stochastization is completed.

It has been assumed that the coherent ensemble of zero-momentum excitons is the only generator of nonzero magnetoexcitons with neglecting any subsequent evolution of the emerging nonzero magnetoexcitonic ensemble. This approach should be suitable if the relative nonzero CSFE concentration is small and, in addition, the temperature is sufficiently low to ignore any phonon-absorption processes. Thermalization is a much longer process than the stochastization considered. We compare the distribution function established due to stochastization with a thermodynamically equilibrium distribution corresponding to some temperature. The latter should be Boltzmann due to the rarefaction of magnetoexiton gas  $[N(0) \ll N_{\phi}]$ 

$$F_p^{(T)} = e^{-\mathcal{E}_p/T} \Big/ \int_0^\infty e^{-\mathcal{E}_p/T} p dp \,. \tag{9}$$

In Figure 1 we demonstrate both distributions equally normalized. In the  $T \to 0$  limit  $F_p^{(T)} \propto \delta(p-q_m)$ .



Fig. 1. (Color online) The result of calculating the distribution function  $F_p$  of CSFEs emerging due to the stochastization process (the black line; see text), and the thermodynamically equilibrium distribution functions  $F_p^{(T)}$ at different temperatures (9). All graphs correspond to B = 4.18 T

At temperature  $T \sim 0.5$  K, the stochastization distribution  $F_p$  becomes qualitatively similar to the thermodynamically equilibrium one  $F_p^{(T)}$ .

So, the presented model results in a nonexponential decay of the initial coherent CSFE ensemble. The time dependence of the decay (8) is parameterized by time  $\mathcal{T}$  (Fig. 1), e.g., a tenfold decrease will take time  $\approx 10\mathcal{T}/n(0)$ , therefore, for  $n(0) \leq 0.01$  it occurs during  $\gtrsim 1 \,\mu\text{s}$  (cf. the 3D characteristic electron-phonon scattering time [9] which is  $\sim 0.1 \text{ ps}$  if  $q \sim k_z \sim 1/l_B \sim 10^6 \text{ cm}^{-1}$ , and the CSFE lifetime which is  $> 50 \,\mu\text{s}$  at  $B = 4.18 \,\text{T}$  if estimated on the basis of the recent data [8]).

The research was supported by the Russian Science Foundation: grant RSF-21-12-00386.

This is an excerpt of the article "Stochastization of long living spin-cyclotron excitations in a spin-unpolarised quantum Hall system". Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S002136402122001X

- C. Kallin and B.I. Halperin, Phys. Rev. B 30, 5655 (1984).
- S. Dickmann and I.V. Kukushkin, Phys. Rev. B 71, 241310(R) (2005).
- 3. L.V. Kulik et al., Phys. Usp. 62, 865 (2019).
- S. Dickmann, L. V. Kulik, and V. A. Kuznetsov, Phys. Rev. B 100, 155304 (2019).
- S. V. Iordanskii and B. A. Muzykantskii, JETP **69**, 1006 (1989).
- 6. S. Dickmann and S. V. Iordanskii, JETP 83, 128 (1996).
- 7. S. Dickmann, Phys. Rev. B 61, 5461 (2000).
- 8. A.S. Zhuravlev et al., JETP Lett. 110, 284 (2019).
- V.F. Gantmakher and Y.B. Levinson, *Carrier Scat*taring in Metals and Semiconductors, North-Holland, Amsterdam (1987).

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

### Phase-coherent thermoelectricity in superconducting hybrids (Mini-review)

M. S. Kalenkov<sup>+1</sup>), A. D. Zaikin<sup>\*+</sup>

<sup>+</sup>I.E. Tamm Department of Theoretical Physics, P.N. Lebedev Physical Institute, 119991 Moscow, Russia

\*Institute for Quantum Materials and Technologies, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), 76021 Karlsruhe, Germany

Submitted 30 September 2021 Resubmitted 6 October 2021 Accepted 6 October 2021

DOI: 10.31857/S1234567821220067

For decades thermoelectricity in superconductors was and remains one of the most intriguing topics of modern condensed matter physics [1]. The essence of the so-called thermoelectric effect in metals is illustrated by a simple relation  $\mathbf{j} = \alpha \nabla T$  indicating that electric current  $\mathbf{j}$  can be generated by exposing the system to a thermal gradient  $\nabla T$ . Usually the latter effect remains quite small since contributions from electron-like and hole-like excitations are of the opposite sign and almost cancel each other. As a result, the thermoelectric coefficient  $\alpha$  turns out to be proportional to a small ratio between temperature T and the Fermi energy  $\varepsilon_F$ , i.e.  $\alpha \propto T/\varepsilon_F$ .

Quite unexpectedly, already first experiments with bimetallic superconducting rings [2–4] revealed the thermoelectric signal which magnitude exceeded theoretical estimates by several orders of magnitude. Later on large thermoelectric signals were also observed in multi-terminal hybrid superconducting-normalsuperconducting (SNS) structures [5–8] frequently called Andreev interferometers. Furthermore, the thermopower detected in these experiments was found to be periodic in the superconducting phase difference across the corresponding SNS junction. The latter observation (i) indicates that the thermoelectric signal in superconductors can be *phase coherent* and (ii) calls for establishing a clear relation between thermoelectric, Josephson and Aharonov–Bohm effects in systems under consideration. Both issues (i) and (ii) – along with an experimentally observed large magnitude of the thermoelectric effect – constitute the key subjects of our present review.

It follows from the above arguments that large thermoelectric effects can be expected provided electronhole symmetry is violated in some way. In this case the contributions from electron-like and hole-like excitations would not cancel each other anymore and, hence, the

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

thermoelectric coefficient  $\alpha$  would not be restricted by a small parameter  $T/\varepsilon_F$  and can become large.

Electron-hole asymmetry in superconducting hybrid structures can be realized by a number of physical mechanisms. As a simple example, let us consider a superconducting ring pierced by external magnetic flux  $\Phi_x$ and interrupted by a normal metal as it is schematically shown in Fig. 1. Quasiparticles propagating from



Fig. 1. (Color online) A simple setup illustrating electronhole symmetry breaking due to Andreev reflections (trajectory b). The setup consists of a superconducting ring pierced by external magnetic flux  $\Phi_x$  and attached to a piece of a normal metal

a normal metal towards a superconducting ring eventually hit either one NS interface (trajectory a) or both of them (trajectory b). In either case an incoming electron with subgap energy may be Andreev-reflected back as a hole. For quasiparticles propagating along the trajectory a the probability for this reflection process equals identically to that for the inverse process, i.e.  $\mathcal{R}_a^{e-h} = \mathcal{R}_a^{h-e}$ . At the same time, it is straightforward to demonstrate [9] that for electrons following the trajectory b the above equation does not hold anymore, i.e.  $\mathcal{R}_b^{e-h} \neq \mathcal{R}_b^{h-e}$  provided  $\Phi_x \neq \Phi_0 n/2$  (where  $\Phi_0$  is the superconducting flux quantum) implying that scattering on two NS interfaces generates electron-hole symmetry violation in our

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: kalenkov@lpi.ru

hybrid structure. This electron-hole asymmetry yields a large thermoelectric effect in the system under consideration [9].

Likewise, one can demonstrate that spin-sensitive electron scattering in superconductors doped with point-like magnetic impurities [10] or containing spinactive interfaces [11–13] may generate electron-hole symmetry breaking which in turn yields dramatic enhancement of the thermoelectric effect. Electron-hole asymmetry accompanied by large scale thermoelectric effects are also predicted to occur in superconductorferromagnet hybrids with the density of states spin split by the exchange and/or Zeeman fields [14, 15]. These theoretical predictions were verified in experiments with superconductor-ferromagnet tunnel junctions in high magnetic fields [16] where large thermoelectric currents were observed.

In the remaining part of our review we focus our attention on the phase-coherent nature of thermoelectric effects observed in multi-terminal superconductingnormal hybrid structures. Such phase coherence manifests itself in a periodic dependence of the thermopower  $\mathcal{S}$  on the applied magnetic flux  $\Phi_x$  indicating their close relation to Josephson and Aharonov-Bohm effects [17]. We demonstrate that coherent oscillations of the thermopower are controlled by a number of contributions originating from these two effects as well as from electron-hole asymmetry [18]. The relative weight of these contributions depends on the relation between temperature, voltage bias, and an effective Thouless energy of the setup. We particularly emphasize the role of the system topology that may have a dramatic impact on the behavior of  $\mathcal{S}(\Phi_x)$  in a qualitative agreement with experimental observations [5–8].

We also analyze a nontrivial interplay between nonequilibrium effects and long-range quantum coherence in superconducting hybrid nanostructures exposed to a temperature gradient. In particular, we demonstrate that dc Josephson current in multi-terminal hybrid structures can be efficiently tuned and stimulated by applying a temperature gradient to such structures [19– 21]. At temperatures T exceeding the Thouless energy of our device both the supercurrent and the thermoelectric voltage signal may be strongly enhanced due to non-equilibrium low-energy quasiparticles propagating across the system without any significant phase relaxation. As a result, the supercurrent decays slowly (algebraically rather than exponentially) with increasing T and can be further enhanced by a proper choice of the circuit topology. At large values of the temperature gradient, the non-equilibrium contribution to the supercurrent may become as large as the equilibrium one at low T.

In addition, we predict a nontrivial current-phase relation and a variety of transitions between 0- and  $\pi$ -

junction states controlled by the temperature gradient as well as by the system geometry [19–21].

We hope that theoretical results and predictions discussed in our review not only shed light on some previously unresolved issues but also could help to put forward numerous applications of thermoelectric effects ranging from thermometry and refrigeration [22] to phase- coherent caloritronics [23].

This is an excerpt of the article "Phase-coherent thermoelectricity in superconducting hybrids". Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364021220021

- 1. V.L. Ginzburg, Rev. Mod. Phys. 76, 981 (2004).
- 2. N.V. Zavaritskii, JETP Lett. 19, 126 (1974).
- 3. C. M. Falco, Solid State Commun. 19, 623 (1976).
- D. J. van Harlingen, D. F. Heidel, and J. C. Garland, Phys. Rev. B 21, 1842 (1980).
- J. Eom, C.-J. Chien, and V. Chandrasekhar, Phys. Rev. Lett. 81, 437 (1998).
- A. Parsons, I.A. Sosnin, and V.T. Petrashov, Phys. Rev. B 67, 140502(R) (2003).
- P. Cadden-Zimansky, Z. Jiang, and V. Chandrasekhar, New J. Phys. 9, 116 (2007).
- C. D. Shelly, E. A. Matrozova, and V. T. Petrashov, Sci. Adv. 2, e1501250 (2016).
- M.S. Kalenkov and A.D. Zaikin, Phys. Rev. B 95, 024518 (2017).
- M. S. Kalenkov, A. D. Zaikin, and L. S. Kuzmin, Phys. Rev. Lett. **109**, 147004 (2012).
- M.S. Kalenkov and A.D. Zaikin, Phys. Rev. B 90, 134502 (2014).
- M. S. Kalenkov and A. D. Zaikin, J. Magn. Magn. Mater. 383, 152 (2015).
- M.S. Kalenkov and A.D. Zaikin, Phys. Rev. B 91, 064504 (2015).
- P. Machon, M. Eschrig, and W. Belzig, Phys. Rev. Lett. 110, 047002 (2013).
- A. Ozaeta, P. Virtanen, F.S. Bergeret, and T.T. Heikkilä, Phys. Rev. Lett. **112**, 057001 (2014).
- S. Kolenda, M. J.Wolf, and D. Beckmann, Phys. Rev. Lett. 116, 097001 (2016).
- P. E. Dolgirev, M. S. Kalenkov, and A. D. Zaikin, Phys. Rev. B 97, 054521 (2018).
- P.E. Dolgirev, M.S. Kalenkov, and A.D. Zaikin, Physica Status Solidi RRL 13, 1800252 (2019).
- M. S. Kalenkov, P. E. Dolgirev, and A. D. Zaikin, Phys. Rev. B 101, 180505(R) (2020).
- M. S. Kalenkov and A. D. Zaikin, Phys. Rev. B 103, 134501 (2021).
- M. S. Kalenkov and A. D. Zaikin, Eur. Phys. J. Special Topics **230**, 813 (2021).
- F. Giazotto, T. T. Heikkilä, A. Luukanen, A. M. Savin, and J. P. Pekola, Rev. Mod. Phys. 78, 217 (2006).
- A. Fornieri and F. Giazotto, Nat. Nanotechnol. 12, 944 (2017).

# Влияние многоэлектронных эффектов на структуру рентгеновских фотоэлектронных спектров Th 5*p*- и 5*s*-электронов ThO<sub>2</sub>

 $B. \Gamma. Яржемский^{+1)}, Ю. А. Тетерин^{*\times}, К. И. Маслаков^*, А. Ю. Тетерин^{\times}, К. Е. Иванов^{\times}$ 

+Институт общей и неорганической химии им. Н.С.Курнакова РАН, 119991 Москва, Россия

\*Химический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 119234 Москва, Россия

× Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт", 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 августа 2021 г. После переработки 6 октября 2021 г. Принята к публикации 6 октября 2021 г.

В фотоэлектронном спектре Th 5p оксида ThO<sub>2</sub> наблюдается аномальное спин-орбиталное расщепление и интенсивная сателлитная структура, а линия Th 5s очень сильно уширена и практически отсутствует. В настоящей работе методами взаимодействия конфигураций и спектральных функций (функций Грина) в базисе атомных хартри-фоковских функций проведены расчеты фотоэлектронных спектров Th 5p и Th 5s и получено хорошее согласие с экспериментом. На основании полученных результатов сделан вывод, что структура этих спектров определяется взаимодействиями состояний, возникающих при фотоионизации  $5p^{-1}$  и  $5s^{-1}$  с состояниями, включающими две дырки и один электрон в дискретном или непрерывном спектре:  $5d^{-2}5f(\varepsilon f)$  и  $5p^{-1}5d^{-1}(\varepsilon f)$ .

DOI: 10.31857/S1234567821220079

Введение. В спектрах рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) Ап 5*p*-электронов в соединениях актиноидов вместо спин-дублета наблюдается более сложная структура, а линию Ап 5*s*-электронов из-за возникновения такой структуры трудно наблюдать [1, 2]. Поскольку торий в ThO<sub>2</sub> не содержит неспаренных Th 5*f*-электронов, то наблюдаемая сложная структура спектров остовных электронов не связана с мультиплетным расщеплением, что существенно упрощает ее расчет и интерпретацию.

Сложная структура спектров Th 5*p*- и 5*s*электронов рассчитывалась методом взаимодействия конфигураций и было показано, что эта структура определяется взаимодействием основных конечных состояний (Th 5*p*<sup>-1</sup> и Th 5*s*<sup>-1</sup>) с состояниями с двумя вакансиями и одним возбужденным электроном (Th 5*d*<sup>-2</sup>5*f*<sup>+1</sup> и Th 5*p*<sup>-1</sup>5*d*<sup>-1</sup>5*f*<sup>+1</sup>) [3-6].

Целью настоящей работы является детальный расчет многоэлектронных эффектов, проявляющихся в спектрах РФЭС Th 5p и Th 5s. Для расчета этих спектров использовались многочастичная теория возмущений [7] и метод спектральных функций (функций Грина) [8–10], позволяющие рассчитывать положение и форму линий с учетом взаимодействия конфигураций в конечном состоянии. Полученные результаты согласуются с экспериментом и позволяют понять механизмы возникновения сложной структуры в спектре Th 5*p*-электронов и почти полного размытия линии Th 5*s*-электронов в ThO<sub>2</sub>.

Экспериментальная часть. Кристаллическая пленка ThO<sub>2</sub> с поверхностной ориентацией (001) на подложке Si (100) размером  $9 \times 9 \times 2 \text{ мм}^3$  была получена методом реактивного магнетронного напыления с использованием установки Omicron в JRC Карлсруэ (Германия). Подложку перед напылением пленки очищали этанолом и нагревали до ~600 °C при  $pO_2 \ 2 \times 10^{-6}$  мбар в течение 40–60 мин. Мишень из металлического тория использовалась как источник тория с Ar в качестве распыляющего газа при  $pAr 5.9 \times 10^{-4}$  мбар, и O<sub>2</sub> в качестве реактивного газа при  $pO_2$  7 × 10<sup>-6</sup> мбар. Подложка Si поддерживалась при температуре близкой к 600 °C. Пленка напылялась в течение 60 мин при условиях, которые должны обеспечить толщину пленки от 140 до 360 нм. Полученный образец был изучен методами РФЭС. Обзорный спектр  $ThO_2$  приведен на рис. 1.

Спектр РФЭС Th 5*p*-электронов кристаллической пленки ThO<sub>2</sub> (см. рис. 2) был зарегистрирован на спектрометре Kratos Axis Ultra DLD с монохроматизированным рентгеновским излучением Al $K_{\alpha}$ (1486.7 эB). Поверхность образца изучена после ее травления ионами <sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>. Травление поверхности ионами Ar<sup>+</sup> проводилось при  $U = 2 \, \text{кB}$  и  $I = 50 \, \text{мкA}$ 

 $<sup>^{1)}</sup>$ e-mail: vgyar@igic.ras.ru; vgyarzh@mail.ru



Рис. 1. Обзорный спектр РФЭС кристаллической пленки ThO<sub>2</sub> с поверхностной ориентацией (001) на подложке Si (100)

в течение 50 с. Плотность тока ионов аргона составляет 0.38 мкA/мм<sup>2</sup> при энергии ионов 2 кВ. Угол травления в спектрометре около 45 градусов. Измеренная скорость травления SiO<sub>2</sub> в этих условиях составляет 7.1 нм/мин.

Величины энергий связи электронов  $E_b$  (эВ) приведены в шкале, в которой энергия С 1*s*-электронов насыщенных углеводородов на поверхности образца, принята равной 285.0 эВ. Погрешность при измерении величин энергий связи и ширины линий равна +0.05 эВ, а при измерении относительных интенсивностей –  $\pm 5$ %.

Метод расчета. Для расчета атомных волновых функций и энергий использовались пакет программ Атом-М [11] и программа метода Дирака– Фока М. Б. Тржасковской [12].

Структура спектра РФЭС Th 5p-электронов атома Th и других близких по заряду ядра атомов, в частности, U определяется спин-орбитальным расщеплением и динамическим эффектом [13]. В случае динамического эффекта в РФЭС Th происходит взаимодействие вакансии в  $5p^{-1}$ -оболочке – основного конечного состояния с возбужденными конечными состояниями с двумя вакансиями и одним возбужденным электроном  $5d^{-2}5f^{+1}$ . Структура спектра Th 5s-электронов определяется взаимодействием основного конечного состояния  $5s^{-1}$  с возбужденными конечными состояниями с двумя вакансиями и одним возбужденным электроном  $5p^{-1}5d^{-1}5f^{+1}$ , а также Оже-распадом в состояния непрерывного спектра  $5p^{-1}5d^{-1}\varepsilon f(\varepsilon p)$ . Аналогичный эффект в соединениях 3d-элементов (взаимодействие  $3s^{-1}$  вакансии с состояниями  $3p^{-2}3d^{+1}$ ) приводит с расщеплению и сдвигу 3*s*-линий в РФЭС [14, 15].

Мультиплетное расщепление термов  $5d^{-2}$  рассчитывалось с использованием теоретических кулоновских интегралов и констант спин-орбитального взаимодействия, приведенных в табл. 1. Константе спин-

**Таблица 1.** Рассчитанные константы спин-орбитального взаимодействия  $\zeta$  и кулоновские интегралы  $R^i$  для атома Th

Величина	эВ	Величина	эВ			
$\zeta_{5p}$ *	31.9	$(5d5f R^1 5f5d)$	13.6			
$\zeta_{5d}$	2.93	$(5d5f R^3 5f5d)$	8.5			
$\zeta_{5f}$	0.33	$(5d5f R^5 5f5d)$	6.0			
$(5d5d R^2 5d5d)$	14.20	$(5p5d R^1 5d5f)$	15.6			
$(5d5d R^4 5d5d)$	9.70	$(5p5d R^3 5d5f)$	9.6			
$(5d5f R^2 5d5f)$	11.18	$(5s5d R^1 5p5f)$	16.2			
$(5d5f R^4 5d5f)$	7.33	$(5s5p R^2 5d5f)$	11.67			

\*Рассчитанное спин-орбитальное расщепление Th5p-оболочки 47.9 эВ.

орбитального взаимодействия 31.9 эВ 5*р*-электронов соответствует спин-орбитальное расщепление  $\Delta E_{\rm sl} =$ = 47.9 эВ, что существенно меньше экспериментальной разности энергий связи 5p<sub>1/2</sub>-электронов и наиболее интенсивного пика структуры  $5p_{3/2}$ , равной 55.6 эВ. Из таблицы 1 видно, что кулоновский интеграл  $(5p5d|R^1|5d5f) = 15.6$  эВ, определяющий взаимодействие между состоянием  $5p^{-1}$  и состояниями  $5d^{-2}5f^{+1}$ , близок по величине интегралу  $(5d5d|R^2|5d5d = 14.20$  эВ, определяющему расщепление термов 5*d*-оболочки и экспериментальной разности энергий связей основной линии 5p<sub>3/2</sub> и сателлитов (около 20 эВ, см. рис. 2). Такое соотношение между положениями уровней и величинами взаимодействий между ними не соответствует критерию применимости теории возмущений и для нахождения положений линий решалась секулярная матрица. Поскольку для 5*d*-оболочки кулоновские интегралы ( $R^2 = 14.20$  эВ и  $R^4 = 9.70$  эВ [11]) существенно превышают константу спин-орбитального взаимодействия ( $\zeta_{5d} = 2.93$  эВ [12]) (см. табл. 1), для этой оболочки применимо приближение L-S связи.

Мультиплетное расщепление состояний  $5d^{-2}$  рассчитывались в два этапа. Сначала была рассчитана релятивистская средняя энергия конфигурации  $5d^{-2}$ , а затем расщепление состояний рассчитывалось в приближении *L-S*-связи.

Величина кулоновского взаимодействия между конфигурациями  $5p^{-1}$  и  $5d^{-2}5f^{+1}$ , а также энергия кулоновского взаимодействия внутри каждой из конфигураций имеет вид произведения угловых частей и радиальных интегралов:



Рис. 2. Экспериментальный спектр РФЭС Th 5*p*-электронов кристаллической пленки ThO<sub>2</sub> с поверхностной ориентацией (001) на подложке Si (100). Линии Ar 2*p*<sub>1/2,3/2</sub>-электронов адсорбированного на поверхности аргона при энергии связи 245.5 и 243.3 эВ слабо перекрываются с основным спектром и были вычтены при обработке

$$V_{\gamma,\delta}(\nu_1\nu_2\nu_3\nu_4) = \sum_{\lambda,\mu} \alpha^{\lambda}_{\gamma,\delta}(\nu_1\nu_2|R^{\lambda}|\nu_3\nu_4) - \beta^{\mu}_{\gamma,\delta}(\nu_1\nu_3|R^{\mu}|\nu_2\nu_4), \qquad (1)$$

где  $\nu_i$  – набор одноэлектронных квантовых чисел,  $\lambda$  и  $\mu$  – мультипольности кулоновских и обменных интегралов, а коэффициенты при прямом и обменном членах  $\alpha_{\gamma,\beta}^{\lambda}$  и  $\beta_{\gamma,\beta}^{\mu}$  зависят от схемы связи  $\gamma$  и  $\delta$  во взаимодействующих состояниях. Кулоновские интегралы рассчитывались с использованием атомных волновых функций  $P_{\nu}(r)$ , полученных методом Хартри–Фока [11] по стандартной формуле:

$$(\nu_1\nu_3|R^{\lambda}|\nu_2\nu_4) =$$

$$= \int_0^\infty P_{\nu_1}(r)P_{\nu_2}(r)dr \int_0^\infty \frac{r_{<}^{\lambda}}{r_{>}^{\lambda+1}}P_{\nu_3}(r')P_{\nu_4}(r)dr'. \quad (2)$$

Для расчета угловых частей, определяющих энергии термов использовались методы теории углового момента [16, 17] и табулированные коэффициенты [18, 19]. При взаимодействии между конфигурациями  $5p^{-1}$  и  $5d^{-2}5f$  состояния  $\nu_2$  и  $\nu_3$  совпадают, обменный член отсутствует, а  $\lambda$  может принимать значения 1 и 3, по которым производилось суммирование.

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

В случае промежуточной связи это взаимодействие может быть представлено диаграммой угловых моментов, приведенной на рис. 3, где каждой линии соответствует значение углового момента, трем линиям, сходящимся в вершине, соответствует 3j-символ, по магнитным квантовым числам производится суммирование, а утолщенная линия обозначает умножение на  $(2j+1)^{1/2}$  [16]. Используя методы приведения диаграмм угловых моментов [16], получаем:

$$\alpha^{\lambda}(L, S, J) =$$

$$= \sqrt{(1 + \delta(l_{2}, l_{3}))} \begin{pmatrix} l_{1} & \lambda & l_{2} \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_{3} & \lambda & l_{4} \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times$$

$$\times [l_{1}l_{2}l_{3}l_{4}]^{1/2} [LSJj_{4}]^{1/2} \begin{cases} l_{1} & L & l_{4} \\ l_{3} & \lambda & l_{2} \end{cases} \times$$

$$\times \begin{cases} j_{1} & \kappa & l_{4} \\ 1/2 & j_{4} & J \end{cases} [j_{1}]^{-1/2} \times$$

$$\times \sum_{\kappa=L-1/2}^{L+1/2} (-1)^{2\kappa+L+3J+l_{1}+l_{4}+j_{1}+j_{4}+1} \times$$

$$\times \begin{cases} l_{4} & j_{1} & \kappa \\ 1/2 & L & l_{1} \end{cases} \begin{cases} J & 1/2 & \kappa \\ 1/2 & L & S \end{cases} \delta(j_{1}, J_{t}), \quad (3)$$



Рис. 3. Диаграмма угловых моментов для расчета коэффициентов кулоновского взаимодействия  $\alpha^{\lambda}$  начальной вакансии  $j_1^{-1}$  с состояниями с двумя вакансиями и одним возбужденным электроном  $((l_2^{-1}l_3^{-1}(LS)J)j_4)j_1$  (формула (3). Три линии, сходящиеся в одной токе обозначают 3*j*-символ, утолщенная линия с индексом *j* обозначает множитель  $(2j+1)^{1/2}$ . Остальные обозначения и метод расчета таких диаграмм приведены в работе [16]

где L, S и J соответствуют терму  ${}^{2S+1}L_J$  конфигурации  $5d^8(5d^{-2})$ , а суммирование идет по всем полуцелым  $\kappa$  в указанном интервале. Большие круглые и фигурные скобки обозначают 3*j*- и 6*j*-символы соответственно [18], а квадратные скобки [ab] обозначают величину (2a+1)(2b+1). Формула (3) является обобщением нерелятивистской формулы для Ожеспектров [20] на случай промежуточной связи. Первый из 6*j*-символов в формуле (3) присутствует также и в нерелятивистской формуле [20], и из правил треугольника для 6*j*-символов [18] следует, что взаимодействие исходной вакансии возможно только с тремя термами  ${}^{1}D_{J}$ ,  ${}^{3}F_{J}$  и  ${}^{1}G_{J}$  оболочки  $5d^{8}(5d^{-2})$ . В случае спектра 5*s*-электронов использовалась схема *j-j* связи и угловые части рассчитывались по стандартным формулам [21].

Спин-орбитальное взаимодействие в незаполненной оболочке дается формулой [18]:

$$\langle l^{N}LSJ|H_{SO}|l^{N}L'S'J\rangle =$$

$$= \zeta(-1)^{L'+S+J}[2(2l+1)l(l+1)] \left\{ \begin{array}{cc} L & SJ \\ S' & L'1 \end{array} \right\} \times$$

$$\times \langle l^{N}LSJ|V^{11}|l^{N}LSL\rangle, \qquad (4)$$

где  $V^{11}$  двойной тензорный оператор [17, 18]. Спинорбитальное взаимодействие определяет расщепление термов по J и взаимодействие между ними.

Спектр Th  $5p_{3/2}$ -электронов рассчитывался на основе решения секулярной матрицы. Собственные значения секулярной матрицы соответствуют положениям линий в спектре, а интенсивности линий равны квадратам элементов собственного вектора, соответствующего энергии основной линии. В случае ионизации подоболочки  $5p_{1/2}$  уровни возбужденной конфигурации  $5d^{-2}(^{2S+1}L)5f^{+1}$  далеки по энергии от основного состояния, в то время как возможен Оже-распад в состояния непрерывного спектра  $5d^{-2}(^{2S+1}L)\varepsilon p, \varepsilon f$ , приводящий к асимметричному уширению линии Th  $5p_{1/2}$ . Для расчета спектра  $5p_{1/2}$ -электронов применялся метод спектральных функций, согласно которому полный спектр с учетом возбуждения сателлитов и распада в состояния непрерывного спектра дается спектральной функцией исходной вакансии k [7–9]:

$$A_k(E) = \frac{1}{\pi} \frac{\operatorname{Im} \Sigma_k(E)}{(E - \varepsilon_k - \operatorname{Re} \Sigma_k(E))^2 + \operatorname{Im} \Sigma_k(E)^2}, \quad (5)$$

где E – энергетический параметр  $\Sigma_k(E)$  – собственно-энергетическая часть функции Грина вакансии k, действительная и мнимая части которой во втором порядке теории возмущений имеют вид:

$$\operatorname{Re}\Sigma_{k}^{(2)}(E) = \sum_{\Omega,q} \left( \int \frac{\langle kj|V|iq\rangle_{\Omega}^{2}d\varepsilon_{q}}{E - (\varepsilon_{i} + \varepsilon_{j})_{\Omega} + \varepsilon_{q}} \right), \quad (6)$$

$$\operatorname{Im} \Sigma_{k}^{(2)} = \pi \sum_{\Omega, q} \langle kj | V | iq \rangle_{\Omega}^{2} \delta(E - (\varepsilon_{i} + \varepsilon_{j})_{\Omega} + \varepsilon_{q}), \quad (7)$$

где  $\langle kj|V|iq \rangle$  обозначает кулоновский матричный элемент с учетом обменного члена и угловых частей (1), индекс  $\Omega$  соответствует терму двухдырочного состояния. Такой подход позволяет одновременно учесть как энергетический сдвиг, возникающий из-за взаимодействия с возбужденными состояниями, так и уширение вследствие распада в непрерывный спектр. В случае спектра 5p-электронов k = 5p, i = j = 5d, а  $\Omega$  включает L, S и J, соответствующие формуле (3) и рис. 3. Метод спектральных функций применялся также и для расчета спектра Th 5sэлектронов. В случае спектра 5s-электронов k = 5s, i = 5p и j = 5d и сумма по  $\Omega$  включает полные моменты 5*p*- и 5*d*-электронов и полный момент *J* двух вакансий, а q в формуле (7) соответствует непрерывному спектру  $\varepsilon p$  и  $\varepsilon f$ .

Обсуждение результатов. Экспериментальный РФЭС спектр Th 5p-электронов ThO<sub>2</sub> вместо ожидаемого дублета, связанного со спинорбитальным расщеплением имеет более сложную структуру (см. рис. 2). С низкоэнергетической области спектра Th  $5p_{3/2}$ -электронов наблюдается линия с двумя максимумами, а при энергиях связи 194-199 эВ наблюдается широкая полоса сателлитов, связанная с возбужденными состояниями  $5d^{-2}5f$ . С высокоэнергетической стороны спектра наблюдается уширенная линия Th  $5p_{1/2}$ -электронов. Отношение интенсивностей спектров области Th  $5p_{3/2}$ - и области Th  $5p_{1/2}$ -электронов равно 5:1 вместо ожидаемого значения, равного  $I(5p_{3/2}) : I(5p_{1/2}) = 2 : 1$ . Таким образом, вместо спин-дублета формируется сложная структура, связанная с многоэлектронными эффектами и мультиплетным расщеплением. Поскольку в основном состоянии Th отсутствуют 5f-электроны, расщепление низкоэнергетической линии вблизи 178 эВ нельзя связать с взаимодействием с частично заполненной 5f оболочкой.

В таблице 2 приведены теоретические энергии связи, рассчитанные как разности полных энергий

**Таблица 2.** Теоретические энергии ионизации некоторых электронных оболочек атома Th, рассчитанные как разности полных энергий, соответствующие экспериментальные энергии связи ThO<sub>2</sub>, а также разности этих величин  $\Delta E_b$  в (эВ)

	Теория	Эксперимент	$\Delta E_b$
$4f_{5/2}$	352.81	343.7	-8.9
$4f_{7/2}$	343.29	334.4	-8.9
$5p_{1/2}$	244.9	234.2	-10.7
$5p_{3/2}$	197.0	$178.7^{*}, 175.2$	$-18.3^{*}, -21.8$
$5d_{5/2}$	95.7	86.4	-9.3
$5d_{3/2}$	102.9	93.3	-9.6

\*Наиболее интенсивный пик.

атома с вакансией и нейтрального атома, а также экспериментальные энергии ионизации этих оболочек в соединении ThO<sub>2</sub>. Как видно из этой таблицы, экспериментальная энергия связи меньше теоретической на 9–10 эВ для всех оболочек, кроме Th  $5p_{3/2}$ , для двух компонент которой сдвиг составляет 18.3 и 21.8 эВ. Из таблицы 2 также видно, что теоретическое спин-орбитальное расщепление находится в хорошем согласии с экспериментом для оболочек 4f и 5d. В то же время для оболочки 5p экспериментальные разности энергии связи лини  $5p_{1/2}$  и двух наиболее интенсивных пиков структуры  $5p_{3/2}$ , равные 55.5 и 59.0 эВ (см. рис. 2), существенно превышают теоретическое спин-орбитальное расщепление 47.9 эВ (см. табл. 1). Для сравнения рассчи-

танных энергий, полученных в атомном приближении, с экспериментальными значениями в соединениях обычно используют разность экспериментальной и теоретических энергий связи, обшую для всех внутренних оболочек [3-6]. Этот сдвиг связан с эффективным зарядом атома и работой входа электрона из образца и примерно одинаков для всех внутренних оболочек [3-6]. В настоящей работе использовался сдвиг энергий связи -9.6 эВ, полученный для линии Th  $5d_{5/2}$  (см. табл. 2). Рассчитанный спектр Th 5*p*-электронов состоит из трех групп линий (рис. 4), которые можно сопоставить линиям  $5p_{1/2}$ ,  $5p_{3/2}$  и сателлитам, т.е. состояниям типа  $5d^{-2}5f$ . Многоэлектронные эффекты приводят к уменьшению энергии связи 5р<sub>3/2</sub>-электронов, в результате чего спин-орбитальное расщепление достигает 62 эВ, что соответствует эксперименту и существенно превышает теоретическое спин-орбитальное расщепление 47.9 эВ. Спектроскопический фактор линии 5p<sub>1/2</sub>, оцененный как интеграл спектральной функции (5) в интервале 10 эВ (что соответствует интервалу в котором экспериментально определялась интенсивность линии) за вычетом фона составил 0.69. Таким образом теоретические отношение интенсивностей  $I(5p_{3/2})$  :  $I(5p_{1/2}) = 2.9$  находится в лучшем согласии с экспериментом, чем статистическое значение 2.

В работе [22] предполагалось, что линия Th 5sв РФЭС ThO<sub>2</sub>, должна наблюдаться при 290.2  $\pm$  $\pm 0.8$  эВ, т.е. в той же области, где также наблюдается спектр С 1s-электронов, адсорбированных углеводородов ( $\sim 285 \, \text{sB}$ ) и  $\text{CO}_3^{2-}$ -группы ( $\sim 290 \, \text{sB}$ ). Используя различные методы очистки поверхности (механическая очистка окисленной поверхности металлической пластины Th и травление ионами  $Ar^+$ , а также травление ионами Ar<sup>+</sup> порошка и кристаллической пленки ThO<sub>2</sub>, нам не удалось наблюдать спектр Th 5s-электронов. Поскольку соотношение энергий связи равно  $E_b(\operatorname{Th} 5s) \approx E_b(\operatorname{Th} 5p) + E_b(\operatorname{Th} 5d)$ , то можно предположить, что в спектре в значительной степени может проявляться динамический эффект. Так, в результате фотоэмиссии Th 5s-электрона возникает основное конечное состояние с одной вакансией Th  $5s^1$ , которое взаимодействует с возбужденным состоянием с двумя вакансиями и одним дополнительным 5 *f*-электроном: Th  $5p^{-1}5d^{-1}5f^{+1}$ . В результате взаимодействия этих двух конечных состояний в спектре  $P\Phi \Theta C$  Th5s возникает сложная структура, приводящая к уширению линии спектра. Из таблицы 3, где приведены энергии связи таких состояний, видно что состояния  $5p_{3/2}^{-1}5d_{5/2}^{-1}5f_{5/2}$  и  $5p_{3/2}^{-1}5d_{5/2}^{-1}5f_{5/2}$ имеют энергию связи, меньшую, чем исходная ва-



Рис. 4. Рассчитанный спектр РФЭС Th 5*p*-электронов, который сдвинут в сторону меньших энергий связи на 9.6 эВ для сравнения с экспериментальным спектром

**Таблица 3.** Теоретические энергии связи возбужденных конечных состояний с двумя вакансиями  $\Delta E_1$  и с двумя вакансиями и одним электроном  $\Delta E_2$  относительно теоретической энергии основного конечного состояния  $5s^{-1}$  (307.65 эВ)

Конечное	$\Delta E_1$ ( $\mathfrak{sB}$ )	Конечное	$\Delta E_2$ ( $\mathfrak{sB}$ )
состояние		состояние	
$5p_{1/2}^{-1}5d_{3/2}^{-1}$	+55.88	$5p_{1/2}^{-1}5d_{3/2}^{-1}5f_{5/2}$	+34.51
$5p_{3/2}^{-1}5d_{3/2}^{-1}$	+10.31	$5p_{3/2}^{-1}5d_{3/2}^{-1}5f_{5/2}$	-11.18
$5p_{3/2}^{-1}5d_{5/2}^{-1}$	+1.67	$5p_{3/2}^{-1}5d_{5/2}^{-1}f_{5/2}$	-22.75
		$5p_{3/2}^{-1}5d_{5/2}^{-1}5f_{7/2}$	-18.59

кансии  $5s^{-1}$  на величину порядка атомной единицы. Поэтому взаимодействие конфигураций должно приводить к увеличению энергии связи исходной вакансии  $5s^{-1}$ . Следует отметить, что матричные элементы взаимодействия основного конечного состояния  $5s^{-1}$  с возбужденными конечными состояниями  $5p^{-1}5d^{-1}5f^{+1+1}$  велики вследствие совпадения главных квантовых чисел так же, как и в случае спектра 5p-электронов (см. табл. 1). Из-за сильного спинорбитального взаимодействия в 5p- и 5d-оболочках – энергии конечных состояний для различных значений полного момента j дырок существенно различаются (см. табл. 3) и по-разному влияют на положение и форму линии  $5s^{-1}$ , рассчитанная с учетом толь-

ко монопольной релаксации, меньше энергий состояний  $5p^{-1}5d^{-1}\varepsilon f^{+1}$ .

Однако, поскольку все дискретные состояния типа  $5p_{3/2}^{-1}5d_j^{-1}5f_{j'}^{+1}$  лежат ниже состояний  $5s^{-1}$ , сильное взаимодействие конфигураций приводит к сдвигу состояний  $5s^{-1}$  в сторону больших энергий связи, где возможен распад в состояния непрерывного спектра  $5p_{3/2}^{-1}5d_j^{-1}\varepsilon f_{j'}^{+1}$ . Вследствие малой кинетической энергии  $\varepsilon f$ -электронов матричные элементы Оже-распада велики, что приводит к сильному уширению линии 5s-электронов. Оба эти эффекта – сдвиг по энергии и Оже-распад учитываются в методе спектральных функций во втором порядке теории возмущений (формулы (5)-(7)).

На рисунке 5 приведены результаты расчета Th 5*s*-спектра методом спектральных функций (сплошная линия). Полученный спектр уширен гауссианом с полушириной равной экспериментальному уширению. Для сравнения также показан гауссиан единичной площади с полушириной, равной экспериментальному уширению (пунктирная линия). Энергия связи электронов этой линии равна теоретической энергии связи, рассчитанной по разности полных энергий с учетом общего сдвига –9.6 эВ (см. табл. 2). Из этого рисунка видно, что динамический эффект приводят к сдвигу спектральной плотности 5*s*-электронов в сторону больших энергий связи



Рис. 5. Теоретические спектры РФЭС Th 5*s*электронов. Сплошная линия – спектр, рассчитанный с учетом многоэлектронных корреляций (см. текст). Пунктир – спектр без учета многоэлектронных корреляций. В обоих случаях спектры сдвинуты на 9.6 эВ в сторону меньших энергий связи и уширены гауссианом

 $(\sim 310\, {\rm sB}$ )и очень сильному асимметричному уширению, поэтому линия в спектре практически не наблюдается.

Выводы. Проведенные в настоящей работе расчеты методами спектральных функций и взаимодействия конфигураций в базисе атомных функций Хартри-Фока позволили рассчитать сложную структуру фотоэлектронных спектров Th 5s и Th 5p, которая определяется многоэлектронными эффектами в конечном состоянии. Почти полное исчезновение линии Th 5s и ее сдвиг в сторону больших энергий связи определяется взаимодействием состояния  $5s^{-1}$ с состояниями  $5p^{-1}5d^{-1}f$  и Оже-распадом в непрерывный спектр  $5p^{-1}5d^{-1}\varepsilon f$ . Существенное отличие спин-орбитального расщепления в спектре Th 5p от величины, полученной методом Дирака-Фока, связано с взаимодействием между конечным состоянием  $5p_{3/2}^{-1}$  и близкими по энергии состояниями  $5d^{-2}5f$ . Это взаимодействие приводит также к появлению широкой структуры между линиями  $5p_{1/2}$  и  $5p_{3/2}$ . Линия  $5p_{1/2}$  сильно уширена Оже-распадом в состояния непрерывного спектра  $5d^{-2}\varepsilon f$ , что приводит также к уменьшение на 30 % интенсивности этой линии в экспериментальном диапазоне ± 5 эВ. Полученные результаты являются следствием сильного взаимодействия между электронами оболочек 5s, 5p и 5d в конечном состоянии, т.е. после фотоиоизации. Интересно отметить, что теоретические расчеты показали, что для этих же оболочек в атоме Rn нарушаются правила сумм для фотоионизации и был сделан вывод о сильных межоболочечных корреляциях [23]. Работа выполнена с использованием оборудования, приобретенного за счет средств Программы развития Московского государственного университета.

Выражаем благодарность Томасу Гудеру (Thomas Gouder), Рэйчел Элоирди (Rachel Eloirdi), Алисе Зайберт (Alice Seibert) из Европейской комиссии, Объединенного исследовательского центра, Директората ядерной безопасности за изготовление образца тонкой пленки ThO<sub>2</sub>. Яну Фарнану (Ian Farnan), Джулио Лампронти (Giulio Lampronti) и Алексею Попель (Aleksej Popel) с факультета наук о Земле Кембриджского университета за предоставление и характеризацию образца методами сканирующей электронной микроскопии, рентгенофазового анализа и дифракции обратно рассеянных электронов.

- Yu. A. Teterin and A. Yu. Teterin, Russ. Chem. Rev. 73, 3541 (2004).
- K. I. Maslakov, Yu. A. Teterin, S. Stefanovsky, S. N. Kalmykov, A. Yu. Teterin, and K. E. Ivanov, J. Alloys Compd. **712**, 36 (2017).
- M. Boring and R.D. Cowan, Phys. Rev. B 23, 445 (1981).
- G. M. Bancroft, T. K. Sham, and S. Larsson, Chem. Phys. Lett. 46, 557 (1977).
- T.K. Sham and G. Wendin, Phys. Rev. Lett. 44, 817 (1980).
- 6. M. Ohno, Phys. Rev. B 35, 5453 (1987).
- M. Ya. Amusia, L. V. Chernysheva, and V. G. Yarzhemsky, *Handbook of Theoretical Atomic Physics*, Data for Photon Absorption, Electron Scattering, and Vacancies Decay, Springer, Berlin, Heidelberg (2012).
- V.G. Yarzhemsky, G.B. Armen, and F.P. Larkins, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 26, 2785 (1993).
- V. G. Yarzhemsky, M. Ya. Amusia, P. Bolognesi, and L. Avaldi, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 43, 185204 (2010).
- V. G. Yarzhemsky and M. Ya. Amusia, Phys. Rev. A 93, 063406 (2016).
- М. Я. Амусья, С.К. Семенов, Л.В. Чернышева, *АТОМ-М алгоритмы и программы исследований* атомных и молекулярных процессов, Наука, СПб. (2016).
- M. B. Trzhaskovskaya and V. G. Yarzhemsky, At. Data Nucl. Data Tables 119, 99 (2018).
- 13. G. Wendin, Structure and Bonding. 45, 1 (1981).
- Ю. А. Тетерин, А. В. Соболев, И. А. Пресняков, К. И. Маслаков, А.Ю. Тетерин, И.В. Морозов, И. О. Чернявский, К. Е. Иванов, А. В. Шевельков, ЖЭТФ 151(2), 293 (2017).

- В. Г. Яржемский, Ю. А. Тетерин, И. А. Пресняков, К. И. Маслаков, А. Ю. Тетерин, К. Е. Иванов, Письма в ЖЭТФ 111(8), 487 (2020).
- 16. I. Lindgren and J. Morrison, *Atomic many-body theory*, Springer, Berlin (1982).
- B.R. Judd, Operator Techniques in Atomic spectroscopy, Princeton University Press, Princeton, USA (1998).
- И.И. Собельман, Введение в теорию атомных спектров, Наука, М. (1963).
- C. W. Nelson and G. F. Koster, Spectroscopic coefficients for p<sup>n</sup>, d<sup>n</sup>, and f<sup>n</sup> configurations, MIT, Cambridge, MA (1964).
- D. L. Walters and C. P. Bhalla, Phys. Rev. A 3, 1919 (1971).
- M. H. Chen, F. P. Larkis, and B. Crasemann, At. Data Nucl. Data Tables 45, 1 (1990).
- 22. J. C. Fuggle, A. F. Burr, L. M. Watson, D. F. Fabian, and W. Lang, J. Phys. F: Metal Phys. 4, 335 (1974).
- М. Я. Амусья, Л. В. Чернышева, Письма в ЖЭТФ 108(7), 466 (2018).

### Обнаружение перенормировки циклотронной частоты в экранированной двумерной электронной системе с сильным запаздыванием

Н. Д. Семенов<sup>1)</sup>, В. М. Муравьев, И. В. Андреев, И. В. Кукушкин

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

Поступила в редакцию 7 сентября 2021 г. После переработки 8 октября 2021 г. Принята к публикации 9 октября 2021 г.

В работе исследуется резонансное микроволновое поглощение двумерных электронных систем (ДЭС) на базе GaAs/AlGaAs гетероструктур с задним металлическим затвором. Реализован режим, когда скорость экранированной плазменной волны в ДЭС, вычисленная в квазистатическом приближении, превосходит скорость света в подложке. Обнаружено, что в этом случае релятивистские эффекты запаздывания приводят к сильному изменению дисперсии двумерного экранированного плазмона, а также его магнитополевого поведения. Обнаружено, что эффекты запаздывания приводят к сильной ренормализации циклотронной и плазменной частоты. Установлено хорошее согласие полученных экспериментальных данных с существующей теорией.

DOI: 10.31857/S1234567821220080

Если единичный электрон с эффективной массой  $m^*$ , помещенный в магнитное поле B, облучить электромагнитной волной, то на частоте

$$\omega_c = eB/m^* \tag{1}$$

будет наблюдаться резонансное поглощение энергии волны. Данное физическое явление получило название циклотронного резонанса (ЦР). Циклотронный резонанс нашел широкое распространение в исследованиях физических свойств твердых тел. В частности, ЦР является прямым и удобным способом определения эффективной электронной массы в полупроводниках [1–3].

Одной из актуальных задач современной физики конденсированного состояния является спектроскопия ЦР в двумерных электронных системах (ДЭС) [4–13]. В ограниченных ДЭС циклотронный резонанс испытывает сдвиг по частоте за счет плазменного деполяризационного эффекта [14]. Это явление можно рассматривать как гибридизацию циклотронного и плазменного колебаний. Одним из важнейших преимуществ двумерных систем является то, что их электронную плотность можно изменять в широких пределах при помощи затвора. В экранированных за-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

твором ДЭС плазменные возбуждения приобретают линейный (акустический) закон дисперсии [14–23]:

$$\omega_{\rm AP} = \sqrt{\frac{n_s e^2 h}{\varepsilon \varepsilon_0 m^*}} q = V_p q, \qquad (2)$$

где  $n_s$  — концентрация двумерных электронов, h — расстояние от ДЭС до металлического затвора,  $\varepsilon_0$  — электрическая постоянная,  $\varepsilon = 12.8$  — диэлектрическая проницаемость GaAs подложки, а q — волновое число. Выражение (2) получено в квазистатическом приближении, когда  $V_p \ll c/\sqrt{\varepsilon}$ . Недавно было теоретически предсказано, что если  $V_p$  сравнима или превосходит скорость света в диэлектрической подложке  $V_p \gtrsim c/\sqrt{\varepsilon}$ , то должна наблюдаться перенормировка плазменной и циклотронной частот [24–26]

$$\omega_p = \frac{\omega_{\rm AP}}{\sqrt{1 + \frac{V_p^2 \varepsilon}{c^2}}}.$$
(3)

$$\omega_c' = \frac{eB/m^*}{1 + \frac{V_p^2 \varepsilon}{c^2}} = \frac{\omega_c}{1 + \frac{V_p^2 \varepsilon}{c^2}}.$$
(4)

В настоящей работе экспериментально обнаружена данная перенормировка циклотронной частоты. Измерена зависимость ренормализации циклотронной частоты от величины скорости плазменной волны V<sub>p</sub>.

Эксперименты проводились на образцах высококачественных одиночных квантовых ям

 $<sup>^{1)}</sup>$ e-mail: nikolai.semenov@issp.ac.ru



Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Тепловая карта интенсивности микроволнового поглощения в ДЭС в зависимости от частоты СВЧ и магнитного поля. Насыщенные бордовые цвета иллюстрируют максимум резонансного поглощения микроволнового излучения, в то время как темные оттенки синего – его отсутствие. Сплошные черные кривые соответствуют краевой и циклотронной магнитоплазменным модам  $\omega_-$  и  $\omega_+$  с циклотронной частотой  $eB/m^*$  ( $m^* = 0.067m_0$ ). Сплошной красной кривой показана аппроксимация экспериментальных данных зависимостью (5) с перенормированной циклотронной частотой  $\omega'_c$ . Горизонтальными пунктирными линиями черного, красного и зеленого цветов показаны сечения тепловой карты на частотах 5.5, 10.0 и 14.5 ГГц соответственно. Они же вынесены на рисунок (b). Сечения демонстрируют зависимость микроволнового поглощения ДЭС от магнитного поля. Цветными стрелками (в том числе и на тепловой карте) отмечены максимумы поглощения на соответствующих частотах. Данные получены на образце с диаметром мезы d = 4 мм, толщиной подложки h = 475 мкм, и электронной концентрацией  $n_s = 7.5 \times 10^{11}$  см<sup>-2</sup>

 $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  (x = 0.3) с шириной 20 нм. Электронная плотность  $n_s$  составляла  $7.5 \times 10^{11} \,\mathrm{cm}^{-2}$ , а подвижность  $\mu = 0.4 \times 10^6 \, {\rm cm^{-2}}/({
m B} \cdot {
m c})$  при температуре  $T = 4.2 \,\mathrm{K}$ . С помощью оптической литографии и жидкостного химического травления из квантовых ям были изготовлены мезы в форме дисков с диаметрами d = (3-7) мм. Стачиванием GaAs подложки достигались разные толщины чипов h = (140-640) мкм, после чего на обратную по отношению к квантовой яме сторону напылялся металлический затвор. Всего было изготовлено 11 различных образцов. Плазменные колебания возбуждались в ДЭС микроволновым излучением с частотой (1-40) ГГц. Для этого образец помещался внутрь прямоугольного волновода, где облучался электромагнитным излучением в частотном диапазоне 10-40 ГГц. Альтернативным методом возбуждения двумерной плазмы служило электрическое поле проволочной антенны, которая приваривалась ультразвуковой сваркой на чип непосредственно вблизи мезы. Для детектирования резонансного поглощения микроволнового излучения использовалась оптическая методика [27, 28], основанная на высокой чувствительности спектра рекомбинантной фотолюминесценции ДЭС к разогреву. Эксперименты проводились в заливном гелиевом криостате при температуре T = 4.2 К. Магнитное поле (0–0.4) Тл создавалось сверхпроводящим магнитом и было направлено перпендикулярно поверхности образца.

На рисунке 1а представлена карта интенсивности резонансного микроволнового поглощения в зависимости от частоты СВЧ возбуждения и магнитного поля. Измерения проводились на образце с толщиной подложки h = 475 мкм и диаметром мезы d == 4 мм. Показательные кривые поглощения для трех отдельно взятых частот представлены на рис. 1b. Они демонстрируют выраженные резонансы, положение которых в исследуемом диапазоне магнитных полей хорошо описывается дипольным приближением (красная сплошная кривая на рис. 1a) [29, 30]:

$$\omega_{\pm} = \pm \frac{\omega_c'}{2} + \sqrt{\frac{\omega_c'}{2}^2 + \omega_p^2},\tag{5}$$

где  $\omega_p$  – плазменная частота в нулевом магнитном поле, а  $\omega'_c$  – эффективная циклотронная частота. Низкочастотная ветвь магнитодисперсии ( $\omega_-$ ) соответствует краевому магнитоплазмону – возбуждению электронной плотности, распространяющемуся вдоль края ДЭС [31, 32]. Высокочастотная ветвь магнитодисперсии отвечает возбуждению циклотронной магнитоплазменной моды ( $\omega_+$ ) – коллективному циклотронному движению электронов по всей площади ДЭС [33, 34].

Особенностью полученных экспериментальных данных является сильное отличие плазменной частоты  $f_p = (9.3 \pm 0.1)$  ГГц в нулевом магнитном поле от вычисленной в квазистатическом приближении  $f_{\rm AP} = \omega_{\rm AP}/2\pi = 19.6$  ГГц. При вычислениях для экранированного плазмона в диске использовался волновой вектор q = 3.7/d [32]. Как было показано в работе [35], релятивистские эффекты запаздывания [36] приводят к модификации линейной дисперсии экранированного плазмона в нулевом магнитном поле. Синие круги на рис. 2 соответ-



Рис. 2. (Цветной онлайн) Дисперсия экранированного двумерного плазмона в нулевом магнитном поле. Положение точек, соответствующих экспериментальным данным, хорошо описывается теоретической зависимостью (3) (сплошная прямая). Для сравнения на рисунке приведена пунктирная прямая, отвечающая дисперсии плазменного возбуждения в квазистатическом приближении (2). Данные получены на образцах с толщиной подложки h = 640 мкм, и электронной концентрацией  $n_s = 7.5 \times 10^{11}$  см<sup>-2</sup>

ствуют измеренным плазменным частотам для образцов с толщиной h = 640 мкм и диаметрами d = 3, 4, 5, 6 и 7 мм. Дисперсионная зависимость

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

экранированного плазмона, полученная в квазистатическом приближении для экранированной ДЭС (2), показана пунктирной линией. Видно, что экспериментальные точки лежат существенно ниже. Они хорошо описываются выражением, учитывающим гибридизацию плазмона со световой волной в подложке (3) (сплошная синяя прямая) [26, 25].

Важным наблюдением является то, что гибридизация плазменной волны со светом приводит к сильному изменению магнитополевого поведения мод. Действительно, на рис. 1а черной сплошной кривой показана магнитодисперсия для экранированного плазмона, вычисленная по формуле (5) в квазистатическом приближении для неперенормированной циклотронной частоты  $\omega_c = eB/m^*$ , где  $m^* = 0.067m_0$ . Красная кривая соответствует подгонке формулы (5) к экспериментальным данным с циклотронным наклоном  $\omega_c'/B = e/m_c$  и плазменной частотой  $\omega_p$ в качестве свободных параметров. Видно, что при  $\omega_c' = (0.35 \pm 0.01)\omega_c$  подгоночные кривые хорошо согласуются с экспериментальными точками как для циклотронной  $\omega_{+}(B)$ , так и для краевой  $\omega_{-}(B)$  магнитоплазменных мод. Такое поведение может быть описано в рамках теоретической модели [24, 25], которая учитывает влияние релятивистских эффектов запаздывания. В этой модели происходит перенормировка циклотронной частоты согласно формуле (4). Для проверки этого утверждения был проведен сравнительный анализ наклонов магнитодисперсии экранированного плазмона для всех образцов. Каждая магнитодисперсия была аппроксимирована выражением (5) с циклотронным наклоном  $\omega_c'/B$  в качестве свободного параметра. Это позволило получить эффективный наклон циклотронного резонанса  $\omega_c'/B$  и сравнить его с  $\omega_c/B = e/m^*$ . Заметим, что для акустических плазменных возбуждений ренормализация циклотронной частоты контролируется двумя параметрами: электронной концентрацией n<sub>s</sub> и расстоянием от двумерной электронной системы до экранирующего затвора h, а именно:

$$\frac{\omega_c}{\omega_c'} = 1 + \frac{n_s e^2 h}{\varepsilon_0 m^* c}.$$
 (6)

На рисунке 3 представлена зависимость измеренного экспериментально отношения  $\omega_c/\omega'_c$  как функция толщины полупроводниковой подложки. Экспериментальные точки были получены для образцов с толщиной h = 640, 475, 380, 340, 280, 215 и 140 мкм при фиксированном диаметре дисков d = 4 мм. Полученные экспериментальные данные отлично согласуются с теоретическим предсказанием (6) (красная линия на рис. 3). Таким образом, изменяя толщину



Рис. 3. (Цветной онлайн) Экспериментально полученная зависимость отношения  $\omega_c/\omega'_c$  от толщины подложки образца. Прямой линией показан график теоретической зависимости (4). Данные получены на образцах с диаметром мезы d = 4 мм и электронной концентрацией  $n_s = 7.5 \times 10^{11}$  см<sup>-2</sup>

подложки, оказывается возможным управлять силой взаимодействия колебаний электронной плазмы со светом.

В результате, в работе исследовано магнитополевое поведение плазменных возбуждений в дисках ДЭС в условиях одновременно сильного экранирования и сильного запаздывания. Показано, что эффекты запаздывания приводят к перенормировке как плазменной, так и циклотронной частоты. Расстояние от затвора до плоскости двумерных электронов (как и их концентрация) выступает инструментом управления мерой взаимодействия света с магнитоплазмонами в ДЭС.

Работа выполнена в рамках государственного задания Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института физики твердого тела им. Ю. А. Осипьяна Российской академии наук. Авторы признательны А. А. Заболотных и В. А. Волкову за плодотворное обсуждение результатов работы.

- G. Dresselhaus, A. F. Kip, and C. Kittel, Phys. Rev. 92, 827 (1953).
- B. Lax, H. J. Zeiger, R. N. Dexter, and E. S. Rosenblum, Phys. Rev. 93, 1418 (1954).
- G. Dresselhaus, A. F. Kip, and C. Kittel, Phys. Rev. 98, 368 (1955).
- 4. T. Ando, J. Phys. Soc. Jpn. 38, 989 (1975).
- E. Kress-Rogers, R. J. Nicholas, J. C. Portal, and A. Chevy, Solid State Commun. 44, 379 (1982).

- J. C. Maan, Th. Englert, D. C. Tsui, and A. C. Gossard, Appl. Phys. Lett. 40, 609 (1982).
- C. Kallin and B.I. Halperin, Phys. Rev. B 31, 3635 (1985).
- Z. D. Kvon, S. N. Danilov, N. N. Mikhailov, S. A. Dvoretsky, and S. D. Ganichev, Physica E 40, 1885 (2008).
- D. Hagenmüller, S. De Liberato, and C. Ciuti, Phys. Rev. B 81, 235303 (2010).
- Q. Zhang, T. Arikawa, E. Kato, J.L. Reno, W. Pan, J.D. Watson, M.J. Manfra, M.A. Zudov, M. Tokman, M. Erukhimova, A. Belyanin, and J. Kono, Phys. Rev. Lett. **113**, 047601 (2014).
- I. V. Andreev, V. M. Muravev, V. N. Belyanin, and I. V. Kukushkin, Appl. Phys. Lett. 105, 202106 (2014).
- T. Maag, A. Bayer, S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Korn, C. Schüller, D. Schuh, D. Bougeard, C. Lange, R. Huber, M. Mootz, J. E. Sipe, S. W. Koch, and M. Kira, Nat. Phys. 12, 119 (2016).
- V. M. Muravev, I. V. Andreev, S. I. Gubarev, V. N. Belyanin, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B 93, 041110 (2016).
- 14. А.В. Чаплик, ЖЭТФ 62, 746 (1972).
- U. Mackens, D. Heitmann, L. Prager, J.P. Kotthaus, and W. Beinvogl, Phys. Rev. Lett. 53, 1485 (1984).
- P.J. Burke, I.B. Spielman, J.P. Eisenstein, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, Appl. Phys. Lett. 76, 745 (2000).
- V. M. Muravev, C. Jiang, I. V. Kukushkin, J. H. Smet, V. Umansky, and K. von Klitzing, Phys. Rev. B 75, 193307 (2007).
- W.F. Andress, H. Yoon, K.Y.M. Yeung, L. Qin, K. West, L. Pfeiffer, and D. Ham, Nano Lett. **12**, 2272 (2012).
- 19. J. Chen, М. Badioli, Ρ. Alonso-Gonzalez, S. Thongrattanasiri, F. Huth, J. Osmond. M. Spasenovic, A. Centeno, A. Pesquera, P. Godignon, Zurutuza Elorza, N. Camara, F. Abajo, А. R. Hillenbrand, and F. H. L. Koppens, Nature (London) 487, 77 (2012).
- Z. Fei, A.S. Rodin, G.O. Andreev, W. Bao, A.S. McLeod, M. Wagner, L.M. Zhang, Z. Zhao, M. Thiemens, G. Dominguez, M.M. Fogler, A.H. Castro Neto, C.N. Lau, F.Keilmann, and D.N.Basov, Nature (London) 487, 82 (2012).
- G. C. Dyer, G. R. Aizin, S. J. Allen, A. D. Grine, D. Bethke, J. L. Reno, and E. A. Shaner, Nat. Photonics 7, 925 (2013).
- D. A. Iranzo, S. Nanot, E. J. C. Dias, I. Epstein, C. Peng, D. K. Efetov, M. B. Lundeberg, R. Parret, J. Osmond, J.-Y. Hong, J. Kong, D. R. Englund, N. M. R. Peres, and F. H. L. Koppens, Science **360**, 291 (2018).
- D. A. Bandurin, D. Svintsov, I. Gayduchenko et al. (Collaboration), Nat. Commun. 9, 5392 (2018).

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

- 24. Yu. A. Kosevich, A. M. Kosevich, and J. C. Granada, Phys. Lett. A **127**, 52 (1988).
- 25. А.В. Чаплик, Письма в ЖЭТФ 101, 602 (2015).
- A. A. Zabolotnykh and V. A. Volkov, Phys. Rev. B 103, 125301 (2021).
- I.V. Kukushkin, J.H. Smet, K. von Klitzing, and W. Wegscheider, Nature (London) 415, 409 (2002).
- V. M. Muravev, I. V. Andreev, S. I. Gubarev, V. N. Belyanin, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B 93, 041110(R) (2016).
- S. J. Allen, H. L. Störmer, and J. C. M. Hwang, Phys. Rev. B 28, 4875 (1983).

- 30. С. С. Назин, В. Б. Шикин, ФНТ 15, 227 (1989).
- 31. В. А. Волков, С. А. Михайлов, ЖЭТФ **94**, 217 (1988).
- 32. A. L. Fetter, Phys. Rev. B 33, 5221 (1986).
- 33. D.B. Mast, A.J. Dahm, and A.L. Fetter, Phys. Rev. Lett. 54, 1706 (1985).
- 34. T. N. Theis, J. P. Kotthaus, and P. J. Stiles, Solid State Commun. 24, 273 (1977).
- 35. I.V. Andreev, V.M. Muravev, N.D. Semenov, and I.V. Kukushkin, Phys. Rev. B. 103, 115420 (2021).
- I. V. Kukushkin, J. H. Smet, S. A. Mikhailov, D. V. Kulakovskii, K. von Klitzing, and W. Wegscheider, Phys. Rev. Lett. 90, 156801 (2003).

## О спектре межслойных шероховатостей в фосфолипидном мультислое

А. М. Тихонов<sup>\*1)</sup>, В. Е. Асадчиков<sup>+</sup>, Ю. О. Волков<sup>+×1)</sup>, Б. С. Рощин<sup>+</sup>, Ю. А. Ермаков<sup>°</sup>

\*Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН, 119334 Москва, Россия

<sup>+</sup>Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова Федерального научно-исследовательского центра "Кристаллография и фотоника" РАН, 119333 Москва, Россия

×Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

<sup>о</sup> Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН, 119071 Москва, Россия

Поступила в редакцию 30 сентября 2021 г. После переработки 8 октября 2021 г. Принята к публикации 8 октября 2021 г.

В рамках безмодельного подхода по данным незеркального рентгеновского рассеяния исследованы спектральные свойства корреляционной функции высот межслойных границ в ламеллярной пленке 1,2-дистеароил-sn-глицеро-3-фосфохолина, нанесенной на поверхности гидрозоля аморфных наночастиц кремнезема. Анализ данных показывает, что спектр межслойных шероховатостей в мультислое качественно отличается от предсказания теории капиллярных волн во всем рассмотренном интервале пространственных частот.

DOI: 10.31857/S1234567821220092

Жесткое рентгеновское излучение в силу малой длины волны является тонким инструментом для исследования, определения и контроля внутренней структуры монослоев, наноразмерных пленочных и многослойных покрытий, которые широко используются в электронике, спинтронике и оптике [1]. Ранее в работе [2] продемонстрирована новая мультислойная технология, позволяющая формировать плоские ламеллярные структуры из дифильных молекул цвитерионных фосфолипидов на поверхности гидрозоля аморфных наночастиц кремнезема. Недавно в работе [3] по данным диффузного рассеяния и рефлектометрии в рамках модельного подхода с использованием формализма первого борновского приближения искаженных волн [4] получена противоречивая оценка для величины межслойной шероховатости липидного мультислоя. Ниже мы приводим новые и систематические экспериментальные данные для незеркальной компоненты упругого рассеяния на пленке фосфолипида DSPC, анализ которых проведен с привлечением безмодельного подхода, разработанного ранее Кожевниковым для оценки качества покрытий твердотельных зеркал [5]. Данный метод позволяет, в частности, исследовать спектральные свойства корреляционной функции высот межслойных границ [6], которая, как оказалось, имеет некапиллярноволновую природу.

Технология приготовления ламеллярных пленок 1,2-дистеароил-sn-глицеро-3-фосфохолина (DSPC,  $C_{44}H_{88}NO_8P$ ) на поляризованной поверхности коллоидного раствора кремнезема [7] подробно описана в работе [3]. Образцы приготавливались и изучались при нормальных условиях во фторопластовой тарелке диаметром ~100 мм [8], помещенной в герметичный контейнер с рентгенопрозрачными окнами. В качестве подложки использовались растворы аморфных наночастиц кремнезема диаметром  $\approx 12$  нм (Grace Davison, Ludox HS-40, pH  $\approx$  9.7) с массовой долей SiO<sub>2</sub> примерно 40 % и концентрацией катионов Na<sup>+</sup> примерно 0.2 моль/л [9, 10].

Рентгеновские измерения были проведены на лабораторном дифрактометре с подвижной системой источник-детектор на рабочей длине волны К $\alpha$ линии меди  $\lambda = 1.5405 \pm 0.0001$  Å (энергия фотонов  $E \approx 8048.1$  эВ) [11]. Трехщелевая коллимационная система обеспечивала угловую ширину зондирующего пучка в плоскости падения  $\Delta \theta_0 \sim 10^{-4}$  рад. Измерения зависимостей коэффициента отражения Rи интенсивности диффузного рассеянного I от угла рассеяния в плоскости падения  $\theta$  проводились сцинтилляционным детектором SCSD-4 (Radicon) с угловым разрешением  $\Delta \theta \sim 2 \cdot 10^{-4}$  рад.

 $<sup>^{1)}</sup>$ e-mail: tikhonov@kapitza.ras.ru; volkov.y@crys.ras.ru

10'10 10 X where a start where the start  $10^{-6}$  $10^{-8}$ 0 1 2 3 4 θ (deg)

На рисунке 1 показана экспериментально изме-

ренная угловая зависимость коэффициента отраже-

Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость коэффициента отражения R от угла скольжения  $\theta$  для мультислоя DSPC на поверхности гидрозоля 12-нм наночастиц SiO<sub>2</sub>. Кружки – экспериментальные точки. Сплошная линия – расчет в рамках безмодельного подхода

ния  $R(\theta)$ . На рисунке 2а–d приведены угловые распределения диффузного (незеркального) рассеяния  $\Phi(\theta_0, \theta)$  при углах скольжения  $\theta_0 = 0.14^\circ, 0.42^\circ, 0.67^\circ$ и 1.3°, соответственно,

$$\Phi(\theta_0, \theta) = \frac{1}{I_0} \frac{dI}{d\theta},$$

где  $I_0$  – интенсивность падающего луча. Отметим, что значения углов скольжения были выбраны в соответствии с положением критического угла полного внешнего отражения  $\theta_c = \lambda \sqrt{r_e \rho_b / \pi} \simeq 0.17^\circ$  (где  $r_e = 2.814 \cdot 10^{-5}$  Å – классический радиус электрона, а  $\rho_b \approx 0.40 \, e^-/{\rm \AA}^{-3}$  – средняя электронная концентрация в подложке) и экстремумов зеркального отражения вблизи первых двух брэгговских пиков на кривой  $R(\theta)$ .

Восстановление структуры мультислоя было проведено в рамках модельно-независимого подхода, основанного на асимптотическом продолжении коэффициента отражения  $R(q_z)$  в область больших значений  $q_z = (4\pi/\lambda)\sin\theta$  [5]. Ранее мы успешно применили этот подход к описанию поверхности кремнеземных гидрозолей с нанесенным фосфолипидным монослоем [12]. В этом методе отсутствует необходимость в априорном предположении о форме профиля электронной концентрации поперек поверхности,

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

которое делается в традиционном модельном подходе [13].

Модельно-независимый подход позволяет непосредственно получить абсолютное распределение поляризуемости среды  $\delta(z)$  и, соответственно, распределение электронной плотности  $\rho(z) \approx \pi \delta(z)/(r_e \lambda^2)$ . В рассматриваемом случае поляризуемость представляется в виде кусочно-непрерывной функции с особыми точками  $\Delta^1(z_i)$ , в которых 1-я производная  $d\delta/dz$  меняется скачкообразно. При этом асимптотика спада кривой отражения на рис. 1 удовлетворяет условию  $R(q_z \to \infty) \sim 1/q_z^6$ , что отличается от аксиоматически применяемой в прочих рентгеновских подходах асимптотики Порода ~  $1/q_z^4$  [14]. Процедура реконструкции профиля, в свою очередь, состоит из численной подгонки расчетной угловой зависимости коэффициента отражения  $R_c(\theta, \rho(z))$  к экспериментально измеренной  $R(\theta)$ , используя положение и значение особых точек  $\Delta^1(z_i)$  в качестве дополнительной регуляризации. Более детально этот метод изложен в работах [5, 15].

На рисунке 3 представлен рассчитанный безмодельный профиль  $\rho(z)$  для мультислоя DSPC с периодом  $d \approx 68$  Å, нормированный на значение объемной электронной плотности воды  $\rho_w = 0.333 \, e^-/\text{\AA}^{-3}$ . Соответствующая ему расчетная кривая отражения показана на рис. 1 сплошной линией.

В общем случае двумерная индикатриса рассеяния от произвольной структуры из М слоев имеет вид [16]:

$$\Phi(\theta_0, \theta, \varphi) =$$

$$= \frac{k^4}{(4\pi)^2 \sin \theta_0} \sum_{i,j=1}^{M+1} a_i(\theta_0, \theta) a_j^*(\theta_0, \theta) \times \text{PSD}^{ij}(\nu), \quad (1)$$

где

$$a_j(\theta_0, \theta) = (\delta_{j-1} - \delta_j)\psi(z_j, \theta_0)\psi(z_j, \theta);$$
  
$$\delta_0 = 0, \quad \delta_{M+1} = \delta_+,$$

 $\delta_i$  – поляризуемость *j*-го слоя,  $\delta_+$  – поляризуемость подложки,  $\psi(z, \theta)$  – волновая амплитуда в среде,  $k = 2\pi/\lambda$  – волновое число, суммирование ведется по всем парам границ раздела структуры, а кросскорреляционные функции

$$\mathrm{PSD}^{ij}(\nu) = \int^{S} \left\langle \zeta_{i}(\mathbf{p})\zeta_{j}(\mathbf{p} + \mathbf{p}') \right\rangle \exp(i\nu\mathbf{p}) d^{2}\mathbf{p},$$

где  $\mathbf{p} = (x, y)$  – латеральный вектор, S – площадь облучаемой поверхности,  $\zeta_i(\mathbf{p}) - \phi$ ункция высоты рельефа j-й границы раздела, и  $\nu = k |\cos \theta - k|$  $-\cos\theta_0$  – пространственная частота. Очевидно, точный анализ рассеяния требует учета  $2^M + 1$  кросс-





Рис. 2. (Цветной онлайн) Индикатрисы рассеяния  $\Phi(\theta_0, \theta)$  от мультислоя DSPC при углах скольжения  $\theta_0$ : (a) – 0.14°, (b) – 0.42°, (c) – 0.67° и (d) – 1.31°. Кружки – экспериментальные точки. Сплошные линии – расчет в рамках безмодельного подхода

корреляционных функций PSD<sup>(ij)</sup>, что делает эту задачу плохо обусловленной применительно к системе с большим числом слоев.

Для дальнейшего рассмотрения были приняты следующие упрощающие предположения:

- все слои в структуре описываются одной и той же моделью липидного бислоя [3];
- шероховатости всех границ раздела полностью коррелированы, т. е.  $\langle \zeta(\mathbf{p}, z)\zeta(\mathbf{p}, z+d) \rangle = 1;$
- шероховатости всех границ раздела описываются одной и той же функцией спектральной

плотности мощности высоты шероховатостей (корреляционным спектром) PSD( $\nu$ );

• шероховатости всех границ раздела являются изотропными, т.е. спектр шероховатостей PSD зависит только от модуля пространственной частоты  $\nu \equiv 2\pi/|\mathbf{p}|$ .

В рамках этих предположений возможно вычисление индикатрисы рассеяния по упрощенному алгоритму [17].

Пусть внутри периодической полубесконечной структуры распределение поля подчиняется следующему условию [18]:



Рис. 3. Распределение электронной плотности  $\rho(z)$  по глубине, нормированное на электронную плотность воды  $\rho_w = 0.333 \, e^-/\text{Å}^{-3}$ , для мультислоя DSPC на поверхности гидрозоля 12-нм наночастиц SiO<sub>2</sub>, которое рассчитано в рамках модельно-независимого подхода

$$\psi(z,\theta) = e^{i\eta(\theta)z} \cdot u(z,\theta), \tag{2}$$

где  $u(z, \theta)$  – периодическая функция с регулярным интервалом d. Тогда достаточно вычислить значения функции u(z) только в точках z = 0 и  $z = \Gamma d$ , где  $\Gamma$  – толщинный параметр, соответствующий положению границы раздела между элементами периодического слоя. В свою очередь, зная модель периодического слоя и амплитудный коэффициент отражения  $r(\theta)$  от всей структуры, можно рассчитать функции  $u(0, \theta) = 1 + r(\theta), u(\Gamma d, \theta) = \psi(\Gamma d, \theta) e^{-i\eta(\theta)\Gamma d}$  и  $e^{-i\eta(\theta)d} = \psi(d, \theta)/u(0, \theta)$  в явном виде по методике, детально изложенной в [17]. Окончательное выражение для индикатрисы рассеяния от такой периодической структуры имеет вид:

$$\Phi(\theta_0, \theta) = \frac{k^4}{4\sin\theta_0} \text{PSD}(\nu) \times \\ \times \left| \frac{(\delta_2 - \delta_1) \left[ \omega(0) e^{i\chi} - \omega(\Gamma d) e^{i\chi\Gamma} \right]}{1 - e^{i\chi}} + \delta_1 \omega(0) \right|^2, \quad (3)$$

где

$$\omega(z) = u(z, \theta_0)u(z, \theta)$$

И

$$\chi = \eta(\theta_0)d + \eta(\theta)d$$

в случае полностью коррелированных шероховатостей разных границ раздела с одной и той же функ-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

цией  $PSD(\nu)$ . Отметим, что первое слагаемое под модулем в (3) описывает суммарное рассеяние от всех внутренних границ раздела, а второе слагаемое – рассеяние от внешней поверхности структуры.

В свою очередь, для количественного описания шероховатости стохастической поверхности (изотропной) удобно использовать трехпараметрическую *К*-корреляционную функцию [19]:

$$PSD(\nu) = \frac{\sigma^2 \zeta_c^2 h}{\pi (1 + \zeta_c^2 \nu^2)^{1+h}},$$
(4)

где  $\sigma$  – среднеквадратичная высота шероховатости,  $\zeta_c$  – характерный корреляционный радиус, h – параметр фрактальной размерности рельефа.

Далее задача характеризации рассеяния в рамках принятых упрощенных предположений сводится к нахождению этих трех параметров путем одновременной численной подгонки расчетных индикатрис рассеяния  $\Phi(\theta_0, \theta, \text{PSD})$  к экспериментальным зависимостям для различных значений  $\theta_0$  (рис. 2).

Границы интервала пространственных частот  $\nu_{\min} \dots \nu_{\max}$ , задействованных в эксперименте рассеяния, определяются максимальным значением угла  $\theta' \approx 7^{\circ}$ , при котором возможно разделить поверхностное рассеяние от объемного фона, и угловым разрешением детектора  $\Delta \theta$ . Таким образом,  $\nu_{\max} \sim k(1 - \cos \theta') \sim 0.3 \, \text{нm}^{-1}$ , а  $\nu_{\min} \sim k \sin \theta' \Delta \theta \sim 10^{-5} \, \text{нm}^{-1}$ .

Найденные параметры составили  $\sigma = 8.1$  Å,  $\zeta_c = 0.43$  мкм, h = 0.23; соответствующая им *K*-корреляционная функция приведена на рис. 4. Расчетные индикатрисы рассеяния  $\Phi(\theta_0, \theta, \text{PSD})$  показаны на рис. 2 сплошными линиями.

Относительно большая величина параметра  $\sigma$  связана с особенностями процесса упорядочения ламеллярной структуры, который происходит в условиях транспорта ионов электролита и гидратной воды [20]. Последний возникает благодаря явлению электропорации липидного бислоя (диэлектрической неустойчивости) [21, 22] в электрическом поле на поверхности гидрозоля и неизбежно приводит к образованию множества дефектов структуры, проявляющихся в некапиллярно-волновом уширении границ между липидными слоями.

В работе [3] анализ данных проведен из предположения, что спектр  $PSD(\nu)$  корреляционной функции высот описывается капиллярно-волновой моделью [23]

$$PSD(\nu) = \frac{k_B T}{4\pi\gamma} \cdot \frac{1}{\nu^2 + \rho g/\gamma},$$
(5)

где  $k_B$  – постоянная Больцмана, T – температура,  $\gamma$  – поверхностное натяжение,  $\rho$  – плотность жид-



Рис. 4. (Цветной онлайн) Функция спектральной плотности мощности шероховатостей межслойных границ PSD( $\nu$ ). Непрерывная линия 1 – расчет по (4) при  $\sigma = 8.1$  Å,  $\zeta_c = 0.43$  мкм, h = 0.23. Штрих-пунктирная линия 2 – спектр корреляционной функции капиллярных волн, рассчитанный по (5) при  $\gamma = 42$  мH/м

кости,  $g = 9.81 \,\mathrm{m/c^2}$  – ускорение свободного падения. На рисунке 4 штрих-пунктирной линией показан спектр (5), соответствующий характерной для липидной пленки DSPC величине  $\gamma = 42 \,\mathrm{mH/m}$  ( $\sigma = = 3.5 \,\mathrm{\AA}$ ).

Хотя приведенная ранее в [3] оценка для шероховатости (интегральная величина)  $\sigma = 5-7$  Å близка к полученной в рамках безмодельного расчета, однако она соответствует капиллярно-волновой структуре с  $\gamma$ , лежащем в физически недостижимом диапазоне  $(\gamma < 10 \, {\rm MH/M})$ . Это отражает принципиальное отличие спектральных зависимостей (4) и (5) во всем рассмотренном интервале пространственных частот. Так, более быстрый спад PSD-функции с увеличением пространственной частоты указывает на меньший вклад, по сравнению с модельным спектром капиллярных волн (5), латеральных возмущений плотности в шероховатость (однородные ориентированные бислои). Схожие выводы были получены ранее в работах [24, 25] для бислоев DMPC и DPPC в рамках теории смектических жидких кристаллов. Однако непосредственно статистика шероховатости авторами в этих публикациях не обсуждается, а рассмотрение ламеллярных структур ограничивается только модельно-зависимыми оценками для таких величин липидного бислоя, как модуль изгиба и сжатия.

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках выполнения работ по Государственному заданию институтов РАН. Измерения в лабораторных условиях выполнены при поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований #19-29-12045-мк. Теоретическая часть работы выполнена за счет гранта Российского научного фонда (проект #18-12-00108). Участие Ю. А. Ермакова поддержано грантом Российского фонда фундаментальных исследований #19-04-00242-а. Авторы благодарны компании Grace Davison за предоставление растворов коллоидного кремнезема.

- M. Tolan, X-ray Scattering from Soft-Matter Thin Films, Springer Tracts in Modern Physics, Springer, Berlin, Heidelberg (1999), v. 148.
- 2. А.М. Тихонов, Письма в ЖЭТФ 92, 394 (2010).
- 3. А.М. Тихонов, ЖЭТФ 158, 821 (2020).
- S.K. Sinha, E.B. Sirota, S. Garoff, and H.B. Stanley, Phys. Rev. B 38, 2297 (1988).
- I. V. Kozhevnikov, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 508, 519 (2003).
- А. М. Тихонов, В. Е. Асадчиков, Ю. О. Волков, Б. С. Рощин, В. Хонкимаки, М. Бланко, ЖЭТФ 159, 5 (2021).
- 7. A. M. Tikhonov, J. Chem. Phys. 130, 024512 (2009).
- А. М. Тихонов, В. Е. Асадчиков, Ю. О. Волков, А. Д. Нуждин, Б. С. Рощин, ПТЭ 1, 146 (2021).
- 9. T. Graham, Trans. Roy. Soc. (London) 151, 183 (1861).
- J. W. Ryznar, Colloidal Chemistry: Theoretical and Applied, ed. by J. B. Alexander, Reinhold Publishing Corporation, N.Y., USA (1946), v. VI.
- 11. В.Е. Асадчиков, В.Г. Бабак, А.В. Бузмаков и др. (Collaboration), ПТЭ **3**, 99 (2005).
- В. Е. Асадчиков, В. В. Волков, Ю. О. Волков, К. А. Дембо, И. В. Кожевников, Б. С. Рощин, Д. А. Фролов, А. М. Тихонов, Письма в ЖЭТФ 94, 625 (2011).
- L. Hanley, Y. Choi, E.R. Fuoco, F.A. Akin, M.B.J. Wijesundara, M. Li, A.M. Tikhonov, and M.L. Schlossman, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 203, 116 (2003).
- 14. P.Z. Wong, Phys. Rev. B 32, 7417 (1985).
- I. V. Kozhevnikov, L. Peverini, and E. Ziegler, Phys. Rev. B 85, 125439 (2012).
- А. В. Виноградов, И.В. Кожевников, Отражение и рассеяние рентгеновского излучения от шероховатых поверхностей, Труды ФИАН, Наука, М. (1989), т. 196, с. 18–46.
- I. V. Kozhevnikov, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 498, 482 (2003).
- В. А. Якубович, В. М. Старжинский, Линейные дифференциальные уравнения с периодическими коэффициентами, Наука, М. (1972).

- 19. G. Palasantzas, Phys. Rev. B 48, 14472 (1993).
- А. М. Тихонов, В. Е. Асадчиков, Ю. О. Волков, Б. С. Рощин, И. С. Монахов, И. С. Смирнов, Письма в ЖЭТФ 104, 880 (2016).
- 21. J. M. Crowley, Biophys. J. 13, 711 (1973).
- K. C. Melikov, V. A. Frolov, A. Shcherbakov, A. V. Samsonov, Yu. A. Chizmadzhev, and L. V. Chernomordik, Biophys. J. 80, 1829 (2001).
- A. Braslau, P.S. Pershan, G. Swislow, B. M. Ocko, and J. Als-Nielsen, Phys. Rev. A 38, 2457 (1988).
- R. Zhang, S. Tristram-Nagle, W. Sun, R. L. Headrick, T. C. Irving, R. M. Suter, and J. F. Nagle, Biophys. J. 70, 349 (1996).
- H. Petrache, N. Gouliaev, S. Tristram-Nagle, R. Zhang, R. M. Suter, and J. F. Nagle, Phys. Rev. E 57, 7014 (1998).

#### Пьезоэлектрические свойства пористого кремния

В. А. Морозов<sup>+</sup>, А. Г. Зегря<sup>\*</sup>, Г. Г. Зегря<sup>\*1)</sup>, Г. Г. Савенков<sup>×</sup>

+ Санкт-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия

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

<sup>×</sup> Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет), 190013 С.-Петербург, Россия

> Поступила в редакцию 25 июля 2021 г. После переработки 10 октября 2021 г. Принята к публикации 12 октября 2021 г.

На основании теоретического анализа и прямых экспериментов с образцами на основе пористого кремния *n*- и *p*-типа установлено, что пористый кремний, в связи с понижением симметрии кристаллической решетки, становится пьезоэлектриком. Показано, что оба типа (*n*- и *p*-) пористого кремния обладают пьезоэлектрическими свойствами; при этом пьезоэлектрические свойства пористого кремния *n*-типа, в 2.5 слабее пьезоэлектрических свойств пористого кремния *p*-типа, при одной и той же степени пористости. Это объясняется тем, что при одной и той же степени пористости, поры в кремнии *p*-типа более широкие и ровные при удалении от поверхности вглубь материала, а в пористом кремнии *n*-типа более узкие и извилистые.

DOI: 10.31857/S1234567821220109

1. Введение. Пористый кремний (por-Si), обладая рядом физико-химических свойств, не характерных для однородного кристаллического кремния, на сегодняшний день является перспективным материалом для применения в различных отраслях науки и техники [1–4]. Так, например, por-Si может быть применён в светоизлучательной оптоэлектронике [5], фотонике, в энергетике – в качестве мощного концентрированного источника энергии [4].

Наряду с этим в различных областях современной техники широко используются пьезоэлектрические материалы. В последние годы большое внимание уделяется получению биосовместимых материалов, упорядоченных на нано- и микроуровне и обладающих большими пьезоэлектрическими коэффициентами. Такие материалы необходимы как в биомедицине для создания клеточных структур и биосенсоров, так и в микроэлектронике, для разработки биосовместимых элементов. Кроме биомедицины и микроэлектроники пьезоэффект используется и в других важнейших самостоятельных областях науки и техники [6].

Кандидатами для таких применений являются самые различные материалы, в том числе и пористый кремний. Однако до настоящего времени исследования по изучению пьезоэлектрических свойств и измерению пьезоэлектрических характеристик пористого кремния носили единичный характер [7].

В работе [7] был установлен обратный пьезоэффект для пластинок в виде дисков из por-Si (n-типа) с пористостью 60 %, толщиной 50 мкм и диаметром 25.4 мм. После изготовления пластинок они пассивировались в кислородной атмосфере в течение 30 мин при температуре 450 °C.

Отметим, что в работе [7] отклик материала достигал своего пика изгибной деформации только через минуту после приложенного электрического напряжения, что в указанной работе не нашло своего объяснения. Хотя, в принципе, этот эффект может быть связан с джоулевым нагревом пластинки.

Настоящая работа направлена на исследование прямого пьезоэлектрического эффекта и измерению пьезоэлектрических характеристик пористого кремния. Диаметр пор позволяет классифицировать пористый кремний следующим образом [1]: нанопористый кремний, для которого диаметр пор не превышает 2 нм; мезопористый кремний, диаметр пор находится в диапазоне от 2 до 50 нм; макропористый кремний, диаметр пор более 50 нм.

2. Структурные свойства пористого кремния. Для получения пористого кремния мы использовали две партии пластин монокристаллического кремния с высоким уровнем легирования бором (*p*типа) и мышьяком (*n*-типа) порядка  $1.1 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup>.

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: zegrya@theory.ioffe.ru

Слои пористого кремния получали путем двустороннего электрохимического травления в гальваностатическом режиме пластин монокристаллического кремния толщиной 750 мкм с ориентацией поверхности (100). В качестве электролита использовалась смесь равных объемов плавиковой кислоты (48 % HF) и этилового спирта.

Электрохимическое травление пластин высоколегированного кремния позволяет получать механически стабильные слои мезопористого материала толщиной пористого слоя до ~250 мкм, диаметром пор 20-30 нм, толщиной стенок между порами 3-10 нм, и пористостью до  $\sim 75$  %. Структура таких слоев формируется системой ветвящихся пор, распространяющихся преимущественно вдоль кристаллографических направлений (100) (рис. 1). Таким образом, по классификации Международного союза по чистой и прикладной химии (IUPAC) исследуемый нами пористый кремний относится к мезопористым структурам. Пластины (слои) пористого кремния вручную измельчали в ступке, просеивали через сито с размерами ячеек  $40 \times 40$  мкм. По такой технологии получали порошок нанопористого кремния с размером частиц  $30 \times 40$  мкм [8], который в дальнейшем и использовался в экспериментах.



Рис. 1. Морфология поверхности мезопористой пластины *p*-типа (получено с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ)) [4]

При степени пористости порядка 75 % и толщинах стенок пор 3–10 нм удельная поверхность пор полученного материала составляет  $200-250 \text{ m}^2/\text{г}$ . Исследование структурных параметров образцов наноструктурированного пористого кремния проводилось методом адсорбционно-структурного анализа (ACA) [9]

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

на анализаторе ASAP 2020 (Micromeritics) по изотермам адсорбции и десорбции азота при 77 K [8].

В работе [10] нами подробно исследованы механизмы влияния изменений концентраций свободных носителей заряда в кристаллах кремния p- и n-типов проводимости на поперечные размеры пор, образующихся в них в результате анодного травления. Экспериментально и теоретически показано, что в кристаллах n-типа, поперечный размер пор убывает с ростом концентрации равновесный носителей, а в кристаллах p-типа растет. При концентрации носителей заряда в пластинах кремния порядка  $1.1 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup> поперечный размер пор в структурах n-типа порядка 10 нм, а структурах p-типа, порядка 30 нм [10].

Дальнейший анализ пьезоэффекта мы проводили для пористого кремния *p*-типа.

Важным инструментом для исследования структурных характеристик por-Si, дающих полезную информацию, является рентгеновская дифракция [11].

Первые наблюдения [12] показали, что мезопористый кремний представляет собой кристаллический пористый материал. Позже был обнаружен важный результат, что por-Si ведет себя как монокристалл и дает дифракционные пики, почти такие же узкие, как у идеального однородного Si [13].

Результаты рентгеноструктурного анализа (рис. 2) показывают, что кристаллическая структура образцов мезопористого кремния *p*-типа наследует структуру исходного монокристаллического материала, сохраняя пространственную ориентацию фрагментов кристаллических плоскостей в стенках пор (рис. 2a).

Однако в пористом кремнии небольшая доля объема находится в нанокристаллическом или аморфном состоянии [14], о чем свидетельствует наличие пьедестала на диаграммах (рис. 2).

Расхождение угловых положений дифракционных максимумов от пористого слоя (por-Si) и исходного монокристалла (Si), показанное на рис. 2b, обусловлено наличием растягивающих напряжений, увеличивающих межплоскостные расстояния в пористом материале.

Угловое расщепление  $\Delta\theta$  между двумя узкими пиками por-Si и Si (puc. 2b) соответствует увеличению  $\Delta a/a_{\rm Si}$  – параметра решетки пористого слоя относительно Si, вдоль направления (001), перпендикулярно поверхности образца (здесь  $\Delta a = a_{\rm Si} - a_{\rm por}$ , где  $a_{\rm Si}$  – постоянная решетки монокристаллического кремния,  $a_{\rm por}$  – постоянная решетки por-Si). Это означает, что в пористой структуре наблюдается деформация растяжения. Параметр рассогласования



Рис. 2. (Цветной онлайн) Угловые диаграммы рентгеновской дифракции в пористом кремнии (por-Si) (a), в сравнении с монокристаллическим кремнием (Si) (b) в направлении нормали к поверхности и в плоскости пластины

решетки пористого кремния можно определить, как  $\Delta a/a_{\rm Si} = -\Delta \theta/ \operatorname{tg} \theta$  [15]. Анализ показал, что в пористом кремнии *p*-типа рентгенограммы получаются лучшего качества. Это связано с тем, что, как правило, в таких материалах поры, являются более прямыми и более широкими, чем в пористых структурах *n*-типа [10, 16].

Также получено, что при увеличении степени пористости происходит линейное увеличение постоянной решетки по направлению нормали к поверхности пор; причем, чем выше степень пористости, тем больше растяжение. Данный результат подтверждается и в других работах: получено, что значение  $\Delta a/a_{\rm Si}$ увеличивается линейно с пористостью, от  $3 \cdot 10^{-4}$ до  $12 \cdot 10^{-4}$ , когда пористость изменяется от 30 до 90 % [17].

3. Теоретическое обоснование пьезоэлектрических свойств мезопористого кремния. Как известно, кремний относиться к группе симметрии куба  $O_h$  и содержит 48 элементов симметрии, включая центр инверсии *i*. Любой тензор третьего ранга, описывающий свойства кристалла класса  $O_h$ , равен нулю. Следовательно, в кремнии, как и в германии, отсутствует пьезоэлектрический эффект [18].

Деформация растяжения в пористом кремнии приводит к понижению симметрии кристаллической решетки, а именно, к потере центра инверсии. В результате симметрия мезопористого кремния понижается и относится к группе тетраэдра  $T_d$ . Группа симметрии тетраэдра допускает наличие тензора третьего ранга, а, следовательно, и наличие пьезоэлектрического эффекта.

Поляризацию кристалла (дипольный момент единицы объема) обозначим через **P**. При слабых деформациях можно ограничиться линейным по деформации пьезоэлектрическим эффектом. Тогда дипольный момент единицы объема  $\mathbf{P}(\varepsilon)$  равен:

$$P_{\alpha} = \sum_{\delta\nu} Q_{\alpha\delta\nu} \varepsilon_{\delta\nu}.$$
 (1)

Тензор третьего ранга  $Q_{\alpha\delta\nu}$  характеризует пьезоэлектрические свойства мезопористого кремния, а  $\varepsilon_{\alpha\beta}$  тензором деформации, который является симметричным тензором второго ранга.

Рассмотрим свойства тензора третьего ранга  $Q_{\alpha\delta\nu}$ . Если координатные оси направить вдоль ребер куба, то преобразованиям симметрии группы *T<sub>d</sub>* соответствуют все возможные перестановки координат со всеми возможными изменениями четного количества знаков тензора. Отсюда следует, что при преобразованиях группы T<sub>d</sub> знаки могут менять все компоненты тензора Q, кроме компонент, у которых все три индекса разные:  $Q_{xyz}$ ,  $Q_{xzy}$ ,  $Q_{yxz}, Q_{yzx}, Q_{zxy}, Q_{zyx}$ . Таким образом, только эти шесть компонент тензора третьего ранга отличны от нуля. Так как в группу T<sub>d</sub> входят все перестановки координат, то все шесть компонент равны между собой [18]. Пьезоэлектрический модуль Q характеризует пьезоэлектрические свойства мезопористого кремния. Из результатов рентгеноструктурного анализа (рис. 2) следует, что в пористом кремнии наблюдается одноосная деформация растяжения.

В результате для мезопористого кремния дипольный момент единицы объема равен:

$$P = Q \cdot \varepsilon. \tag{2}$$

В следующем разделе представлены экспериментальные исследования по обнаружению прямого пьезоэлектрического эффекта в пористом кремнии.

4. Методика эксперимента. С целью проверки пьезоэлектрических свойств мезопористого кремния была разработана специальная экспериментальная установка, принципиальная схема которой приведена на рис. 3.



Рис. 3. Принципиальная схема измерения заряда: 1 – корпус; 2 – первый электрод; 3 – второй электрод; 4 – слой мезопористого кремния; 5 – груз; 6 – электрометрический усилитель; С – конденсатор ФТ-3

Во фторопластовом корпусе 1 был сделан цилиндрический канал диаметром 9 мм, на дне которого помещался медный электрод 2 в виде шайбы диаметром 9 мм и толщиной 2 мм. Второй электрод 3 размещался в цилиндрическом канале. Он представлял собой цилиндр диаметром 9 мм, длиной 37 мм, на который насаживался груз 5. Между электродами помещался слой порошка мезопористого кремния 4 массой 190 мг. Слой сжимался под действием силы тяжести груза. Выбирались три массы груза  $m_1 = 3.305$  кг,  $m_2 = 6.305$  кг и 9.305 кг. За счет пьезоэффекта при воздействии силы тяжести F = mg, где *т* – масса груза, *g* – ускорение свободного падения, на электродах 2 и 3 появляются заряды q и происходит зарядка конденсатора ФТ-3 с емкостью 0.22 мкФ. Фторопластовый конденсатор типа ФТ-3 примечателен тем, что держит заряд длительное время. Заряд конденсатора измерялся с помощью электрометрического усилителя У5-6.

**5.** Результаты экспериментов и их обсуждение. При проведении экспериментов с порошком por-Si *p*-типа напряжение заряда конденсатора, из-

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

меренное с помощью электрометрического усилителя, при массе груза  $m_1 = 3.305$  кг и силе тяжести  $F_1 = mg = 3.305 \cdot 9.81 = 32.422$  H составило  $U_1 = 0.05$  B, при массе  $m_2 = 6.305$  кг и силе тяжести  $F_2 = 61.852$  H, соответственно  $U_2 = 0.1$  B. И, наконец, при массе груза  $m_3 = 9.305$  кг напряжение равнялось  $U_3 = 0.15$  B. При этом заряды на электродах  $q_1 = CU_1 = 0.22 \cdot 10^{-6} \cdot 0.05 = 0.011 \cdot 10^{-6}$  Кл,  $q_2 = 0.022 \cdot 10^{-6}$  Кл и  $q_3 = 0.033 \cdot 10^{-6}$  Кл.

Проведение экспериментов с порошком монокристаллического кремния p-типа с вышеуказанными массами грузов не приводило к появлению зарядов на электродах конденсатора и значение напряжения, зафиксированное на электрометрическом усилителе, равнялось U = 0 В.

При проведении экспериментов с порошком рог-Si, изготовленного из монокристаллического кремния *n*-типа, были зафиксированы следующие значения напряжения  $U_1 = 0.02$  В,  $U_2 = 0.04$  В,  $U_3 = 0.06$  В, соответствующие каждому значению вышеприведенных масс груза. Эксперименты с порошком монокристаллического кремния *n*-типа показали результаты, аналогичные порошку монокристаллического кремния *p*-типа: напряжения, зафиксированные на электрометрическом усилителе, равнялись U = 0 В.

Таким образом, с помощью прямого проведенного эксперимента подтверждены пьезоэлектрические свойства мезопористого кремния обоих типов, при этом у por-Si *n*-типа эти свойства выражены намного слабее (напряжение на электродах в 2.5 раза меньше), чем у por-Si *p*-типа.

Отметим, что при пропорциональном увеличении силы сжатия порошка мезопористого кремния напряжение (заряд на электродах), практически, также увеличилось пропорционально. Данный факт указывает на линейный характер пьезоэффекта. В результате, мы получили следующую пьезоэлектрическую константу: для рог-Si *p*-типа –  $Q \approx 1.54 \times 10^{-3}$  B/H, для рог-Si *n*-типа –  $Q \approx 6.17 \cdot 10^{-4}$  B/H.

И, наконец, определим пьезомодуль d исследованных образцов рог-Si. По определению: пьезомодуль d есть отношение электрического заряда q, возникающего на обкладках пьезоэлемента, к вызывающей его деформацию силе F, тогда для рог-Si pтипа  $d = 3.4 \cdot 10^{-10}$  Кл/Н, для рог-Si n-типа –  $d = 1.36 \cdot 10^{-10}$  Кл/Н. Полученные значения пьезомодулей превосходят значения пьезомодуля пьезокерамики на основе цирконата-титаната свинца (ЦТС), у которой  $d \approx 10^{-10}$  Кл/Н, и весьма значительно превосходят значения пьезомодуля кварца X-среза, у которого  $d = 2.3 \cdot 10^{-12}$  Кл/N [19].

6. Заключение. На основании теоретического анализа и прямых экспериментов с образцами на основе пористого кремния, *n*- и *p*-типа установлено: что пористый кремний, в связи с понижением симметрии кристаллической решетки по отношению к однородному монокристаллическому кремнию, становится пьезоэлектриком. Показано, что оба типа (*n*- и *p*-) мезопористого кремния обладают пьезоэлектрическими свойствами; при этом пьезоэлектрические свойства пористого кремния *n*-типа в 2.5 слабее пьезоэлектрических свойств пористого кремния *p*-типа, при одной и той же степени пористости. Это объясняется тем, что при одной и той же степени пористости, поры в кремнии *р*-типа более широкие и ровные при удалении от поверхности вглубь материала, а в пористом кремнии *n*-типа более узкие и извилистые [9, 10]. Этот вывод подтверждается результатами сканирующей электронной микроскопией [11]. Кроме того, из результатов рентгеноструктурного анализа (см. раздел 2) [12, 13] также следует, что при одной той же степени пористости, микроискажения кристаллической решетки пористого материала *р*-типа в несколько раз больше, чем в пористом кремнии *n*-типа. Оба типа (*n*- и *p*-) мезопористого кремния обладают более высокими значениями пьезоэлектрического модуля по сравнению с ЦТСкерамикой и кварцем Х-среза.

- O. Bisia, S. Ossicinib, and L. Pavesic, Surf. Sci. Rep. 38, 1 (2000).
- D. Kovalev, V. Y. Timoshenko, N. Künzner, E. Gross, and F. Koch, Phys. Rev. Lett. 87, 068301 (2001).
- О.И. Ксенофонтова, А.В. Васин, В.В. Егоров, А.В. Бобыль, Ф.Ю. Солдатенков, Е.И. Теруков, В.П. Улин, Н.В. Улин, О.И. Киселев, ЖТФ 84(1), 67 (2014).
- Г. Г. Савенков, А. Г. Зегря, Г. Г. Зегря, Б. В. Румянцев, А. Б. Синани, Ю. М. Михайлов, ЖТФ 89(3), 397 (2019).

- Г. Г. Зегря, Е.В. Шашков, А.А. Карпова, Н.С. Воробьев, В. М. Фрейман, А.Г. Зегря, Ю.С. Соломонов, Письма в ЖЭТФ 114(4), 263 (2021).
- Дж. Барфут, Д. Тейлор, Полярные диэлектрики и их применение, Мир, М. (1981), 526 с.
- S. Vinikman-Pinhasia and E.N. Ribak, Appl. Phys. Lett. 88, 111905-1 (2006).
- А. Г. Зегря, В. В. Соколов, Г. Г. Зегря, Ю. В. Ганин, Ю. М. Михайлов, Письма в ЖТФ 45(21), 3 (2019).
- Е.В. Астрова, Г.В. Федулова, И.А. Смирнова, А.Д. Ременюк, Т.Л. Кулова, А.М. Скундин, Письма в ЖТФ 37, 87 (2011)].
- Г.Г. Зегря, В.П. Улин, А.Г. Зегря, Н.В. Улин, Ю.М. Михайлов, ЖТФ 89(10), 1575 (2019).
- V. Pecharsky and P. Zavalij, Fundamentals of powder diffraction and structural characterization of materials, 2nd ed., Springer, N.Y. (2009).
- M. J. J. Theunissen, J. Electrochem. Soc. 119, 351 (1972); doi:10.1149/1.2404201.
- K. Barla, R. Herino, G. Bomchil, J. C. Pfister, and A. Freund, J. Cryst. Growth 68, 727 (1984); doi:10.1016/0022-0248(84) 90111-8.
- A. Bensaid, G. Patrat, M. Brunel, F. de Bergevin, and R. Hérino, State Commun. **79**, 923 (1991); doi:10.1016/0038-1098(91)90444-Z.
- Porous Silicon Characterization of porous silicon layers by grazing-incidence X-ray fluorescence and diffraction. Solid: From Formation to Application. Formation and Properties, ed. by G. Korotcenkov, Taylor & Francis Group, Boca Raton, London, N.Y. (2016).
- В. П. Улин, Н. В. Улин, Ф. Ю. Солдатенков, ФТП 51(4), 481 (2017).
- K. Barla, R. Herino, G. Bomchil, J.C. Pfister, and A. Freund, J. Cryst. Growth 68, 727 (1984); doi:10.1016/0022-0248(84)90111-8.
- Г. Г. Зегря, В. И. Перель, Основы физики полупроводников, ФИЗМАТЛИТ, М. (2009), 336 с.
- В. М. Лалетин, Д. А. Филиппов, Н. Н. Поддубная, И. Н. Маничева, G. Srinivasan, Письма в ЖТФ 45(9), 16 (2019).
# Пниктиды семейства AFeAs (A = Li, Na) на основе щелочных металлов: современное состояние исследований электронных и сверхпроводящих свойств (Миниобзор)

 $T. E. Кузьмичева^{+1}, C. A. Кузьмичев^{*+}$ 

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

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

Поступила в редакцию 5 октября 2021 г. После переработки 14 октября 2021 г. Принята к публикации 15 октября 2021 г.

Обзор посвящен одному из самых экзотических семейств железосодержащих сверхпроводников, принадлежащих к структурному типу AFeAs, где A – щелочной металл. Кратко рассмотрены физические и электронные свойства типичных представителей этого семейства – LiFeAs и NaFeAs, обсуждаются предложенные для описания многощелевого сверхпроводящего состояния пниктидов теоретические модели и имеющиеся в литературе экспериментальные данные. Обозначены основные нерешенные проблемы, важные как для соединений AFeAs, так и для железосодержащих сверхпроводников в целом.

DOI: 10.31857/S1234567821220110

1. Введение. Слоистые железосодержащие пниктиды AFeAs на основе щелочных металлов имеют умеренные критические температуры T<sub>c</sub> до 22 K и относятся к так называемому структурному семейству 111. Аналогично ферропниктидам других семейств, кристаллическая структура 111-материалов состоит из сверхпроводящих блоков FeAs, чередующихся вдоль с-направления с блоками-носителями щелочных металлов. Представители семейства 111 немногочисленны: стабильные химические структуры образуются только на основе щелочных металлов малого атомарного радиуса (Li и Na), а доступные варианты допирования ограничиваются небольшим набором переходных металлов Tm = Co, Ni, Cu, V,Rh или дефицитом щелочных металлов  $A_{1-\delta}$  FeAs. Тем не менее, соединения AFeAs обладают уникальными свойствами, нехарактерными для большинства высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) и сильно зависящими от состава, поэтому чрезвычайно интересны с фундаментальной точки зрения.

Метод "раствор в расплаве" позволяет выращивать крупные высококачественные монокристаллы AFeAs (размером до 1 см) [1–3]. Однако при исследовании свойств этих удивительных материалов экспериментаторы обычно сталкиваются с рядом трудностей. Например, при экспонировании LiFeAs в от-

крытой атмосфере его критическая температура начинает падать, обращаясь в нуль примерно через 10-20 мин, а между кристаллическими блоками FeAs появляется LiOH. Поскольку кристаллы семейств 111 расслаиваются преимущественно вдоль блоков, содержащих атомы активных щелочных металлов, то их поверхность довольно быстро деградирует в присутствии даже следовых количеств кислорода и паров воды. Азот при комнатной температуре за продолжительное время также вступает в химическую реакцию с AFeAs. Будучи относительно безопасным для стабильности свойств объемного образца, соседство с азотом фатально для поверхности. Таким образом, подготовку к измерениям и сам эксперимент необходимо проводить в "сухом" вакууме или в защитной атмосфере.

Высокое качество криогенных сколов при корректной подготовке эксперимента, доступность крупных монокристаллов и отсутствие поверхностных зон [4] делают сверхпроводники на основе щелочных металлов отличными кандидатами для исследований методами фотоэмиссионной спектроскопии углового разрешения (ARPES) и определения особенностей зонной структуры в высоком разрешении. Тем не менее, сложность работы с такими кристаллами обусловливает небольшое на данный момент количество данных о свойствах этих соединений, полученных другими экспериментальными методами.

 $<sup>^{1)}</sup>$ e-mail: kuzmichevate@lebedev.ru



Рис. 1. (Цветной онлайн) Фазовые диаграммы допирования LiFe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>As и NaFe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>As. Розовым цветом обозначена нематическая фаза при  $T_m < T < T_s$ , голубым цветом - антиферромагнитная (AΦM) фаза с волной спиновой плотности (BCП, SDW) при  $T < T_m$ , желтым цветом – сверхпроводящая (SC) фаза при  $T < T_c$ . Область сосуществования AΦM и сверхпроводящей фаз (разделенных по объему кристалла) показана заштрихованной областью зеленого цвета. Экспериментальные значения температур сверхпроводящего перехода  $T_c$  (символы оранжевого цвета), магнитного  $T_m$  (синего цвета) и структурного переходов  $T_s$  (розового цвета) взяты из работ [3] (треугольники), [9] (ромбы), [10] (кружки) и [11] (квадраты)

В частности, исследования основной характеристики сверхпроводника – сверхпроводящего параметра порядка, его температурной зависимости и симметрии – крайне немногочисленны.

2. Фазовая диаграмма. Фазовая диаграмма пниктидов на основе щелочных металлов заметно отличается от таковой для большинства железосодержащих сверхпроводников. Как известно, относительно полно исследованные оксипниктиды REOFeAs (семейство 1111, RE – редкоземельный металл) и 122-пниктиды AEFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> (AE – щелочноземельный металл) в стехиометрическом составе при температурах порядка  $T_s \sim 120 - 150 \,\mathrm{K}$  испытывают структурный переход из тетрагональной ( $T > T_s$ ) в орторомбическую фазу, сопровождаемый при более низких температурах  $T_m < T_s$  антиферромагнитным (АФМ) переходом в состояние с волной спиновой плотности (ВСП) (в качестве обзора см. [5, 6]). При  $T_m < T < T_s$  в RE-1111 и AE-122 возникает так называемая нематическая фаза – немагнитное состояние с нарушенной C<sub>4</sub>-симметрией поворота abплоскости кристаллической решетки на 90° ( $a \neq b$ ). Сверхпроводящая фаза, представляющая собой "колокол" критической температуры перехода, возникает в тетрагональной структуре при подавлении нематичности и ВСП путем допирования или давления. Напротив, в 111-пниктидах на основе щелочных металлов сверхпроводимость появляется в стехиометрическом составе [3,7–12]. Тем не менее, фазовая диаграмма для представителей семейства 111 не универсальна и значительно меняется в зависимости от щелочного металла.

Соединение LiFeAs полностью немагнитно [13] и обладает оптимальными от природы сверхпроводящими свойствами с максимальной критической температурой  $T_c = 17-18 \,\mathrm{K}$ . Как показано в работах [3,9–11], при частичном электронном замещении (Fe,Co) в блоках FeAs сверхпроводимость быстро разрушается при  $x \approx 0.12 - 0.16$  (рис. 1). Сходный вид фазовой диаграммы был получен при замещении другими переходными металлами (Ni, Cu, V) [14–16], а также для LiFeAs под давлением [17] и кристаллов с дефицитом лития [18]; в последнем случае, для  ${\rm Li}_{1-\delta}{\rm FeAs}$ надежные данные по степени дефицита  $\delta$ в зависимости от конкретной  $T_c$ , к сожалению, отсутствуют. Дальний магнитный порядок не устанавливается ни при сильном дырочном, ни при электронном допировании [9]. Отметим, что такое поведение близко к эволюции свойств диборидов магния MgB<sub>2</sub>: сверхпроводящие свойства этих немагнитных слоистых ВТСП оптимальны в стехиометрическом составе, причем при любом доступном замещении (Mg, Al) или (B, C) критическая температура  $T_c$  падает до нуля [19]. Однако в недавней работе [20] в LiFeAs были обнаружены признаки сосуществования нематичности и сверхпроводимости, обсуждаемые ниже.

Напротив, в стехиометрическом NaFeAs устанавливается орторомбическая фаза и магнитный порядок [3, 10-12], хотя при гораздо более низких температурах  $T_s \approx 55 \,\mathrm{K}$  и  $T_m \approx 43 \,\mathrm{K}$ , соответственно, по сравнению с пниктидами семейств 1111 и 122 (рис. 1). При  $T_c \approx 10 \,\mathrm{K}$  транспортные, магнитные и калориметрические измерения [3, 10, 11, 21, 22] демонстрируют также сверхпроводящий переход. Однако, в отличие от LiFeAs, в NaFeAs по данным большого числа работ [3, 7, 21, 22] наблюдается естественное фазовое расслоение: шунтирующие сверхпроводящие области тетрагональной фазы (занимающие порядка 10 % объема кристалла) соседствуют с АФМ областями. В допированных (Fe, Co) кристаллах NaFeAs структурный и АФМ-переходы сдвигаются в сторону меньших температур, при этом объем сверхпроводящих областей растет [12, 21]. Максимальная  $T_c \approx 22\,\mathrm{K}$  при допировании кобальтом достигается в объемной тетрагональной фазе одновременно с подавлением АФМ и нематичности, как показано на рис. 1. Сходный вид фазовой диаграммы был получен в [12] при замещении NaFe<sub>1-x</sub>Cu<sub>x</sub>As, однако сверхпроводимость разрушалась с допированием быстрее (уже при  $x \approx 0.05$ ), а  $T_c$  достигала лишь максимального значения около 12 К.

Существование нематических флуктуаций в LiFeAs и NaFeAs при  $T > T_s$  было показано в транспортных и ЯМР-экспериментах [7, 23].

3. Зонная структура и поверхности Ферми. Для большинства железосодержащих ВТСП в первой зоне Бриллюэна образуются дырочные цилиндры вокруг Г-точки и электронные цилиндры вокруг М-точки, гофрированные вдоль  $k_z$ -направления импульсного пространства и связанные вектором нестинга  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$  в 2-Fe-представлении (в качестве обзора см. [5, 6, 24, 25]). Зонные расчеты для пниктидов семейства 111 приведены в работах [26–28]. ARPES-эксперименты [4, 9, 13, 14, 20, 26, 29–36] показали, что поверхности Ферми 111-пниктидов схожи с таковыми для других семейств лишь качественно и демонстрируют принципиальные отличия.

В стехиометрическом LiFeAs радиусы поверхностей Ферми сильно различаются (рис. 2а): в Г-точке надежно разрешим цилиндр исчезающе малого фазового объема, при этом радиус внешнего дырочного цилиндра превышает радиус электронных цилиндров. Таким образом, в LiFeAs полностью отсутствует нестинг на векторе  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$  [9, 13–15]. При электронном замещении (Fe, Co), как показано на рис. 2, взятом из работы [9], по данным метода ARPES фазовый объем цилиндров в М-точке растет, а внешнего дырочного цилиндра – уменьшается. Лишь для соединения с концентрацией кобальта  $x \approx 0.12$  поверхности Ферми становятся конгруэнтны (рис. 2с, h), т.е.

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

выполняется полный нестинг. Для LiFe<sub>1-x</sub>V<sub>x</sub>As с дырочным допированием в работе [14] с ростом x наблюдалось значительное увеличение фазового объема только внутреннего Г-цилиндра (рис. 3), который становился конгруэнтным с электронными карманами при  $x \approx 0.084$  (рис. 3d).

Интересно отметить, что в обоих случаях по данным работ [9, 14] по мере улучшения нестинга в Г-М направлении подавляется сверхпроводимость: полный нестинг достигается в сильно передопированной области с  $T_c \rightarrow 0$  для замещения LiFe<sub>0.88</sub>Co<sub>0.12</sub>As (см. фазовую диаграмму на рис. 1) и в несверхпроводящем LiFe<sub>0.916</sub>V<sub>0.084</sub>As (фазовая диаграмма допирования (Li, V) приведена на рис. 1d в [14]). С другой стороны, данные работы [15] ставят под сомнение универсальность этого утверждения: при замещении (Fe, Cu) не было обнаружено заметных изменений поверхностей Ферми – это замещение фактически является изовалентным, что, согласно интерпретации авторов, может быть вызвано локализацией допирующих электронов. Таким образом, для установления связи между качеством нестинга и величиной Т<sub>с</sub> необходимы дополнительные исследования топологии поверхностей Ферми допированных LiFeAs.

Довольно интересные результаты были получены в недавних ARPES-исследованиях высокого разрешения [26, 31]. В LiFeAs наряду с железосодержащими ВТСП других семейств было обнаружено заметное (порядка 10 мэВ) расщепление зон в точках высокой симметрии, вызванное спин-орбитальным взаимодействием [26, 31]. В частности, именно последнее по мнению авторов ответственно за появление карманов поверхности Ферми малого радиуса в Г-точке.

Особенности фазовой диаграммы NaFeAs предоставляют уникальную возможность наблюдать изменение симметрии кристаллической и зонной структуры в зависимости от температуры и допирования с помощью ARPES. Однако, с точки зрения проведения эксперимента, здесь возникает промежуточная задача. Вообще говоря, для монокристаллов железосодержащих сверхпроводников при низких температурах характерно образование зеркальноориентированных доменов (двойников). Поскольку размер доменов обычно сравним с диаметром пятна электронного пучка ARPES, в результате эксперимент показывает суперпозицию энергодисперсионных кривых для доменов обеих ориентаций, что не позволяет разрешить анизотропию в плоскости кристаллической решетки. Существует несколько методов устранения двойниковых границ (в качестве обзора см. [37]), среди которых наиболее часто ис-



Рис. 2. (Цветной онлайн) (a)–(e) – Эволюция поверхности Ферми монокристаллов LiFe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>As с различными концентрациями кобальта при электронном допировании по данным ARPES. (f)–(j) – Совмещенные контуры соответствующих поверхностей Ферми, электронных (показаны красным цветом) и дырочных (синим цветом). Рисунок взят из работы [9] в рамках лицензии CC 3.0

пользуется одноосная деформация вдоль *a*- и *b*-направлений решетки.

Эволюция поверхности Ферми стехиометрического NaFeAs с температурой показана в работах [36, 38] (рис. 4a–h). В металлической фазе с  $C_4$ -симметрией сечение поверхности Ферми в Г-точке плоскостью  $k_z = 0$  представляет собой окружность, а в углу зоны Бриллюэна – два скрещивающихся эллипса (красные контуры на рис. 4а). Картина почти не меняется при приложении одноосной деформации, как показано на панели (b). Условие нестинга выполняется только для отдельных точек поверхностей Ферми, вдоль  $k_x$  и  $k_y$ -направлений. При понижении температуры  $C_4$ -симметрия нарушается: в нематической



Рис. 3. (Цветной онлайн) Эволюция поверхности Ферми монокристаллов  $\text{LiFe}_{1-x}V_x$ Аs с различными концентрациями ванадия при дырочном допировании по данным ARPES. Красными пунктирными линиями показаны контуры поверхностей Ферми для стехиометрического LiFeAs (соответствующие сплошным красным линиям на панели (а)). Сплошные линии на (b)–(d) иллюстрируют контуры внутреннего дырочного кармана для обозначенных концентраций x. Рисунок взят из работы [14] с разрешения издателя и авторов. © (2021) American Physical Society

фазе хорошо видно искажение дырочного цилиндра в направлении оси деформации и исчезновение одного из эллипсов в М-точке (рис. 4с–е). Наконец, в АФМ-фазе большая часть законов дисперсий для зон оказывается защелена на уровне Ферми (рис. 4g, h).

В сверхпроводящих Na(Fe, Tm)As, в отличие от LiFe(Fe, Tm)As, допирование не приводит к полной конгруэнтности дырочных и электронных карманов [32–35] в плоскости  $k_z = 0$ , хотя в работе [32] отмечена возможность реализации почти идеального нестинга для некоторых значений  $k_z$ .

Слабое (около 4%) искажение внешнего дырочного цилиндра в центре зоны Бриллюэна было разрешено в недавних ARPES-исследованиях [20] стехиометрического LiFeAs (без подавления двойникования) при температуре ниже  $T_c$  (рис. 4i, j). Причины, давшие возможность наблюдения анизотропии в *ab*-плоскости без приложения одноосной деформации, обсуждаются авторами. Тем не менее, подобное нарушение  $C_4$ -симметрии ниже  $T_c$  может свидетельствовать об установлении сверхпроводимости в нематической фазе, не наблюдаемом ранее ни в одном высокотемпературном сверхпроводнике за исключением FeSe. Более того, поскольку асимметрия зонной структуры исчезает выше Т<sub>c</sub>, авторы работы [20] предполагают, что в LiFeAs именно сверхпроводимость ответственна за появление нематичности.

4. О теоретических моделях многощелевого сверхпроводящего состояния и попытках их экспериментальной проверки для семейства 111. В одной из ранних теоретических работ [39] было показано, что несмотря на наблюдение неполного изотопического эффекта [40], электрон-фононное взаимодействие в железосодержащих сверхпроводниках достаточно слабо и не может описать их высокие T<sub>c</sub>. Впоследствии для объяснения механизма сверхпроводимости пниктидов и селенидов железа было предложено несколько теоретических моделей. В спин-флуктуационных моделях, описывающих образование куперовских пар посредством нестинга между участками поверхности Ферми, образованных одним типом орбиталей (так называемое "внутриорбитальное" взаимодействие), возможно получение знакопеременного сверхпроводящего параметра порядка s<sup>±</sup>-типа [41–45] (формально отрицательная сверхпроводящая щель  $\Delta < 0$  для одного из конденсатов куперовских пар означает сдвиг волновой функции этого конденсата на  $\pi$  по сравнению со вторым конденсатом) или комбинированного s + is-типа [46] (с произвольным сдвигом фазы между двумя сверхпроводящими конденсатами, отличным от  $\pi$ , и нарушенной симметрией обращения времени). Спиновый резонанс на векторе нестинга  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$  широко наблюдался в сверхпроводящем состоянии в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов в



Рис. 4. (Цветной онлайн) Поверхности Ферми стехиометрического NaFeAs в Г и М-точках по данным ARPES: (a), (b) – при T = 60 K (тетрагональная структура, металлическая фаза); (c)–(e) – при T = 45 K (орторомбическая структура, нематическая фаза); (f)–(h) – при T = 7 K (орторомбическая структура, AФM фаза). Данные для двойниковых монокристаллов приведены на панелях (a), (c), (f); для образцов, подвергнутых одноосной деформации (стрелки красного цвета показывают направление деформации), – на панелях (b), (d), (e), (g), (h). Красными линиями показаны предполагаемые контуры соответствующих поверхностей Ферми. На панелях (d), (e) и (g), (h)  $k_x$ - и  $k_y$ -оси поменялись местами. (i) – Дырочные цилиндры в Г-точке в двойниковом монокристалле LiFeAs в сверхпроводящей фазе при T = 7 K. Фрагменты зонной структуры вдоль срезов по направлениям  $k_x$  и  $k_y$  (штриховые линии на (i)), а также соответствующие энергодисперсионные кривые (сплошные линии) показаны на панели (j). Вертикальные пунктирные линии демонстрируют анизотропию поверхности Ферми в xy-плоскости импульсного пространства. Рисунки (a)–(h) взяты из работы [36] (в рамках лицензии СС 4.0), рисунки (i), (j) – из работы [20] с разрешения издателя и авторов. © (2021) Аmerican Physical Society

железосодержащих сверхпроводниках различных семейств (в качестве обзора см. [44, 47, 48]). Также стоит отметить, что в некоторых туннельных экспериментах методами создания контакта на микротрещине ("break-junction") [49–51] и точечных контактов ("PCAR") [52, 53] в сверхпроводящем состоянии было обнаружено резонансное взаимодействие андреевского тока с характерной бозонной модой, предположительно, спиновым экситоном: энергия бозона при  $T \ll T_c$  не превышала непрямую сверхпроводящую щель  $\Delta_L(0) + \Delta_S(0)$  или  $2\Delta_L(0)$ , что, согласно расче-

там [54, 55], соответствует условию реализации спинового резонанса.

С другой стороны, взаимодействие посредством нематических флуктуаций [56] или орбитальных флуктуаций, усиленных фононами [57–59], сильная внутризонная электрон-фононная связь [60], а также учет резонанса Фано–Фешбаха вблизи перехода Лифшица или рассмотрение перехода БКШ-конденсации электронов в режим бозеэйнштейновской конденсации (БКШ-БЭК переход) [61] приводят к так называемой s<sup>++</sup>-симметрии сверхпроводящего параметра порядка без смены знака (т.е. волновые функции всех сверхпроводящих конденсатов находятся в фазе). Спиновые флуктуации при этом могут рассматриваться как дополнительный механизм, приводящий к сильной анизотропии сверхпроводящего параметра порядка, вплоть до смены знака [56, 58, 60].

Из-за особенностей поверхностей Ферми LiFeAs [9, 13-15], вообще говоря, мощный спиновый резонанс на векторе  $(\pi, \pi)$  вряд ли ожидаем. Действительно, лишь в единственной работе [62] ниже Т<sub>с</sub> утверждается существование слабо выраженного спин-резонансного максимума при энергиях  $\varepsilon_0 \approx$ 6–11 мэВ на векторе **Q**. Авторы статьи [63] также наблюдали резонанс с энергией  $\varepsilon_0 \approx 5$  мэВ, однако, не спекулируют относительно его природы. С другой стороны, в теоретических работах [45, 58, 59] устойчивое щелевое решение для  $s^{\pm}$ -симметрии было получено даже при отсутствии хорошего нестинга в Г-М-направлении, причем предполагалось, что меньшая по модулю сверхпроводящая щель должна открываться на листе поверхности Ферми, имеющим меньший радиус. При учете орбитальной селективности (различной силе корреляционных эффектов в зонах, образованных разными орбиталями; в том числе куперовского спаривания) в рамках  $s^{\pm}$ -подхода в работе [64] была получена щелевая структура, качественно схожая с результатами [45, 58, 59] для "чистого"  $s^{\pm}$ -случая, за исключением того, что конденсат с большой щелью образовывался ниже T<sub>c</sub> на внутреннем дырочном цилиндре.

Существование бозонной моды в LiFeAs в настоящее время дискутируется. В оптических исследованиях [65] внещелевые особенности, характерные только для сверхпроводящего состояния ниже  $T_c$ , не были обнаружены. В экспериментах методами спектроскопии многократных андреевских отражений с некогерентным транспортом (IMARE) в монокристаллах LiFeAs тонкая структура, вызванная резонансным взаимодействием с бозонной модой, также воспроизводимо не наблюдалась [66, 67], хотя была разрешена в 1111-оксипниктидах различного состава [49-51]. В исследованиях с помощью сканирующего туннельного микроскопа (СТМ) [68-70] внещелевая структура типа максимум-минимум на dI(V)/dVспектрах была интерпретирована в рамках подхода [68, 70] как проявление перенормировки плотности электронных состояний, вызванной спиновым резонансом. С другой стороны, в работах [71-73] были предложены аргументы против такой интерпретации; в частности, авторы [72] относят структуру минимум-максимум к взаимодействию с нематическими флуктуациями, а авторы [73] показали, что подобные структуры на dI(V)/dV-спектрах туннельных контактов могут быть вызваны поверхностными дефектами.

В теоретических работах [58, 59] было показано, что умеренная анизотропия (в том числе вдоль k<sub>z</sub>-направления) сверхпроводящих щелей, открывающихся ниже  $T_c$  на электронных и дырочных листах поверхности Ферми, может быть получена даже при учете единственного  $s^{++}$ -взаимодействия между участками поверхности Ферми, образованными разными типами орбиталей (так называемое "межорбитальное взаимодействие"). Более того, посредством комбинации механизмов спиновых и орбитальных флуктуаций возможно получение почти что любых видов анизотропии спаривания, в том числе нодальных (имеющих точки  $\Delta(k) = 0$ ) или знакопеременных. Одним из важнейших результатов этих работ [58, 59] является: (а) открытие наибольшей сверхпроводящей щели на меньшем кармане поверхности Ферми (внутренний цилиндр около Г-точки) в пределе сильного  $s^{++}$ -взаимодействия; (б) при сравнимой силе  $s^{++}$  и  $s^{\pm}$ -взаимодействий "отрицательный" параметр сверхпроводящего порядка открывается только на внешнем дырочном цилиндре, причем для этой зоны  $|\Delta| \to 0$ .

Многощелевое сверхпроводящее состояние NaFeAs может быть описано как в рамках универсального  $s^{\pm}$ -подхода [74], так и с учетом орбитальной селективности [75]. О наблюдении слабого спинового резонанса с энергией  $\varepsilon_0/k_BT_c = 4-6$  в недодопированных и оптимально допированных Na(Fe, Tm)As(Tm = Co, Cu) ниже  $T_c$  сообщалось в работах [12, 76-79]. В передопированном NaFe<sub>0.92</sub>Co<sub>0.08</sub>As по данным [78], несмотря на значительное падение  $T_c$ (по сравнению с оптимальным составом), энергия  $\varepsilon_0$  существенно не менялась. Интересно отметить, что для составов, близких к стехиометрическому NaFeAs, в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов [77, 78] на векторе нестинга был разрешен двойной спиновый резонанс, причем второй (низкоэнергетичный) максимум при  $\varepsilon_0^{\min} \approx 3 \,\mathrm{Mag}$ (соответствующий открытию спиновой щели) исчезал при подавлении АФМ-порядка с увеличением температуры или концентрации допанта.

Недавние теоретические расчеты [80] показали на границе нематической фазы (в NaFeAs и Ba-122) наличие связанного состояния посредством межорбитального нестинга в сверхпроводниках, имеющих дырочный карман, образованный  $d_{xy}$ -орбиталями. Предсказанная фаза может оказывать сильное влияние на сверхпроводящие свойства, а также вызывать



Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость характеристических отношений сверхпроводящих параметров порядка  $2\Delta_i(0)/k_BT_c$  от критической температуры  $T_c$  в Li<sub>1- $\delta$ </sub>FeAs по данным спектроскопии многократных андреевских отражений (IMARE, звезды) [67],<sup>2)</sup>, СТМ (треугольники) [68–72, 84, 85], объемных методов исследования (измерения теплоемкости и первого критического поля, квадраты) [86–90] и поверхностных методов (ИК-спектроскопия отражения, измерения поверхностного импеданса, ромбы) [65, 91]. Соединенные символы обозначают степень анизотропии сверхпроводящего параметра порядка. Заштрихованные области отмечают диапазоны полученных значений. Данные ARPES (кружки) [20, 29, 30], полученные для LiFeAs с  $T_c \approx 18$  K, приведены на правой панели и сдвинуты по горизонтали для наглядности. Цвет символов совпадает с цветом соответствующих электронных и дырочных карманов поверхности Ферми, приведенной схематически. Штрихпунктирной линией показан БКШ-предел слабой связи

появление пиков плотности состояний вблизи уровня Ферми (напоминающих псевдощелевые особенности, широко обсуждаемые в ВТСП-купратах [81]). "Псевдощелевая" нелинейность плотности электронных состояний наблюдалась в ARPES [82] и туннельных экспериментах [83] на сверхпроводниках семейства Ва-122; для NaFeAs подобные сообщения на данный момент отсутствуют в литературе.

5. Исследования структуры сверхпроводящего параметра порядка. Исследования деталей сверхпроводящего параметра порядка (зависимости энергии связи куперовских пар  $2\Delta_i$  как от величины, так и от направления фермиевских импульсов) пниктидов на основе лития немногочисленны и проведены для кристаллов номинально стехиометрического состава; подобные работы по допированным соединениям Li(Fe,Tm)As на данный момент отсутствуют. Авторы большинства работ сообщают о наблюдении многощелевой сверхпроводимости в LiFeAs (сосуществованию нескольких конденсатов с различной энергией связи куперовских пар) и отсутствию точек нулей ("нодов") сверхпроводящих щелей для определенных направлений импульсного пространства. Отметим, что поскольку фазочувствительные эксперименты (например, джозефсоновская спектроскопия) не были проведены на пниктидах семейства 111, приведенные данные не позволяют напрямую определить факт смены знака у параметров порядка (т.е. имеется ли сдвиг фаз между волновыми функциями сверхпроводящих конденсатов).

На рисунке 5 приведена зависимость характеристических отношений  $2|\Delta_i(0)|/k_BT_c \equiv r_i^{\rm BCS}$  от критической температуры по данным литературы. Получение авторами критических температур  $T_c < 18 \,\mathrm{K}$  в монокристаллах номинального состава LiFeAs можно с большой долей вероятности отождествить с локальным дефицитом лития, поэтому далее мы будем использовать обозначение Li<sub>1- $\delta$ </sub>FeAs.

ARPES-эксперименты [20, 29, 30] показали со-

<sup>&</sup>lt;sup>2)</sup>Точки, приведенные при  $T_c \approx 16.5 \,\mathrm{K}$ , – результат усреднения характеристических отношений, полученных авторами методами IMARE-спектроскопии по данным исследования 10 андреевских контактов с соответствующей локальной критической температурой в монокристаллах LiFeAs.

существование как минимум трех сверхпроводящих конденсатов. Несмотря на некоторую противоречивость абсолютных значений  $\Delta_i(0)$  (кружки на рис. 5, правая панель), данные качественно схожи: при  $T < T_c$  большая сверхпроводящая щель открывается на внутреннем дырочном кармане, а малая щель – на внешнем; вместе с тем, параметры порядка имеют значительную анизотропию в импульсном пространстве. Подобная щелевая структура отлично согласуется с расчетами [58, 59] в рамках  $s^{++}$ -подхода (без смены знака), а также может быть воспроизведена в рамках  $s^{\pm}$ -модели с учетом орбитальной селективности [64] (для знакопеременного параметра порядка).

В электронных зонах по данным [20, 30] сверхпроводящие параметры порядка имеют средние, примерно равные амплитуды. Хотя в ранних работах [29, 30] предполагалось, что угловые зависимости анизотропных щелей  $\Delta_i(\theta)$  (где  $\theta$  – угол в  $k_x k_y$ плоскости) имеют "четырехлепестковую" симметрию (т.е. относительно поворота на 90°), недавние исследования высокого разрешения [20] показали, что  $\Delta(\theta)$  лучше описывается "двухлепестковой" функцией и имеет симметрию поворота на 180°. Последнее наблюдение поддерживает вывод авторов [20] о реализации сверхпроводимости в нематической фазе.

Данные туннельных [67-72, 84, 85], объемных [86-90] и поверхностных методов [65, 91], представленные на рис. 5 слева, образуют три группы, соответствующие величинам характеристических отношений (0.9-2.4), (3.1-5.1) и (7.2-10.3). Соответствующие параметры порядка далее обозначены  $\Delta_1, \Delta_2$ и Д<sub>3</sub>. Методом IMARE-спектроскопии [67] были напрямую обнаружены три независимых сверхпроводящих параметра порядка (звезды на рис. 5): малая щель с характеристическим отношением  $r_1^{\mathrm{BCS}} \approx$ 1.7 « 3.53 без признаков анизотропии, сильно анизотропная средняя щель с  $r_2^{\text{BCS}} \approx 3-5$  и слабо анизотропная большая щель с  $r_3^{\rm BCS} \approx 7.3 - 8.4$  (диапазоны величин обозначают степень анизотропии, около 40 и 14%, соответственно). Помимо описанных выше данных, анизотропия параметров порядка была разрешена только в работе [84] методами квазичастичной интерференции (соединенные треугольники на рис. 5): видно согласие с результатами IMAREэкспериментов [67] как степени анизотропии большой и средней щели, так и величины их характеристических отношений.

Заметим, что в СТМ-экспериментах [68–72, 84, 85] наблюдаются только две сверхпроводящие щели, большая и средняя (треугольники на рис. 5). Величины  $2\Delta_3(0)/k_BT_c \approx 7.2-8.5$  для большой щели, оцененные в [68, 69, 85], согласуются с диапазоном

анизотропии  $\Delta_3$  по данным [67, 84]. Также в указанный диапазон попадает характеристическое отношение параметра порядка на внутреннем дырочном кармане, оцененное в [30], а аналогичные значения из работ [20, 29] оказываются чуть ниже. В то же время, в работах по СТМ [70-72] были получены более высокие значения, вплоть до 10.3. Можно предположить, что поскольку величины сверхпроводящих щелей в [70-72] были оценены, исходя напрямую из положений туннельных максимумов на dI(V)/dV-спектрах, одной из причин получения подобных завышенных значений является влияние неупругих процессов, определяемое параметром размытия  $\Gamma = \hbar/2\tau$  (где  $\tau$  – характерное время релаксации по энергии). Конечное значение Г приводит как к уширению особенностей квазичастичной плотности состояний, так и к сдвигу максимумов на границе щели в сторону больших смещений. Согласно недавним ARPES-экспериментам [92], Г может принимать в LiFeAs чрезвычайно высокие значения, сравнимые  $c \Delta(0)$ .

Температурные зависимости сверхпроводящих щелей в Li<sub>1- $\delta$ </sub>FeAs на данный момент получены с помощью туннельных методов только двумя группами. Измеренные напрямую методом IMAREспектроскопии зависимости трех щелей  $\Delta_{1,2,3}(T)$ типичны для случая умеренного межзонного взаимодействия, а степени анизотропии  $\Delta_{2,3}$  сохраняются в широком диапазоне температур [67]. Сходный вид температурных зависимостей большой и средней щели  $\Delta_{2,3}(T)$  был получен в [69] путем аппроксимации туннельных dI(V)/dV-спектров, измеренных при  $T < T_c$ , моделью Дайнса.

С другой стороны, работы, проведенные объемными методами (измерений теплоемкости и первого критического поля) [86-89] и поверхностными методами (инфракрасная (ИК) спектроскопия отражения, измерения поверхностного импеданса) [65, 91], сообщают о наблюдении средней и малой сверхпроводящей щели (квадраты и ромбы на рис. 5). Вероятно, это связано с низкой концентрацией куперовских пар в конденсате с большой щелью, как показано в [67]. Тем не менее, полученный разброс  $r_2^{\text{BCS}} \approx 3.5 - 5.0$ для средней щели (символы голубого цвета на рис. 5) совпадает с диапазоном ее анизотропии, определенной в [67, 84], а также хорошо согласуется с диапазоном для анизотропных параметров порядка в электронных зонах, оцененных в ARPES-исследованиях [29, 30]. Нельзя также исключать возможную анизотропию малой щели (поскольку ARPES показывает анизотропию спаривания во всех зонах, см. соединенные кружки на рис. 5 справа) как одну из причин



Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость характеристических отношений сверхпроводящих щелей  $2\Delta_i(0)/k_BT_c$  по данным СТМ (треугольники) [94, 95], измерений теплоемкости (квадраты) [12, 10] и ARPES (кружки) [32, 33, 93] от критической температуры  $T_c$  в допированных Na(Fe, Co)As. Цвет кружков совпадает с цветом соответствующих электронных и дырочных карманов поверхности Ферми, приведенной схематически. Соединенные символы обозначают степень анизотропии сверхпроводящего параметра порядка. Заштрихованные области отмечают диапазоны полученных значений характеристических отношений сверхпроводящих щелей. Для сравнения приведена зависимость характеристических отношений энергии спинового резонанса  $\varepsilon_0/k_BT_c$  (для высокоэнергетичной моды - сплошные звезды, для низкоэнергетичной – открытые) от  $T_c$ , полученных в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов [76–78]. Штрихпунктирной линией показан БКШ-предел слабой связи

значительного разброса величин ее характеристических отношений 1.0–2.5 (символы черного цвета на рис. 5). С другой стороны, ARPES-оценки дают более высокие значения, с  $r_1^{\text{BCS}} > 2.6$ .

Крайне мало экспериментов по определению щелевой структуры 111-пниктидов на основе натрия проведено на данный момент. Имеющиеся результаты получены исключительно для Na(Fe, Co)As, допированных кобальтом, и приведены на рис. 6. Полученные точки (синего и черного цвета) образуют две группы с диапазонами  $2\Delta_i(0)/k_BT_c \approx (2.6-4.5)$ и (5.3–8.8), обозначенные на рис. 6 заштрихованными областями. Хотя может показаться, что приведенные точки демонстрирует тенденцию к уменьшению характеристических отношений в передопированной области, имеющееся количество данных явно недостаточно для того, чтобы утверждать это наверняка.

Измерения теплоемкости в образцах Na(Fe, Co)As с различной степенью допирования [10, 12] (квадраты на рис. 6) показали наличие большой сверхпроводящей щели с  $2\Delta_L(0)/k_BT_c \approx 6.3-7.5$ , сильно превышающим БКШ-предел слабой связи, а также малой щели с характеристическим отношением 2.6–3.6; при этом данные [12] для недодопированного образца с  $T_c \approx 12.3$  К хорошо описывались однощелевой моделью.

Авторы ARPES-исследований Na(Fe, Co)As [32, 33, 93] сходятся во мнении, что на двух электронных карманах поверхности Ферми образуется единый сверхпроводящий конденсат. Однако численные значения энергетических параметров плохо согласуются друг с другом (кружки на рис. 6). Для передопированных кристаллов в двух работах [33, 93] были обнаружены примерно одинаковые сверхпроводящие щели в электронных и дырочных зонах, при этом соответствующие характеристические отношения (символы зеленого и оранжевого цвета на правой стороне рис. 6) сильно разнятся: меньшее из полученных значений  $r_S^{BCS} \approx 4$  [32] хорошо согласуется с данными для малой щели, оцененной из температурной зависимости теплоемкости [12, 45]; в то же время, бо́льшие значения  $r_L^{\text{BCS}} \approx (5.8-8.8)$  [33, 93] попадают в диапазон для большой щели по данным СТМ [10, 12, 94, 95]. В недодопированном соединении (левая сторона рис. 6) с помощью ARPES была разрешена сильная анизотропия большего параметра порядка на электронных карманах [93], ненаблюдаемая теми же авторами в передопированном составе с близкой  $T_c$ . Появление анизотропии сверхпроводящего параметра порядка в области естественного сосуществования AФМ- и сверхпроводящей фазы может указывать на возможное влияние состояния с ВСП на щелевую структуру и, безусловно, требует дальнейших подробных исследований с высоким разрешением по энергии.

Среди других групп исследователей анизотропия сверхпроводящих щелей на данный момент дискутируется. Результаты измерений теплоемкости  $C_{el}(T)$ [10, 12] и коэффициента теплопроводности [96] хорошо описываются изотропными параметрами порядка без линий нулей. С другой стороны, авторы [12] не исключают реализацию анизотропии сверхпроводящих свойств, принимая во внимание ограничения модели, использованной для обработки данных  $C_{el}(T)$ . В то же время, в работе [97] утверждается, что температурная зависимость концентрации куперовских пар (по данным измерения лондоновской глубины проникновения) может быть описана только в рамках анизотропных щелей как в недо-, так и в передопированной области. Наконец, туннельные спектры, полученные в [95], могут быть аппроксимированы моделью Дайнса как для случая изотропной, так и анизотропной щели при вариации параметра размытия Г. К сожалению, данные туннельных экспериментов по Na-111 практически отсутствуют: в имеющихся работах с помощью СТМ [94, 95] была разрешена только одна сверхпроводящая щель, в то время как эксперименты методами андреевской спектроскопии пока не проводились.

Для сравнения с щелевыми параметрами на рис. 6 также приведены характеристические отношения энергии спинового резонанса  $\varepsilon_0/k_BT_c$ (звезды), определенные в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов в Na(Fe, Co)As [76–78]. Как отмечалось выше, в недодопированной области (левая часть рис. 6) воспроизводимо наблюдается двойной резонанс [76–78]: энергия первой резонансной моды  $\varepsilon_0^{\min}$  (низкоэнергетичной и существующей в АФМ-фазе при  $T < T_m$ ) практически не меняется с  $T_c$ , что соответствует увеличению ее характеристического отношения при приближении к АФМ-фазе (открытые звезды на рис. 6). Значение  $\varepsilon_0^{\max}/k_B T_c \approx 4.2-4.9$  для второго резонанса (наблюдаемого только в сверхпроводящем состоянии) слабо меняется с допированием (сплошные звезды на рис. 6), за исключением единственной выпавшей точки справа. В кристаллах Na(Fe, Cu)As слабо передопированного состава с  $T_c \approx 12$  K было получено более высокое отношение  $\varepsilon_0/k_B T_c \approx 5.5$ . [12]. Нужно отметить, что приведенные на рис. 6 точки для  $\varepsilon_0^{\max}/k_B T_c$  располагаются примерно посередине между диапазонами характеристических отношений для большой и малой щели; точнее,  $\varepsilon_0^{\max}$  принимает значения  $\approx 2.5\Delta_S(0)$ , т.е. менее  $\Delta_L(0) + \Delta_S(0)$ . Таким образом, согласно представленной статистике данных, для Na(Fe, Co)As выполняется резонансное условие, указанное в теоретических расчетах [54, 55].

6. Заключение. Приведенный краткий обзор показывает, что исследования сверхпроводников семейства 111 на основе щелочных металлов, открытых почти 13 лет назад, все еще далеки от завершения. Имеющиеся экспериментальные данные достаточно разрозненны и в большинстве своем непоследовательны. Тем не менее, поскольку пниктиды семейства A-111 демонстрируют нетривиальные свойства, нехарактерные для железосодержащих сверхпроводников других семейств, именно они могут стать краеугольным камнем для ответов на многие фундаментальные вопросы. Наиболее важными экспериментальными задачами представляются:

• Прямое измерение структуры сверхпроводящего параметра порядка (количество, амплитуды, симметрия и характеристические отношения сверхпроводящих щелей, их температурные зависимости и возможное расхождение фазы s + is) в допированных  $AFe_{1-x}Tm_xAs$  (A = Li, Na; Tm = Co, Ni, Cu, V, Rh), а также соединениях с дефицитом щелочных металлов  $A_{1-\delta}FeAs$  при вариации x и  $\delta$ . Сравнение свойств кристаллов с электронным, дырочным и изовалентным замещением, недо- и передопированного состава, а также определение эволюции их свойств вдоль соответствующих фазовых диаграмм допирования.

• Исследование спинового резонанса методами неупругого рассеяния нейтронов (определение энергии  $\varepsilon_0$ , ее характеристического отношения и температурной зависимости) в передопированных NaFe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>As, а также в пниктидах Na-111 с замещениями железа на другие переходные металлы (Cu, Rh и др.) или дефицитом Na во всем диапазоне замещения. Определение природы бозонной моды, ее энергии и температурной зависимости в туннельных экспериментах высокого разрешения. • Подробное исследование возможного сосуществования нематичности и сверхпроводимости в LiFeAs, а также других железосодержащих сверхпроводниках.

Экспериментальная проверка обозначенных выпе проблем должна определить степень влияния особенностей зонной структуры, магнетизма и нематичности на сверхпроводящую подсистему, что, безусловно, необходимо для адаптации и расширения теоретических моделей, описывающих физику пниктидов и селенидов железа. Можно надеяться, что это приблизит исследователей к ответу на главный вопрос: универсален ли механизм неклассической сверхпроводимости пниктидов и селенидов различных семейств?

Авторы благодарят И.В. Морозова за предоставление высококачественных образцов, моральную и техническую поддержку исследований и постоянное внимание, М. М. Коршунова и В. М. Пудалова за полезные обсуждения.

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ (тема "Физика высокотемпературных сверхпроводников и новых квантовых материалов", # 0023-2019-0005). Экспериментальное исследование LiFeAs при участии Т. Е. Кузьмичевой проведено в рамках проекта Российского научного фонда # 19-72-00196.

- J. H. Tapp, Z. Tang, B. Lv , K. Sasmal, B. Lorenz, P. C. W. Chu, and A. M. Guloy, Phys. Rev. B 78, 060505(R) (2008).
- I. Morozov, A. Boltalin, O. Volkova et al. (Collaboration), Cryst. Growth Des. 10, 4428 (2010).
- F. Steckel, M. Roslova, R. Beck et al. (Collaboration), Phys. Rev. B 91, 184516 (2015).
- A. Lankau, K. Koepernik, S. Borisenko, V. Zabolotnyy,
   B. Büchner, J. van den Brink, and H. Eschrig, Phys. Rev. B 82, 184518 (2010).
- Q. Si, R. Yu, and E. Abrahams, Nat. Rev. Mater. 1, 16017 (2016).
- H. Hosono, A. Yamamoto, H. Hiramatsu, and Y. Ma, Mater. Today 21, 278 (2018).
- F. Steckel, F. Caglieris, R. Beck, M. Roslova, D. Bombor, I. Morozov, S. Wurmehl, B. Büchner, and C. Hess, Phys. Rev. B 94, 184514 (2016).
- 8. F. Rullier-Albenque, C. R. Physique 17, 164 (2016).
- Y. M. Dai, H. Miao, L. Y. Xing, X. C. Wang, P. S. Wang, H. Xiao, T. Qian, P. Richard, X. G. Qiu, W. Yu, C. Q. Jin, Z. Wang, P. D. Johnson, C. C. Homes, and H. Ding, Phys. Rev. X 5, 031035 (2015).

- A. F. Wang, X. G. Luo, Y. J. Yan, J. J. Ying, Z. J. Xiang, G. J. Ye, P. Cheng, Z. Y. Li, W. J. Hu, and X. H. Chen, Phys. Rev. B 85, 224521 (2012).
- Z. R. Ye, Y. Zhang, F. Chen, M. Xu, J. Jiang, X. H. Niu, C. H. P. Wen, L. Y. Xing, X. C. Wang, C. Q. Jin, B. P. Xie, and D. L. Feng, Phys. Rev. X 4, 031041 (2014).
- G. Tan, Y. Song, R. Zhang, L. Lin, Z. Xu, L. Tian, S. Chi, M.K. Graves-Brook, S. Li, and P. Dai, Phys. Rev. B 95, 054501 (2017).
- S. V. Borisenko, V. B. Zabolotnyy, D. V. Evtushinsky, T. K. Kim, I. V. Morozov, A. N. Yaresko, A. A. Kordyuk, G. Behr, A. Vasiliev, R. Follath, and B. Büchner, Phys. Rev. Lett. **105**, 067002 (2010).
- L. Y. Xing, X. Shi, P. Richard, X. C. Wang, Q. Q. Liu, B. Q. Lv, J.-Z. Ma, B. B. Fu, L.-Y. Kong, H. Miao, T. Qian, T. K. Kim, M. Hoesch, H. Ding, and C. Q. Jin, Phys. Rev. B 94, 094524 (2016).
- L. Y. Xing, H. Miao, X. C. Wang, J. Ma, Q. Q. Liu, Z. Deng, H. Ding, and C. Q. Jin, J. Phys.: Condens. Matter 26, 435703 (2014).
- M. J. Pitcher, T. Lancaster, J. D. Wright, I. Franke, A. J. Steele, P. J. Baker, F. L. Pratt, W. T. Thomas, D. R. Parker, S. J. Blundell, and S. J. Clarke, J. Am. Chem. Soc. 132, 10467 (2010).
- M. Gooch, B. Lv, J.H. Tapp, Z. Tang, B. Lorenz, A. M. Guloy, and P. C. W. Chu, EPL 85, 27005 (2008).
- M. Wang, M. Wang, H. Miao, S.V. Carr, D.L. Abernathy, M.B. Stone, X.C. Wang, L. Xing, C.Q. Jin, X. Zhang, J. Hu, T. Xiang, H. Ding, and P. Dai, Phys. Rev. B 86, 144511 (2012).
- A. Bianconi, S. Agrestini, D. Di Castro, G. Campi, G. Zangari, and N.L. Saini, Phys. Rev. B 65, 174515 (2002).
- Y. S. Kushnirenko, D. V. Evtushinsky, T. K. Kim, I. Morozov, L. Harnagea, S. Wurmehl, S. Aswartham, B. Büchner, A. V. Chubukov, and S. V. Borisenko, Phys. Rev. B 102, 184502 (2020).
- J. D. Wright, T. Lancaster, I. Franke, A.J. Steele, J.S. Möller, M.J. Pitcher, A.J. Corkett, D.R. Parker, D.G. Free, F.L. Pratt, P.J. Baker, S.J. Clarke, and S.J. Blundell, Phys. Rev. B 85, 054503 (2012).
- D. R. Parker, M. J. P. Smith, T. Lancaster, A. J. Steel, I. Franke, P. J. Baker, F. L. Pratt, M. J. Pitcher, S. J. Blundell, and S. J. Clarke, Phys. Rev. Lett. 104, 057007 (2010).
- M. Toyoda, Y. Kobayashi, and M. Itoh, Phys. Rev. B 97, 094515 (2018).
- 24. A. A. Kordyuk, Low Temp. Phys. 40, 286 (2014).
- I. A. Nekrasov and M. V. Sadovskii, JETP Lett. 99, 598 (2014).
- S. V. Borisenko, D. V. Evtushinsky, Z.-H. Liu, I. Morozov, R. Kappenberger, S. Wurmehl, B. Büchner, A. N. Yaresko, T. K. Kim, M. Hoesch, T. Wolf, and N. D. Zhigadlo, Nature Phys. **12**, 311 (2016).

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

- I. A. Nekrasov, N. S. Pavlov, and M. V. Sadovskii, JETP Lett. **102**, 26 (2015).
- P. V. Arribi and L. de Medici, Phys. Rev. B 104, 125130 (2021).
- K. Umezawa, Y. Li, H. Miao, K. Nakayama, Z.-H. Liu, P. Richard, T. Sato, J. B. He, D.-M. Wang, G. F. Chen, H. Ding, T. Takahashi, and S.-C. Wang, Phys. Rev. Lett. 108, 037002 (2012).
- S. V. Borisenko, V. B. Zabolotnyy, A. A. Kordyuk, D. V. Evtushinsky, T. K. Kim, I. V. Morozov, R. Follath, and B. Büchner, Symmetry 4, 251 (2012).
- R. P. Day, G. Levy, M. Michiardi et al. (Collaboration), Phys. Rev. Lett. **121**, 076401 (2018).
- S. Thirupathaiah, D.V. Evtushinsky, J. Maletz, V.B. Zabolotnyy, A.A. Kordyuk, T.K. Kim,
   S. Wurmehl, M. Roslova, I. Morozov, B. Büchner, and S.V. Borisenko, Phys. Rev. B 86, 214508 (2012).
- 33. Z.-H. Liu, P. Richard, K. Nakayama et al. (Collaboration), Phys. Rev. B 84, 064519 (2011).
- 34. S. T. Cui, S. Y. Zhu, A. F. Wang, S. Kong, S. L. Ju, X. G. Luo, X. H. Chen, G. B. Zhang, and Z. Sun, Phys. Rev. B 86, 155143 (2012).
- 35. S. T. Cui, S. Kong, S. L. Ju, P. Wu, A. F. Wang, X. G. Luo, X. H. Chen, G. B. Zhang, and Z. Sun, Phys. Rev. B 88, 245112 (2013).
- M. D. Watson, S. Aswartham, L. C. Rhodes, B. Parrett, H. Iwasawa, M. Hoesch, I. Morozov, B. Büchner, and T. K. Kim, Phys. Rev. B 97, 035134 (2018).
- I.R. Fisher, L. Degiorgi, and Z.X. Shen, Rep. Progr. Phys. 74, 124506 (2011).
- 38. M. Yi, D.H. Lu, R.G. Moore, K. Kihou, C.-H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, T. Yoshida, A. Fujimori, and Z.-X. Shen, New J. Phys. 14, 073019 (2012).
- L. Boeri, O. V. Dolgov, and A. A. Golubov, Phys. Rev. Lett. **101**, 026403 (2008).
- 40. R.H. Liu, T. Wu, G. Wu, H. Chen, X.F. Wang, Y.L. Xie, J.J. Yin, Y.J. Yan, Q.J. Li, B.C. Shi, W.S. Chu, Z.Y. Wu, and X.H. Chen, Nature **459**, 64 (2009).
- I. I. Mazin, D. J. Singh, M. D. Johannes, and M. H. Du, Phys. Rev. Lett. **101**, 057003 (2008).
- 0kuz-Maiti S. Maiti, M. M. Korshunov, T. A. Maier, P. J. Hirschfeld, and A. V. Chubukov, Phys. Rev. B 84, 224505 (2011).
- 43. M. M. Korshunov, Phys.-Uspekhi 57, 813 (2014).
- M. M. Korshunov, Itinerant spin fluctuations in iron-based superconductors, in Perturbation Theory: Advances in Research and Applications, ed. by Z. Pirogov, Nova Science Publishers Inc., N.Y. (2018), p. 61–138.
- Y. Wang, A. Kreisel, V. B. Zabolotnyy, S. V. Borisenko,
   B. Büchner, T. A. Maier, P. J. Hirschfeld, and
   D. J. Scalapino, Phys. Rev. B 88, 174516 (2013).

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

- 46. F. Ahn, I. Eremin, J. Knolle, V.B. Zabolotnyy, S.V. Borisenko, B. Büchner, and A. V. Chubukov, Phys. Rev. B 89, 144513 (2014).
- M. M. Korshunov, V. A. Shestakov, and Yu. N. Togushova, J. Magn. Magnetic Mater. 440, 133 (2017).
- 48. D.S. Inosov and C.R. Physique 17, 60 (2016).
- S.A. Kuzmichev and T.E. Kuzmicheva, JETP Lett. 105, 671 (2017).
- S. A. Kuzmichev, T. E. Kuzmicheva, and N. D. Zhigadlo, EPL **119**, 17007 (2017).
- T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, and N. D. Zhigadlo, Phys. Rev. B **100**, 144504 (2019).
- M. Tortello, D. Daghero, G. A. Ummarino, V. A. Stepanov, J. Jiang, J. D. Weiss, E. E. Hellstrom, and R. S. Gonnelli, Phys. Rev. Lett. **105**, 237002 (2010).
- Z.-S. Wang, Z.-Y. Wang, H.-Q. Luo, X.-Y. Lu, J. Zhu, C.-H. Li, L. Shan, H. Yang, H.-H. Wen, and C. Ren, Phys. Rev. B 86, 060508(R) (2012).
- M. M. Korshunov, V. A. Shestakov, and Yu. N. Togushova, Phys. Rev. B 94, 094517 (2016).
- 55. M. M. Korshunov, Phys. Rev. B 98, 104510 (2018).
- T. Agatsuma and H. Yamase, Phys. Rev. B 94, 214505 (2016).
- H. Kontani and S. Onari, Phys. Rev. Lett. **104**, 157001 (2010).
- T. Saito, S. Onari, Y. Yamakawa, H. Kontani, S.V. Borisenko, V.B. Zabolotnyy, Phys. Rev. B 90, 035104 (2014).
- T. Saito, Y. Yamakawa, S. Onari, and H. Kontani, Phys. Rev. B 92, 134522 (2015).
- A. E. Karakozov, M. V. Magnitskaya, L. S. Kadyrov, and B. P. Gorshunov, Phys. Rev. B 99, 054504 (2019).
- 61. A. Bianconi, Nature Phys. 9, 536 (2013).
- A. E. Taylor, M. J. Pitcher, R. A. Ewings, T. G. Perring, S. J. Clarke, and A. T. Boothroyd, Phys. Rev. B 83, 220514(R) (2011).
- J. Knolle, V. B. Zabolotnyy, I. Eremin, S. V. Borisenko, N. Qureshi, M. Braden, D. V. Evtushinsky, T. K. Kim, A. A. Kordyuk, S. Sykora, Ch. Hess, I. V. Morozov, S. Wurmehl, R. Moessner, and B. Büchner, Phys. Rev. B 86, 174519 (2012).
- A. Kreisel, B. M. Andersen, P. O. Sprau, A. Kostin, J. C. Séamus Davis, and P. J. Hirschfeld, Phys. Rev. B 95, 174504 (2017).
- B. H. Min, J. B. Hong, J. H. Yun, T. Iizuka, S.-I. Kimura,
   Y. Bang, and Y. S. Kwon, New J. Phys. 15, 073029 (2013).
- S. A. Kuzmichev, T. E. Kuzmicheva, A. I. Boltalin, and I. V. Morozov, JETP Lett. 98, 722 (2014).
- T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, I. V. Morozov, S. Wurmehl, and B. Büchner, JETP Lett. **111**, 350 (2020).

- S. Chi, R. Aluru, S. Groth, A. Kreisel, U.R. Singh, B.M. Andersen, W.N. Hardy, R. Liang, D.A. Bonn, S.A. Burke, and P. Wahl, Nat. Commun. 8, 15996 (2017).
- S. Chi, S. Grothe, R. Liang, P. Dosanjh, W. N. Hardy, S. A. Burke, D. A. Bonn, and Y. Pennec, Phys. Rev. Lett. **109**, 087002 (2012).
- 70. M.P. Allan, K. Lee, A.W. Rost, M.H. Fischer, F. Massee, K. Kihou, C.-H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, T.-M. Chuang, J.C. Davis, and E.-A. Kim, Nature Phys. **11**, 177 (2015).
- P.K. Nag, R. Schlegel, D. Baumann, H.-J. Grafe, R. Beck, S. Wurmehl, B. Büchner, and C. Hess, Sci. Rep. 6, 27926 (2016).
- Z. Sun, P.K. Nag, S. Sykora, J.M. Guevara, S. Hoffmann, C. Salazar, T. Hänke, R. Kappenberger, S. Wurmehl, B. Büchner, and C. Hess, Phys. Rev. B 100, 024506 (2019).
- 73. Ya. G. Ponomarev, H. H. Van, S. A. Kuzmichev, S. V. Kulbachinskii, M. G. Mikheev, M. V. Sudakova, and S. N. Tchesnokov, JETP Lett. 96, 743 (2012).
- 74. P. J. Hirschfeld and C. R. Physique 17, 197 (2016).
- R. Yu, J.-X. Zhu, and Q. Si, Phys. Rev. B 89, 024509 (2014).
- C. Zhang, H.-F. Li, Y. Song et al. (Collaboration), Phys. Rev. B 88, 064504 (2013).
- 77. C. Zhang, R. Yu, Y. Su, Y. Song, M. Wang, G. Tan, T. Egami, J. A. Fernandez-Baca, E. Faulhaber, Q. Si, and P. Dai, Phys. Rev. Lett. **111**, 207002 (2013).
- 78. C. Zhang, W. Lv, G. Tan, Y. Song, S. V. Carr, S. Chi, M. Matsuda, A. D. Christianson, J. A. Fernandez-Baca, L. W. Harriger, and P. Dai, Phys. Rev. B 93, 174522 (2016).
- D. W. Tam, Z. Yin, Y. Xie, W. Wang, M.B. Stone,
   D. T. Adroja, H.C. Walker, M. Yi, and P. Dai, Phys. Rev. B **102**, 054430 (2020).
- S. Onari and H. Kontani, Phys. Rev. Research 2, 042005(R) (2020).
- T. Timusk and B. W. Statt, Rep. Prog. Phys. 62, 61 (1999).
- T. Shimojima, T. Sonobe, W. Malaeb et al. (Collaboration), Phys. Rev. B 89, 045501 (2014).
- T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, and V. A. Vlasenko, JETP Lett. **112**, 786 (2020).

- M. P. Allan, A.W. Rost, A.P. Mackenzie, Y. Xie, J. C. Davis, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, and T.-M. Chuang, Science **336**, 563 (2012).
- T. Hanaguri, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, Y. Mazaki, Y. Uwatoko, and H. Takagi, Phys. Rev. B 85, 214505 (2012).
- Y. J. Song, J. S. Ghim, J. H. Yoon, K. J. Lee, M. H. Jung, H.-S. Ji, J. H. Shim, Y. Bang, and Y. S. Kwon, EPL 94, 57008 (2011).
- 87. H. Kim, M.A. Tanatar, Y.J. Song, Y.S. Kwon, and R. Prozorov, Phys. Rev. B 83, 100502(R) (2011).
- D. J. Jang, J. B. Hong, Y. S. Kwon, T. Park, K. Gofryk, F. Ronning, J. D. Thompson, and Y. Bang, Phys. Rev. B 85, 180505(R) (2012).
- K. Sasmal, B. Lv, Z. Tang, F.Y. Wei, Y.Y. Xue, A.M. Guloy, and C.W. Chu, Phys. Rev. B 81, 144512 (2010).
- U. Stockert, M. Abdel-Hafiez, D.V. Evtushinsky, V.B. Zabolotnyy, A.U.B. Wolter, S. Wurmehl, I. Morozov, R. Klingeler, S.V. Borisenko, and B. Büchner, Phys. Rev. B 83, 224512 (2011).
- Y. Imai, H. Takahashi, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, N. Nakai, Y. Nagai, Y. Uwatoko, M. Machida, and A. Maeda, J. Phys. Soc. Jpn. 80, 013704 (2011).
- J. Fink, J. Nayak, E. D. L. Rienks, J. Bannies, S. Wurmehl, S. Aswartham, I. Morozov, R. Kappenberger, M. A. ElGhazali, L. Craco, H. Rosner, C. Felser, and B. Büchner, Phys. Rev. B 99, 245156 (2019).
- 93. Q. Q. Ge, Z. R. Ye, M. Xu, Y. Zhang, J. Jiang, B. P. Xie, Y. Song, C. L. Zhang, P. Dai, and D. L. Feng, Phys. Rev. X 3, 011020 (2013).
- 94. P. Cai, X. Zhou, W. Ruan, A. Wang, X. Chen, D.-H. Lee, and Y. Wang, Nat. Commun. 4, 1596 (2013).
- 95. H. Yang, Z. Wang, D. Fang, S. Li, T. Kariyado, G. Chen, M. Ogata, T. Das, A. V. Balatsky, and H.-H. Wen, Phys. Rev. B 86, 214512 (2012).
- 96. S. Y. Zhou, X. C. Hong, X. Qiu, B. Y. Pan, Z. Zhang, X. L. Li, W. N. Dong, A. F. Wang, X. G. Luo, X. H. Chen, and S. Y. Li, EPL **101**, 17007 (2013).
- 97. K. Cho, M. A. Tanatar, N. Spyrison, H. Kim, Y. Song, P. Dai, C. L. Zhang, and R. Prozorov, Phys. Rev. B 86, 020508(R) (2012).

# Ускорение конверсии ядерных спиновых изомеров молекул воды при их колебательном возбуждении

А. А. Мамрашев<sup>1)</sup>, П. Л. Чаповский<sup>1)</sup>

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 8 сентября 2021 г. После переработки 3 октября 2021 г. Принята к публикации 4 октября 2021 г.

Молекулы воды существуют в природе в виде ядерных спиновых изомеров, различающихся между собой величиной полного спина ядер водорода: I = 1 для орто-H<sub>2</sub>O и I = 0 для пара-H<sub>2</sub>O. В работе теоретически исследовано влияние колебательного возбуждения молекулы на скорость конверсии ядерных спиновых изомеров. Обнаружено, что конверсия изомеров аномально ускоряется (примерно в 50 раз), если возбуждено нормальное колебание  $\nu_2$ . В состоянии  $2\nu_2$  спиновая конверсия ускоряется в 260 раз по сравнению с основным состоянием молекулы. Эффект возникает из-за вращательного искажения молекулы воды и возникновения близких по энергии уровней орто- и параизомеров H<sub>2</sub>O в колебательных состояниях  $\nu_2$  и  $2\nu_2$ . Предсказанное ускорение конверсии в колебательно-возбужденных состояниях молекуль воды можно применить для обогащения их спиновых изомеров лазерным излучением.

DOI: 10.31857/S1234567821220122

Введение. Свободные молекулы воды существуют в виде ядерных спиновых изомеров: орто-H<sub>2</sub>O (полный спин двух протонов I = 1) и пара-H<sub>2</sub>O (I = 0) [1-3]. Каждый из этих изомеров имеет свои специфические вращательные состояния, определяемые законами квантовой статистики систем с идентичными частицами. Молекулы воды исключительно важны для многих областей науки и практики и являются, по-видимому, самыми изученными молекулами в настоящее время. Тем не менее свойства ядерных спиновых изомеров молекул воды, в первую очередь их стабильность, остаются практически не исследованными из-за сложности обогащения изомеров. К настоящему времени обогащение спиновых изомеров молекул воды осуществлено в молекулярных пучках [4-6], в матрицах при низкой температуре [7, 8] и в фуллерене [9, 10]. Разработаны методы измерения орто/пара отношения изомеров воды в газовой фазе [11, 12].

Задача обогащения спиновых изомеров воды в газовой фазе пока не решена экспериментально. Одним из возможных методов может быть лазерное обогащение при возбуждении колебательновращательных переходов молекулы H<sub>2</sub>O по схемам, предложенным в работах [13–15]. Наибольшую эффективность эти методы обогащения достигают, если скорость конверсии изомеров молекул воды в возбуждаемом колебательном состоянии существенно превосходит скорость конверсии в основном колебательном состоянии  $\mathrm{H}_2\mathrm{O}.$ 

Обширные спектроскопические сведения о молекулах воды дают уникальную возможность исследовать конверсию изомеров H<sub>2</sub>O в колебательновозбужденных состояниях. Целью настоящей работы является поиск колебательно-возбужденных состояний H<sub>2</sub>O, в которых скорость конверсии спиновых изомеров существенно превышает скорость конверсии в основном колебательном состоянии.

Квантовая релаксация ядерных спиноизомеров. Ядерные спиновые изомеры вых многоатомных молекул обладают очень высокой стабильностью, если устранено их взаимодействие с парамагнитными частицами [16]. Без парамагнитных частиц медленная конверсия изомеров все-таки происходит под действием особого процесса, квантовой релаксации, предложенного в теоретической работе [17]. Процесс основан на квантовом смешивании орто- и парасостояний внутримолекулярным взаимодействием и прерывании этого смешивания столкновениями. Последовательно описать квантовую релаксацию можно на основе формализма матрицы плотности [18]. Рассмотрим сначала релаксацию изомеров без внешнего излучения. Гамильтониан молекулы, находящейся в термостате, можно представить в виде двух слагаемых,

$$H = H_0 + \hbar V. \tag{1}$$

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: mamrashev@iae.nsk.su; chapovsky@iae.nsk.su

Здесь  $\hat{H}_0$  – основная часть гамильтониана, имеющая своими собственными состояниями орто- и парасостояния молекулы.  $\hbar \hat{V}$  – слабое внутримолекулярное взаимодействие, смешивающее орто- и парасостояния молекулы. Если в системе в начальный момент создано обогащение, например, ортомолекул, то неравновесная добавка ортомолекул  $\delta \rho_o(0)$ , будет релаксировать по экспоненциальному закону  $\delta \rho_o(t) = \delta \rho_o(0) \exp(-\gamma t)$ , где скорость спиновой конверсии определяется уравнением [18]

$$\gamma = \sum_{\alpha' \in p, \, \alpha \in o} \frac{2\Gamma |V_{\alpha'\alpha}|^2}{\Gamma^2 + \omega_{\alpha'\alpha}^2} \left[ W_B(\alpha') + W_B(\alpha) \right].$$
(2)

Здесь индексы  $\alpha'$  и  $\alpha$  пробегают, соответственно, по всем пара- и ортосостояниям молекулы,  $\Gamma$  есть скорость релаксации недиагональных элементов матрицы плотности, созданных взаимодействием  $\hbar \hat{V}$ ,  $\omega_{\alpha'\alpha}$ есть частотный интервал между состояниями  $\alpha'$  и  $\alpha$ ,  $W_B(\alpha')$  и  $W_B(\alpha)$  есть больцмановские факторы, определяющие населенность соответствующих состояний. Величины  $\gamma$ ,  $\Gamma$ ,  $V_{\alpha'\alpha}$  и  $\omega_{\alpha'\alpha}$  выражены в уравнении (2) в частотных единицах. Качественно квантовую релаксацию спиновых изомеров можно представить как туннелирование изомеров через пары близких по энергии орто-пара состояний, смешанных внутренним взаимодействием  $\hbar \hat{V}$ .

Лазерное обогащение изомеров поясним на примере колебательного возбуждения ортоизомеров молекул воды (рис. 1). Такое возбуждение способно повлиять на процесс орто-пара конверсии изомеров Н<sub>2</sub>О благодаря нескольким эффектам: селективному изменению населенности смешиваемых состояний в возбужденном колебательном состоянии [13], изменению населенности всего колебательного состояния ортомолекул [14] и модификации самого процесса смешивания состояний орто- и параизомеров [15]. Последующая релаксация изомеров воды из возбужденного парасостояния в основное колебательное состояние с сохранением спинового состояния (пунктирная линия на рис. 1) приводит к накоплению молекул в парасостоянии, если обратная конверсия изомеров в основном колебательном состоянии молекулы не является быстрой. Эффективность лазерного обогащения изомеров воды можно предсказать, сравнив скорости конверсии в возбужденном и основном колебательных состояниях молекул воды в отсутствии лазерного излучения.

Спиновые и вращательные состояния  $H_2O$ . Спиновые изомеры молекул существуют благодаря законам квантовой статистики. Поэтому построение состояний изомеров молекул воды должно



Рис. 1. Орто- и парасостояния в основном колебательном состоянии и в колебательном состоянии (010) из [19]. Для каждого колебательного состояния представлены вращательные состояния с энергией вращения < 1000 см<sup>-1</sup>. Сплошная вертикальная линия показывает оптическое возбуждение H<sub>2</sub>O. Пунктирная вертикальная линия показывает колебательную релаксацию молекул. Смешивание орто- и парасостояний H<sub>2</sub>O указано горизонтальными стрелками

выполняться с использованием перестановочноинверсионной группы G<sub>4</sub>. Группа содержит четыре операции симметрии: тождественное преобразование E, перестановку двух протонов (12), инверсию пространственных координат всех частиц в молекуле  $E^*$  и произведение перестановки с инверсией (12) $E^*$ . Четыре неприводимых представления группы G<sub>4</sub> удобно обозначить буквами A, либо B, если характеры операции (12) равны +1, либо –1 соответственно. Индексами g, либо u будем отмечать представления с характером операции  $E^*$ , равным +1, либо –1 соответственно.

Достаточно просто построить ядерные спиновые состояния изомеров воды. Система из двух эквивалентных протонов в H<sub>2</sub>O имеет четыре спиновых состояния  $|\uparrow\uparrow\rangle$ ,  $|\uparrow\downarrow\rangle$ ,  $|\downarrow\downarrow\rangle$ . Здесь  $\uparrow$  ( $\downarrow$ ) обозначает состояние спина протона с +1/2 (-1/2) проекцией спина на лабораторную ось квантования. Четыре спиновых состояния двух протонов порождают приводимое представление группы G<sub>4</sub>, которое можно разложить на три полносимметричных состояния A<sub>q</sub>

$$|\uparrow\uparrow\rangle, \sqrt{1/2} [|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle], |\downarrow\downarrow\rangle,$$
(3)

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

и одно состояние с симметрией  $B_q$ 

$$\sqrt{1/2} \left[ |\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle \right]. \tag{4}$$

Состояния (3) имеют полный спин двух протонов I = 1 и принадлежат ортоизомерам. Состояние (4) имеет I = 0 и принадлежит параизомерам.

Построение вращательных состояний спиновых изомеров  $H_2O$  оказывается более сложным. Выберем молекулярную систему координат с осью квантования z, направленной по оси симметрии молекулы, как в [2] (рис. 2). Молекула воды является асиммет-



Рис. 2. Молекула воды и молекулярная система координат, использованная в настоящей работе. Буквами в скобках указаны направления главных осей инерции в порядке возрастания соответствующих моментов инерции  $I_a < I_b < I_c$ . Пунктирными стрелками показано движение ядер молекулы в колебательном состоянии  $(0\,1\,0)$ 

ричным волчком. Ее вращательные состояния в колебательном состоянии *v* можно рассчитать с помощью эффективного гамильтониана Ватсона [20, 21],

$$\hat{H}_0 = E_v + 0.5(b_1 + b_2)\hat{\mathbf{J}}^2 + (b_0 - 0.5(b_1 + b_2))\hat{J}_z^2 + 0.5(b_1 - b_2)(\hat{J}_x^2 - \hat{J}_y^2) + \hat{H}_1.$$
(5)

Здесь,  $E_v$  – колебательная энергия,  $b = (b_0, b_1 \dots b_{41})$ – вектор молекулярных параметров, которые мы определяем в настоящей работе, аппроксимируя экспериментальные энергии вращательных уровней молекул воды из [19].  $\hat{\mathbf{J}}$  – оператор полного углового момента молекулы, а  $\hat{J}_z$ ,  $\hat{J}_x, \hat{J}_y$  – проекции  $\hat{\mathbf{J}}$  на оси молекулярной системы координат. Первые три слагаемых во вращательной части уравнения (5) описывают жесткий асимметричный волчок, слагаемое  $\hat{H}_1$ содержит члены до 12-й степени и описывает вращательное искажение молекулы воды.

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

Диагонализацию  $\hat{H}_0$  выполним с использованием модифицированного базиса Ванга [2, 22],

$$|r, p\rangle = f_k \left[ |r\rangle + (-1)^{J+k+p} |\overline{r}\rangle \right]; f_k = (2+2\delta_{k,0})^{-0.5}; \ p = 0, 1.$$
(6)

Здесь  $|r\rangle \equiv |J, k, M\rangle$ ,  $|\overline{r}\rangle \equiv |J, -k, M\rangle$  – состояния симметричного волчка [2], J – угловой момент молекулы (в единицах  $\hbar$ ), k = 0...J, M = -J...J – величина проекции **J** на ось квантования z молекулярной системы координат и на лабораторную ось квантования соответственно. Состояния  $|J, k = 0, M, p\rangle$  с нечетными значениями (J + p) не существуют.

Для классификации состояний  $|r,p\rangle$  в группе G<sub>4</sub> используют концепцию эквивалентных поворотов молекулы, создаваемых операциями симметрии группы G<sub>4</sub> [23]: (12)  $\rightarrow R_z, E^* \rightarrow R_y, (12)E^* \rightarrow R_x.$ Здесь  $R_z, R_y, R_x$  есть повороты молекулы на угол  $\pi$ вокруг соответствующих осей. Действия  $R_z, R_y, R_x$ на состояния симметричного волчка  $|r\rangle$ , приведенные в [2], позволяют определить преобразование базисных состояний  $|r,p\rangle$ 

$$R_{z}|r,p\rangle = (-1)^{k}|r,p\rangle, \ R_{y}|r,p\rangle = (-1)^{p}|r,p\rangle,$$
  

$$R_{x}|r,p\rangle = (-1)^{k+p}|r,p\rangle.$$
(7)

Из этих соотношений видно, что базисные состояния  $|r, p\rangle$  преобразуются по четырем неприводимым представлениям группы G<sub>4</sub> в зависимости от четности квантовых чисел k и p. Гамильтониан молекулы  $\hat{H}_0$  является полносимметричным в группе G<sub>4</sub> (симметрия A<sub>g</sub>). Следовательно, матричные элементы  $\hat{H}_0$  между состояниями  $|r, p\rangle$  разной симметрии равны нулю. Таким образом, диагонализация  $\hat{H}_0$  сводится к диагонализации четырех матриц, составленных с помощью базисных состояний  $|r, p\rangle$  одной симметричного волчка можно представить в виде разложения по базисным состояниям (6)

$$|J, \mathcal{K}, M, p\rangle = \sum_{k} A_{k} |r, p\rangle.$$
 (8)

Здесь для коэффициентов разложения  $A_k$  явно указан только индекс суммирования k, хотя коэффициенты  $A_k$  зависят и от других квантовых чисел.

Полное описание состояния асимметричного волчка требует указания всех коэффициентов разложения  $A_k$  из (8), что является непрактичным. Удобно использовать следующую сокращенную систематику вращательных состояний молекулы H<sub>2</sub>O. Расположим все вращательные состояния с одинаковым набором квантовых чисел J, M, p в порядке возрастания их энергий и пронумеруем эти состояния числами из последовательности  $\mathcal{K} = 1, 3, \ldots J$ , либо из последовательности  $\mathcal{K} = 0, 2, 4 \ldots J$ , в зависимости от того, k какой четности присутствуют в разложении (8). Тогда каждое вращательное состояние H<sub>2</sub>O будет полностью определено указанием набора квантовых чисел  $J, \mathcal{K}, M, p$ . Для четырех типов симметрий группы G<sub>4</sub> получаем, что состояния имеют симметрию A<sub>g</sub> (A<sub>u</sub>), если  $\mathcal{K}$  четно, p = 0 (1) и состояния имеют симметрию B<sub>g</sub> (B<sub>u</sub>), если  $\mathcal{K}$ нечетно, p = 0 (1).

Полезно указать связь квантовых чисел  $\mathcal{K}, p$ , использованных в настоящей работе, со стандартным обозначением вращательных состояний молекул воды с помощью параметров  $K_a, K_c$ , см., например, [19]. Эта связь дается соотношениями

$$p = 0.5(1 - (-1)^{K_c}); \quad \mathcal{K} = K_a + (-1)^{J + K_a + K_c} p.$$
 (9)

Таким образом, p и  $K_c$  имеют одинаковую четность. Связь  $\mathcal{K}$  и  $K_a$  более сложная.

Квантовая статистика требует, чтобы полные состояния  $H_2O$  обладали симметрией  $B_g$  либо  $B_u$ , поскольку полные состояния должны иметь характеры -1 для перестановки протонов (12). Из свойств симметрии спиновых состояний (3) и (4) следует, что для ортомолекул  $H_2O$  разрешены только вращательные состояния с нечетными  $\mathcal{K}$ , а для парамолекул разрешены вращательные состояния с четными  $\mathcal{K}$ .

Конверсия спиновых изомеров H<sub>2</sub>O. В молекулах воды смешивание орто- и парасостояний осуществляется спин-вращательным сверхтонким взаимодействием, имеющим общий вид [24]

$$\hat{V}_{SR} = \frac{1}{2} \left( \sum_{n} \hat{\mathbf{I}}^{(n)} \bullet \mathbf{C}^{(n)} \bullet \hat{\mathbf{J}} + \text{h.c.} \right); \quad n = 1, 2. \quad (10)$$

Здесь  $\hat{\mathbf{I}}^{(n)}$  и  $\mathbf{C}^{(n)}$  – оператор спина и тензор спин-вращательного взаимодействия *n*-го протона, соответственно,  $\hat{\mathbf{J}}$  – оператор углового момента молекулы. Расчет декартовых компонентов спинвращательного тензора молекул воды выполнен в работе [25]. Сферические компоненты тензора спинвращательного взаимодействия, осуществляющие смешивание орто- и парасостояний H<sub>2</sub>O, имеют следующие значения (согласно определению [2] связи декартовых и сферических компонент тензора второго ранга):

$$C_{2,\pm 1} = \mp 35.2 \ \kappa \Gamma ц; \quad C_{1,\pm 1} = -14.1 \ \kappa \Gamma ц.$$
 (11)

Расчет конверсии спиновых изомеров в молекуле  $H_2O$  под действием спин-вращательного взаимодействия формально совпадает с аналогичным расчетом для молекулы формальдегида, H<sub>2</sub>CO [22]. Поэтому, можно воспользоваться полученными в [22] соотношениями, используя компоненты спинвращательного тензора из (11). Правила отбора для смешивания орто- и парасостояний H<sub>2</sub>O спинвращательным взаимодействием имеют вид

$$\Delta J = \pm 1, \quad \Delta k = \pm 1, \quad \Delta p = 0. \tag{12}$$

В расчетах скорости конверсии изомеров молекул воды скорость релаксации  $\Gamma$  недиагонального элемента матрицы плотности в (2) принята одинаковой для всех пар орто-парасостояний. Принятая величина  $\Gamma = 5 \cdot 10^8 \,\mathrm{c}^{-1}$  соответствует давлению паров воды  $\simeq 5 \,\mathrm{Topp}$ . В расчетах скорости конверсии в колебательно-возбужденных состояниях использовался тензор спин-вращения из (11).

**Таблица 1.** Скорости конверсии изомеров молекул воды в основном и в колебательно-возбужденных состояниях  $(0\,1\,0)$  и  $(0\,2\,0)$ 

Колебательное	$J', \mathcal{K}', p'\!-\!J, \mathcal{K}, p$	$\gamma$
состояние		$(10^{-5} \mathrm{c}^{-1})$
(000)	$3,\ 0,\ 1–2,\ 1,\ 1$	0.35
	Полная скорость*	1.5
(010)	3, 2, 1 - 4, 1, 1	53
	Полная скорость*	70
(020)	$5,\ 0,\ 1\!\!-\!\!4,\ 1,\ 1$	288
	Полная скорость*	387

\*Полная скорость конверсии в данном колебательном состоянии.

Молекула Н<sub>2</sub>О имеет два полносимметричных нормальных колебания  $\nu_1 = (100)$  и  $\nu_2 = (010)$  с симметрией  $A_a$  (как и основное колебательное состояние (000)) и одно колебательное состояние  $\nu_3 =$  $= (0\,0\,1)$  с симметрией  $B_q$ . Расчет скорости конверсии спиновых изомеров H<sub>2</sub>O в колебательных состояниях (100) и (001) показал, что скорости конверсии в этих состояниях не отличаются существенно от скорости конверсии в основном колебательном состоянии H<sub>2</sub>O. Мы обнаружили, что спиновые изомеры молекул воды в колебательно-возбужденном состоянии (010) и особенно в состоянии (020) имеют скорости конверсии существенно большие, чем скорость конверсии в основном колебательном состоянии. Эти данные приведены в табл. 1. Там же указаны наиболее важные для конверсии спиновых изомеров воды орто- и парасостояния. Мы видим из этих данных, что скорость конверсии изомеров в состоянии (020) превосходит скорость конверсии в основном состоянии в 260 раз.

Возрастание скорости конверсии изомеров H<sub>2</sub>O объясняется возникновением близких по энергии пар

орто- и парасостояний при возбуждении нормальных колебаний  $\nu_2$  и  $2\nu_2$  молекулы H<sub>2</sub>O. Так для пары вращательных уровней 3, 2, 1–4, 1, 1 расщепление составляет 15.1 см<sup>-1</sup> и 0.56 см<sup>-1</sup> в колебательных состояниях (000) и (010) соответственно. Для пары уровней 5, 0, 1–4, 1, 1 расщепление составляет 26.3 см<sup>-1</sup> и 0.4 см<sup>-1</sup> в колебательных состояниях (000) и (020) соответственно.

Обсуждение и выводы. В работе выполнены расчеты скорости конверсии ядерных спиновых изомеров молекул воды в основном и в колебательновозбужденных состояниях в газовой фазе. Возбуждение нормальных колебаний (100) и (001) не приводит к существенному изменению скорости конверсии изомеров. Обнаружено, что возбуждение нормального колебания  $\nu_2$  существенно ускоряет конверсию изомеров  $H_2O$ : в 50 раз в состоянии (010) и в 260 раз в состоянии (020) по сравнению с конверсией в основном колебательном состоянии. Ускорение конверсии изомеров обусловлено изменением орто-пара расщеплений уровней в H<sub>2</sub>O при возбуждении нормального колебания  $\nu_2$ . Обнаруженный эффект может быть положен в основу обогащения спиновых изомеров молекул воды лазерным излучением по схемам, предложенным в работах [13–15].

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект # 17-12-01418).

- G. Herzberg, Molecular Spectra and Molecular Structure, Krieger, Malabar, FL (1989), v. 1, 2.
- Л. Д. Ландау and Е. М. Лифшиц, Квантовая механика. Нерелятивистская теория, Наука, М. (1989).
- 3. J. T. Hougen and T. Oka, Science **310**, 1913 (2005).
- T. Kravchuk, M. Reznikov, P. Tichonov, N. Avidor, Y. Meir, A. Bekkerman, and G. Alexandrowicz, Science 331, 319 (2011).
- D. A. Horke, Y.-P. Chang, K. Dlugolecki, and J. Kupper, Angew. Chem. Int. Ed. 53, 1 (2014).
- J. Vermette, I. Braud, P.-A. Turgeon, G. Alexandrowicz, and P. Ayotte, J. Phys. Chem. A 123, 9234 (2019).

- P.-A. Turgeon, J. Vermette, G. Alexandrowicz, Y. Peperstraete, L. Philippe, M. Bertin, J.-H. Fillion, X. Michaut, and P. Ayotte, J. Phys. Chem. A **121**, 1571 (2017).
- A. I. Strom and D. T. Anderson, Chem. Phys. Lett. 752, 137539 (2020).
- B. Meier, K. Kouřil, C. Bengs, H. Kouřilová, T. C. Barker, S. J. Elliott, S. Alom, R. J. Whitby, and M. H. Levitt, Phys. Rev. Lett. **120**, 266001 (2018).
- S.S. Zhukov, V. Balos, G. Hoffman et al. (Collaboration), Sci. Rep. 10, 18329 (2020).
- A. A. Mamrashev, L. V. Maximov, N. A. Nikolaev, and P. L. Chapovsky, IEEE Trans. THz Sci. Technol. 8, 13 (2018).
- A. E. Budarnykh, I. A. Lobach, S. I. Kablukov, and P. L. Chapovsky, Laser Phys. Lett. 17, 065702 (2020).
- L. V. Il'ichov, L. J. F. Hermans, A. M. Shalagin, and P. L. Chapovsky, Chem. Phys. Lett. **297**, 439 (1998).
- A. M. Shalagin and L. V. Il'ichov, Pis'ma v ZhETF 70, 508 (1999).
- 15. P. L. Chapovsky, Phys. Rev. A 63, 063402 (2001).
- P. L. Chapovsky and L. J. F. Hermans, Annu. Rev. Phys. Chem. 50, 315 (1999).
- R.F. Curl, Jr., J.V.V. Kasper, and K.S. Pitzer, J. Chem. Phys. 46, 3220 (1967).
- P. L. Chapovsky, Phys. Rev. A: At., Mol., Opt. Phys. 43, 3624 (1991).
- J. Tennyson, P.F. Bernath, L.R. Brown et al. (Collaboration), J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 117, 29 (2013).
- 20. J.K.G. Watson, J. Chem. Phys. 48, 4517 (1968).
- F. Matsushima, H. Odashima, T. Iwasaki, S. Tsunekawa, and K. Takagi, J. Mol. Struct. 352/353, 371 (1995).
- 22. P. L. Chapovsky, J. Mol. Struct. 599, 337 (2001).
- 23. P. R. Bunker, *Molecular symmetry and spectroscopy*, Academic Press, N.Y., San Francisco, London (1979).
- 24. E. Ilisca and K. Bahloul, Phys. Rev. A 57, 4296 (1998).
- G. Cazzoli, C. Puzzarini, M. E. Harding, and J. Gauss, Chem. Phys. Lett. 473, 21 (2009).

# Текущий авторский указатель томов 113–114 <sup>1)</sup>

Alekseev P. A. 114, 608() Alsobhi B. O. **113**, 326 (322) Andielkovic L. 113, 236 (238) Aristov D. N. **113**, 729 (689) Barash Yu. S. 113, 695 (662) Belik A. A. **114**, 627() Boroun G. R. **114**, 3(1) Cheng H. 114, 435() Cholakh S. O. 114, 627() Chu J. H. **113**, 131 (120) Danilov A. N. 114, 351() Demyanova A. S. **114**, 351() Deviatov E. V. **113**, 390 (389); 113, 695 (662) Dmitriev A. P. 113, 132 (127) Dmitriev S. V. 114, 351() Esin V. D. 113, 695 (662) Feng Z. -B. 114, 358() Fujimori A. 114, 627() Garifullin I. A. 113, 210 (194) Goncharov S. A. **114**, 351() Guo J. 114, 608() Guo X. 114, 435() Han M. 114, 435() Iorsh I. V. 114, 154() Ioselevich A. S. **114**, 41 (45) Irkhin V. Yu. **114**, 625 () Iskrenovic P. 113, 236 (238) Janseitov D. M. 114, 351 () Jia T. 114, 435() Kachorovskii V. Yu. 113, 729 (689) Kamashev A. A. **113**, 210 (194) Kolesnikov N. N. 113, 390 (389);

**113**, 695 (662) Kolodny S. A. **114**, 154() Korotin M. A. **114**, 346() Kozin V. K. **114**, 154 () Kukharenko A. I. **114**, 627() Kukovitsky E. 113, 265 (273) Kurmaev E. Z. 114, 627() Lebed A. G. **113**, 731 (701); 114, 551 () Liang S. 114, 365() Likhovid N. A. **114**, 4(8) Liu X. 114, 435() Luchkin V. N. **113**, 727 (681) Mantsevich V. N. 113, 727 (681) Maslova N. S. 113, 727 (681) Milenkovic M. R. **113**, 236 (238) Mitkin P. G. 113, 446 (433) Naryshkin Yu. G. 113, 221 (213) Nikolic A. S. 113, 236 (238) Niyazov R. A. 113, 729 (689) Ogloblin A. A. 114, 351() Orlova N. N. 113, 390 (389) Pantuev V. S. 114, 4(8) Peshcherenko N. S. **114**, 41 (45) Pikalov A. 113, 274 (285) Qiu H. 114, 435() Remigio A. S. 113, 587 (563) Roy A. M. 113, 263 (265) Ryshkov N. S. 113, 390 (389) Sakhin V. 113, 265 (273) Savchenkov P. S. **114**, 608() Shabara R. M. 113, 326 (322) Sidorov V. A. **114**, 608 ()

Simonov Yu. A. **113**, 589 (568) Skryabin Yu. N. 114, 625() Song F. 114, 365() Starastsin V. I. 114, 351() Streltsov S. V. 114, 627() Suljagic M. 113, 236 (238) Sun L. 114, 608() Talanov Yu. 113, 265 (273) Taran L. S. **114**, 627() Teitel'baum G. 113, 265 (273) Timonina A. V. **113**, 390 (389); **113**, 695 (662) Volovik G. E. **113**, 546 (538); Volovik G. E. **113**, 624 (602); 114, 273 () Xu Y. E. 113, 131 (120) Yan R. -Y. **114**, 358() Zainullina V. M. **114**, 346() Zakharov V. I. **113**, 446 (433) Zakhvataev V. E. **114**, 400() Zaslavskii O. B. 113, 789() Zhang M. 114, 365() Zhang R. 114, 435() Zhidkov I. S. 114, 627() Zubkov M. A. **113**, 448 (445) Абеди С. 114, 486 () Аверкиев Н. С. **113**, 52 (47); **114**, 383() Агафонцев Д. С. 114, 67 () Азаревич А. Н. **113**, 533 (526) Айдакина Н. А. **113**, 96 (86) Аксенов М. Д. **114**, 53() Алексеев В. А. 114, 60 ()

 $<sup>^{1)}{\</sup>rm B}$ скобках указаны номера страниц английского издания для вып. 113(1)–114(1).

Альшиц В. И. 113, 678 (646) Андреева М. А. **113**, 175 (162) Андреева М. С. 114, 520() Андреев И. В. 113, 740 (713) Андрианов Е. С. **114**, 43 (51) Аникин А. А. **114**, 212() Анисимов А. Н. 114, 323 (); **114**, 533() Аристова И. М. 113, 189 (176) Аристов В. Ю. 113, 189 (176) Аронин Кобелев А. С. Н. П. 113, 341 (345) Архипенко М. В. **113**, 763 (733) Архипов М. В. **113**, 237 (242); Архипов М. В. **114**, 156 (); **114**, 298() Архипов Р. М. **113**, 237 (242); Архипов Р. М. **113**, 636 (611); Архипов Р. М. **114**, 156 (); 114, 298() Асадчиков В. Е. **113**, 161 (149); **113**, 175 (162) Астахов Г. В. 114, 323() Афонин А. Г. 113, 223 (226) Ашитков С. И. 113, 84 (75); **113**, 311 (308) Бабенко П. Ю. 114, 13 (18) Бабунц Р. А. 114, 533 () Бабушкин И. 114, 298() Багаев В. С. 114, 96() Бакаров А. К. 114, 486 () Бакшеев Д. Г. 113, 328 (331) Балакин Д. А. 113, 590 (572) Балацкий Д. В. 113, 267 (279) Банников М. И. 113, 548 (542) Баранов В. Т. 113, 223 (226) Баранов П. Г. **114**, 323();

**114**, 533 () Барнов Е. В. 113, 223 (226) Баулин Р. А. 113, 175 (162) Баюков О. А. 113, 267 (279) Белинский А. В. **113**, 590 (572) Белогорлов А. А. **113**, 378 (378) Белозеров Е. И. 114, 474 () Белоплотов Д. В. **113**, 133 (129) Бельская Н. А. **113**, 267 (279); **114**, 89() Бессас Д. 113, 175 (162) Бессонов В. О. 114, 360 () Бибичева С. А. **114**, 147 () Блошкин А. А. **113**, 501 (498) Бобров А. А. **114**, 604 () Богач А. В. **113**, 533 (526) Богданова Н. А. 114, 391 () Богданов Ю. И. 114, 391 () Богословский Н. А. 114, 383 () Боднарчук Я. В. 113, 797 (769) Бондаревская А. С. **113**, 52 (47) Борисенко А. С. 114, 53 (); Борисенко А. С. **114**, 291 (); **114**, 553 () Борисова С. Д. 114, 82() Борман В. Д. **113**, 378 (378) Бочкарев С. Г. 114, 233 () Бражкин В. В. **114**, 541 () Бреев И. Д. 114, 323 (); 114, 533 () Брискина Ч. М. 114, 596() Бритвич Г. И. 113, 223 (226) Бугров А. Н. 113, 385 (384) Буздин А. И. **113**, 38 (34); 113, 102 (92) Бузмаков А. В. 113, 161 (149)

Бундакова А. П. **114**, 533() Бункин А. Ф. **113**, 435 (423); **113**, 763 (733) Бутенко А. В. 113, 784 (752) Бутылкин В. С. 114, 586() Быков А. А. 114, 486 () Быченков В. Ю. 114, 233() Валуев К. А. **113**, 68 (61) Ваньков А. Б. **113**, 112 (102) Варлачев В. А. **113**, 229 (231) Варнаков С. Н. **114**, 192() Вартанян Т. А. **114**, 60() Васильев А. Н. 113, 450 (454) Васильев Н. Н. **113**, 463 (466) Вахрушев В. О. **113**, 468 (471) Вдовин Е. Е. **113**, 605 (586); **114**, 366 () Вейшторт И. П. **114**, 323() Вильшанская Е. В. **113**, 92 (82) Винокур В. М. 114, 72() Виткалов С. А. 114, 486 () Вишнякова Г. А. 114, 291 () Вовченко И. В. **114**, 43 (51) Волков М. К. **113**, 777 (745): Волков М. К. **114**, 199 (); 114, 353 () Волк Т. Р. **113**, 797 (769) Воробьев Н. С. 114, 263 () Воронин А. А. 113, 304 (301) Гавриленко В. И. **113**, 399 (402) Гаврилкин С. Ю. 114, 89() Газизов А. Р. **113**, 152 (140) Гайнутдинов Р. В. **113**, 797 (769) Гайнутдинов Р. Х. **114**, 221 () Галахов В. Р. 114, 546 () Галеева А. В. **113**, 548 (542)

**9** Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9–10 2021

Галимов А. И. **113**, 248 (252) Галимов А. Р. **113**, 784 (752) Галль Н. Р. **113**, 595 (576) Галынский М. В. **113**, 579 (555) Ганичев С. Д. **113**, 463 (466) Гареева З. В. **114**, 250() Гарифуллин А. И. 114, 221 () Гартман А. Д. 114, 509() Гафнер С. Л. **113**, 669 (638) Гафнер Ю. Я. 113, 669 (638) Гашков М. А. **113**, 370 (370) Гимазов И. И. **113**, 450 (454) Гинзбург Н. С. **113**, 655 (626) Глазов М. М. **113**, 10(7) Глезер А. М. **113**, 468 (471) Глек П. Б. 113, 304 (301) Глушков В. В. **113**, 533 (526) Гожев Д. А. 114, 233() Головизин А. А. **114**, 291 () Голубев В. Г. 114, 526 () Голубь А. П. **113**, 440 (428) Гончарова Е. В. **113**, 751 (723) Горан А. В. 114, 486 () Горбунов А. В. **114**, 479 () Горчаков А. В. 114, 304() Градусов В. А. **114**, 6 (11) Грановский А. Б. **113**, 527 (521) Григорьев А. Д. **114**, 560 () Григорьев П. Д. **114**, 560() Гриценко В. А. **114**, 498() Гришаков К. С. **113**, 182 (169); **114**, 172() Громилов С. А. **113**, 267 (279) Грызунова Н. Н. **114**, 333 () Гудков В. В. **113**, 52 (47) Гурин А. С. 114, 533()

Гуров Ю. Б. **113**, 147 (135) Гусаков Е. З. **114**, 167 () Гусев А. И. 113, 733 (706); **114**, 185 () Гусева Ю. А. **113**, 248 (252) Гусев Н. С. 114, 526 () Гусев С. А. 114, 526() Гусихин П. А. **113**, 740 (713) Гущин М. Е. **113**, 96 (86) Давыдов М. А. **113**, 435 (423); **113**, 763 (733) Давыдов С. Ю. 114, 372() Данилов П. А. **113**, 299 (297); Данилов П. А. **113**, 495 (493); Данилов П. А. **113**, 650 (622); **114**, 147 () Данилов С. Н. **113**, 548 (542) Дворецкая Е. В. **113**, 825 (794) Дворецкий С. А. **113**, 399 (402); 113, 548 (542) Двуреченский А. В. **113**, 58 (52); **113**, 501 (498) Делев В. А. **113**, 26 (23) Демишев С. В. **113**, 533 (526) Денисов Е. А. **114**, 372() Деребезов И. А. **114**, 72() Дехтярь М. Л. **113**, 768() Дзебисашвили Д. М. 114, 339() Диеп Х. Т. **114**, 610() Долженко Д. Е. **113**, 548 (542) Дормидонов А. Е. **113**, 817 (787) Дорожкин С. И. **113**, 697 (670) Дорофенко А. В. **113**, 527 (521) Доценко Е. 114, 502() Дрофа М. А. **114**, 377 () Дубинин С. С. **114**, 24 (29)

Дудкин Г. Н. **113**, 229 (231) Дураков Д. Е. 114, 72() Дьячкова И. Г. **113**, 161 (149) Дюгаев А. М. **114**, 560() Дюжева Т. И. 114, 541 () Евдокимов С. В. **113**, 291 (289) Европейцев Е. А. **113**, 507 (504) Еганова Е. М. **113**, 84 (75) Егранов А. В. **113**, 52 (47) Еремин Е. В. **114**, 89() Еремин М. В. **114**, 31 (35) Есеев М. К. 114, 444 () Ефремов А. В. **114**, 546 () Жаднов Н. О. **114**, 291 () Жаховский В. В. **113**, 84 (75): 113, 311 (308) Жевстовских И. В. **113**, 52 (47) Желтиков А. М. **113**, 3(1); **114**, 520() Желтиков А. М. **113**, 304 (301) Жмерик В. Н. **113**, 507 (504) Жолудев М. С. **113**, 399 (402) Жукова М. О. **113**, 237 (242) Журавлев А. С. **114**, 474 () Загитова А. А. 114, 474 () Задиранов Ю. М. **113**, 248 (252) Задорожная Л. А. 114, 596 () Зайцев-Зотов С. В. 114, 36 (40) Заколдаев Р. А. 113, 495 (493); **113**, 650 (622) Заливако И. В. **114**, 53(); Заливако И. В. 114, 291 (); 114, 553 () Залозная Е. Д. 113, 817 (787) Залялютдинов Т. А. **114**, 212() Зарезин А. М. **113**, 740 (713)

Казаков А. С. **113**, 548 (542)

Зегря А. Г. **114**, 263() Зегря Г. Г. **114**, 263() Зеленер Б. Б. 113, 92 (82); **114**, 604 () Зеленер Б. В. 113, 92 (82) Зибров И. П. **114**, 541 () Зиновьева А. Ф. 113, 58 (52) Зиновьев А. Н. 114, 13 (18) Зиновьев В. А. 113, 58 (52) Зиятдинова М. З. 114, 228 () Золотов Д. А. 113, 161 (149) Золотько А. С. 113, 495 (493) Зубарева О. В. 113, 370 (370) Зубарев Н. М. 113, 256 (259); **113**, 370 (370) Зудин И. Ю. 113, 96 (86) Зыбцев С. Г. 114, 36 (40) Зябловский А. А. 114, 43 (51) Иванькова Е. М. **113**, 385 (384) Ивченко Е. Л. **113**, 10(7) Игнатов А. И. 113, 84 (75) Изучеев В. И. 113, 291 (289) Изюров В. И. 114, 24 (29) Иконников А. В. 113, 399 (402); **113**, 548 (542) Ильичев Л. В. 113, 212 (207) Иногамов Н. А. 113, 84 (75); 113, 311 (308) Ионин А. А. 113, 299 (297); Ионин А. А. **113**, 365 (365); 113, 495 (493) Иоселевич А. С. 113, 854 (819) Иоселевич П. А. **113**, 661 (631) Исаев Т. А. 114, 493 () Казак Н. В. 113, 267 (279); **114**, 89()

Казанцев Ю. Н. 114, 586 () Кандидов В. П. **113**, 817 (787) Каневский В. М. **114**, 596() Каптарь Л. П. 114, 579() Капустин А. А. **113**, 697 (670) Каримов Д. Н. **113**, 175 (162) Карпова А. А. 114, 263 () Касахара Й. **114**, 18 (23) Катин К. П. **113**, 182 (169); **114**, 172() Квон З. Д. 113, 328 (331); Квон З. Д. 113, 463 (466); Квон З. Д. **114**, 114(); 114, 377 () Кириенко В. В. **113**, 501 (498) Кисленко В. А. **114**, 311 () Кисленко С. А. **114**, 311 () Киямов А. Г. 113, 450 (454) Климко Г. В. 113, 248 (252) Клумов Б. А. 114, 467 () Князев Ю. В. **113**, 267 (279) Кобелев Н. П. 113, 751 (723) Ковалев А. И. 113, 468 (471) Ковалев М. С. **113**, 365 (365); 114, 147 () Козлов Д. В. 113, 399 (402) Колачевский Н. Н. **114**, 53 (); Колачевский Н. Н. **114**, 291 (); **114**, 553 () Колмычек И. А. 114, 526() Колотинский Д. А. **113**, 514 (510) Комаров П. С. **113**, 311 (308) Компанец В. О. 113, 365 (365); Компанец В. О. **113**, 723 (677); 113, 817 (787)

Кондратьев В. И. **113**, 809 (763) Кондратюк Е. С. **113**, 291 (289) Кончаков Р. А. **113**, 341 (345) Копасов А. А. **113**, 38 (34) Копица Г. П. **113**, 385 (384) Коплак О. В. **113**, 825 (794) Коробейщиков Н. Г. **114**, 304() Коробков С. В. **113**, 96 (86) Коровушкин М. М. **114**, 339() Королев Д. В. **113**, 825 (794) Коршунов М. М. **113**, 63 (57) Костикова Е. К. **114**, 372 () Коханчик Л. С. **113**, 797 (769) Kox K. A. **113**, 683 (651) Кочаровская Е. Р. **113**, 655 (626) Красиков К. М. **113**, 533 (526) Красин Г. К. **114**, 147 () Краснорусский В. Н. **113**, 533 (526) Крафтмахер Г. А. **114**, 586() Кривобок В. С. **114**, 96 () Крючков Д. С. **114**, 291 () Кудасов Ю. Б. **113**, 168 (155) Кудеяров К. С. **114**, 291 () Кудрявцев А. Г. 113, 406 (409) Кудряшов С. И. 113, 299 (297); Кудряшов С. И. **113**, 365 (365); Кудряшов С. И. **113**, 495 (493); Кудряшов С. И. 113, 650 (622); **114**, 147 () Кузнецов А. В. **113**, 533 (526) Кузнецов Е. А. **114**, 67 () Кукушки И. В. 114, 328 () Кукушкин И. В. 113, 112 (102); Кукушкин И. В. 113, 689 (657); Кукушкин И. В. 113, 740 (713); 114, 474 ()

Письма в ЖЭТФ том 114 вып. 9-10 2021

Кулик Л. В. 113, 58 (52); Кулик Л. В. **114**, 474(); **114**, 479() Кумамото А. **114**, 18 (23) Куницына Е. И. **113**, 825 (794) Кутлин А. Г. 113, 38 (34) Кэмпфер Б. 114, 579 () Лапушкин С. В. **113**, 147 (135) Ларионов А. В **114**, 479() Латышев А. В. **113**, 328 (331); **114**, 114() Левин В. М. **113**, 68 (61) Леонидов А. В. 113, 620 (599) Леонова Т. И. 113, 147 (135) Литвинов А. Н. 113, 791 (757) Лихачев К. В. 114, 323() Лобанов И. С. **113**, 223 (226); **113**, 833 (801) Ломоносова Т. А. **113**, 320 (317) Лукичев В. Ф. 114, 391 () Лядов Н. М. **113**, 450 (454) Лященко С. А. **114**, 192() Магарилл Л. И. 114, 78() Майдыковский А. И. **114**, 526() Майзлах А. А. 114, 36 (40) Майлыбаев А. А. 114, 67 () Макарова А. 114, 546() Макаров А. С. **113**, 341 (345); 113, 751 (723) Макаров Д. Н. 114, 444 () Максимова О. А. 114, 192() Максимычев А. В. 113, 523 (518) Мальцев В. П. 114, 586 () Маркевич С. А. **113**, 486 (487) Мартовицкий В. П. **114**, 147 () Маслов М. М. **113**, 182 (169);

**114**, 172() Матвеев В. И. **114**, 444() Махмудиан М. М. **114**, 620 () Мельников А. С. **113**, 38 (34); 113, 102 (92) Меньшиков Л. И. **113**, 523 (518) Меньшиков П. Л. **113**, 523 (518) Месяц Г. А. **113**, 256 (259); 113, 370 (370) Мешков И. Н. 113, 784 (752) Мигдал К. П. 113, 299 (297) Миннегалиев М. М. **113**, 3(1) Миролюбов М. А. **113**, 553 (547) Миронов А. 113, 757 (728) Миронов А. Ю. **114**, 72() Миронов С. В. 113, 38 (34); **113**, 102 (92) Митрофанов А. В. 113, 304 (301) Михайлов Н. Н. **113**, 399 (402); Михайлов Н. Н. 113, 463 (466); Михайлов Н. Н. **113**, 548 (542); 114, 377 () Мицкан В. А. **114**, 339() Мишняков В. 113, 757 (728) Могилевский М. М. **114**, 18 (23) Могилюк Т. И. 114, 560 () Моисеев С. А. **113**, 3(1) Моисеенко И. Л 114, 18 (23) Молодцова О. В. 113, 189 (176) Моргунов Р. Б. 113, 825 (794) Морозов А. 113, 757 (728) Морозов С. В. **113**, 399 (402); **114**, 366 () Мороков Е. С. 113, 68 (61) Мохов Е. Н. 114, 323 (); **114**, 533 ()

Мошкина Е. М. **114**, 89() Музафарова М. В. 114, 533() Муравьев В. М. **113**, 740 (713) Мурзина Т. В. 114, 526 () Мусабек Г. К. **114**, 515 () Мусина Л. И. **114**, 474 () Муслимов А. Э. **114**, 596 () Мутыгуллина А. А. **114**, 221 () Набиева Л. Я. **114**, 221 () Нагалюк С. С. 114, 323() Назаров М. М. **113**, 304 (301) Наумов С. В. 114, 24 (29); Наумов С. В. **114**, 179 (); 114, 546 () Некоркин В. И. 113, 415 (418) Некрасов И. А. **113**, 63 (57); 113, 126 (115) Ненашев А. В. **113**, 58 (52) Неронов А. **113**, 77 (69) Нефедов Ю. А. 113, 689 (657); 114, 328 () Нечаев Б. А. 113, 229 (231) Нечаев Д. В. 113, 507 (504) Нечаев Ю. С. 114, 372() Николаев В. С. **113**, 514 (510) Николаев И. В. 114, 304 () Николаев С. Н. 114, 96() Никонов С. А. 114, 36 (40) Новиков Ю. Н. **114**, 498 () Номоконов Д. В. 114, 486 () Носов А. П. 114, 24 (29) Нурмухаметов А. Р. 114, 31 (35) Овчинников С. Г. **114**, 89(); 114, 192() Оглобличев В. В. 114, 24 (29) Олейничук Е. А. **113**, 650 (622);

114, 147()
Ольшанецкий Е. Б. <b>114</b> , 377 ()
Онищенко Е. Е. <b>114</b> , 96 ()
Осипов А. А. <b>113</b> , 410 (413)
Ошурко В. Б. <b>113</b> , 435 (423);
113,763(733)
Павлова А. А. <b>113</b> , 385 (384)
Павлов Н. С. <b>113</b> , 63 (57);
<b>113</b> , 126 (115)
Павлов С. В. <b>114</b> , 311 ()
Палий А. В. <b>113</b> , 825 (794)
Паршиков А. Н. <b>113</b> , 311 (308)
Пастор А. А. <b>114</b> , 60()
Пастухов В. П. $114$ , 242 ()
Пахомов А. В. <b>113</b> , 237 (242);
Пахомов А. В. <b>114</b> , 156 ();
<b>114</b> , 298 ()
Пеньков Ф. М. <b>113</b> , 229 (231)
Пермякова И. Е. <b>113</b> , 468 (471)
Пермяков Д. В. <b>113</b> , 809 (763)
Першина Е. А. <b>113</b> , 84 (75)
Першин С. М. <b>113</b> , 435 (423);
113,763(733)
Петржик Е. А. <b>113</b> , 678 (646)
Петрова А. Е. <b>114</b> , 318()
Петров М. И. <b>113</b> , 553 (547)
Петров П. В. <b>114</b> , 383 ()
Петров Ю. В. <b>113</b> , 311 (308)
Пивоваров А. А. <b>113</b> , 777 (745);
Пивоваров А. А. <b>114</b> , 199();
${\bf 114},353()$
Пидгайко Д. А. <b>113</b> , 809 (763)
Пикалов А. М. <b>113</b> , 527 (521)
Пискунов Ю. В. <b>114</b> , 24 (29)
Подливаев А. И. <b>113</b> , 182 (169);
<b>114</b> , 172 ()

Покровский В. Я. **114**, 36 (40) Покрышкин Н. С. **114**, 515 () Полищук Б. В. **113**, 291 (289) Полуэктов И. В. 113, 223 (226) Попель С. И. 113, 440 (428) Попов А. Ю. **114**, 167 () Попруженко С. В. **113**, 320 (317) Поткина М. Н. **113**, 833 (801) Поторочин Д. В. **113**, 189 (176) Почечуев М. С. 114, 520() Прудковский П. А. 114, 204 () Пручкина А. А. **114**, 96() Разова А. А. 113, 399 (402) Рахлин М. В. **113**, 248 (252) Рашков Р. 113, 757 (728) Решетников С. Ф. **113**, 223 (226) Ривнюк А. С. **113**, 299 (297); **113**, 650 (622) Родякина Е. Е. **113**, 328 (331) Родякина Е. Е. **114**, 114() Рожко М. В. **113**, 304 (301) Розанов Н. Н. **113**, 157 (145); Розанов Н. Н. 113, 237 (242); Розанов Н. Н. 114, 156(); **114**, 298 () Розенбаум В. М. 113, 768 () Романцова Т. В. **114**, 18 (23) Ромашевский С. А. **113**, 84 (75); 113, 311 (308) Ромашкина А. М. 114, 526() Рощин Б. С. **113**, 175 (162) Рубан В. П. 113, 539 (532); 113, 848 (814) Руденко В. В. 113, 267 (279) Руднев В. А. **114**, 6(11) Румянцев В. В. **113**, 399 (402)

Рунов В. В. **113**, 385 (384) Рупасов А. Е. 113, 495 (493); **113**, 650 (622) Русина Г. Г. 114, 82() Рутьков Е. В. 113, 595 (576) Рыжкин И. А. 113, 457 (461) Рыжкин М. И. 113, 457 (461) Рыжкова Д. А. 113, 669 (638) Рябова Л. И. 113, 548 (542) Саакян С. А. 113, 92 (82); **114**, 604() Савин Д. А. 113, 223 (226) Садовников С. И. **113**, 733 (706); 114, 185 () Садовский М. В. **113**, 600 (581) Садовский С. А. 113, 291 (289) Садыков А. Ф. 114, 24 (29) Сазонов С. В. 113, 612 (592); Сазонов С. В. **114**, 102(); Сазонов С. В. 114, 160 (); 114, 437 () Сайко А. П. 113, 486 (487) Салахов М. Х. 114, 221 () Самохвалов А. В. 113, 38 (34); 113, 102 (92) Самусев А. К. 113, 553 (547); **113**, 809 (763) Сандлер В. А. 113, 348 (352) Сандомирский Ю. Е. 113, 223 (226) Сандуковский В. Г. **113**, 147 (135) Сапожников М. С. 114, 526 () Сараева И. Н. 113, 365 (365) Саргсян А. 113, 629 (605) Саркисян Д. **113**, 629 (605) Сарычев М. Н. **113**, 52 (47) Саутенков В. А. **113**, 92 (82);

**114**, 604 () Сафронов К. Р. 114, 360 () Секербаев К. С. 114, 515() Семенин Н. В. 114, 553 () Семериков И. А. **114**, 53(); **114**, 553() Семикоз Д. 113, 77 (69) Сенков В. М. **114**, 228() Сергеев А. С. 113, 655 (626) Сердобинцев П. Ю. 114, 60() Серебрянников Е. Е. 113, 304 (301) Серов Ю. М. 113, 507 (504) Сидоров-Бирюков Л. А. 113. 304 (301) Синев И. С. **113**, 809 (763) Скоморохов А. М. 114, 323() Слободчиков А. А. 113, 63 (57) Случанко Н. Е. **113**, 533 (526) Смаглюк Д. С. 113, 223 (226) Смаев М. П. 113, 495 (493) Смет Ю. Х. 113, 697 (670) Смирнов М. А. **113**, 3(1) Смирнов Д. 114, 546() Смирнов Д. В. 114, 242 () Смирнов Н. А. **113**, 650 (622) Смольников А. Г. **114**, 24 (29) Смыслов Р. Ю. 113, 385 (384) Соколова В. В. 113, 365 (365) Соколов И. М. 113, 791 (757) Солин Н. И. 114, 179() Соловьев Д. А. 114, 212() Соловьев Л. А. 114, 89() Соломонов Ю. С. 114, 263 () Сорокин Д. А. 113, 133 (129) Стегайлов В. В. 113, 392 (396) Степанов Е. А. 114, 520()

Стишов С. М. 114, 318()

Стриковский А. В. 113, 96 (86) Струлева Е. В. **113**, 311 (308) Стрыгин И. С. 114, 486() Суворов Э. В. 113, 161 (149) Суриков В. Т. 113, 52 (47) Сухих А. С. 113, 267 (279) Сцепуро Н. Г. **114**, 147() Сыресин Е. М. **113**, 784 (752) Табачкова Н. Ю. **114**, 36 (40) Таланов Ю. И. **113**, 450 (454) Талочкин А. Б. **113**, 683 (651) Тарасенко В. Ф. **113**, 133 (129) Тарасенко С. В. **113**, 475 (477) Тарасов А. П. **114**, 596() Таурбаев Е. Т. **114**, 515() Телькушев М. В. **113**, 147 (135) Терехов В. И. **113**, 223 (226) Терещенко О. Е. **113**, 683 (651) Тимофеев А. В. **113**, 514 (510) Тимофеев В. Б. 114, 479() Тимошенко В. Ю. **114**, 515() Ткаченко В. А. **113**, 328 (331); **114**, 114 () Ткаченко О. А. **113**, 328 (331); **114**, 114() Толордава Э. Р. **113**, 365 (365) Толстихина И. Ю. 113, 784 (752) Томилин В. А. **113**, 212 (207) Тоноян А. 113, 629 (605) Торопов А. А. **113**, 248 (252); 113, 507 (504) Тофтул И. Д. **113**, 553 (547) Трахтенберг Л. И. **113**, 768() Тронин И. В. **113**, 378 (378) Трошков С. И. **113**, 248 (252) Тсучия Ф. **114**, 18 (23)

Тузиков А. В. **113**, 784 (752) Турьянский А. Г. **114**, 228 () Уаман Светикова Т. А. 113, 399 (402) Удинцева М. С. **114**, 546() Уздин В. М. **113**, 833 (801) Уланов В. А. **113**, 52 (47) Уманский В. **113**, 697 (670) Устинов А. С. **114**, 509 () Устинов Н. В. **114**, 437 () Утегулов Ж. Н. **114**, 515() Уткин Д. Е. **113**, 501 (498) Фастовец Д. В. **114**, 391 () Федоров А. Н. **113**, 435 (423); **113**, 763 (733) Федоров И. Д. **113**, 392 (396) Федоров М. В. **114**, 311 () Федорук Г. Г. 113, 486 (487) Федотов А. Б. **113**, 304 (301); 114, 520 () Федотов И. В. **113**, 3(1); **114**, 520() Федюхин Л. А. **114**, 304 () Федянин А. А. **114**, 360 (); **114**, 509() Феоктистов А. **113**, 385 (384) Филипов В. Б. **113**, 533 (526) Филипович М. **113**, 229 (231) Филиппов А. В. **113**, 229 (231); **113**, 784 (752) Фильченков С. Е. **113**, 655 (626) Фишер П. С. **114**, 586() Флусова Д. С. **113**, 229 (231) Фомин И. А. 114, 269 () Фортов В. Е. **113**, 92 (82) Фраерман А. А. **113**, 353 (356) Фрейман В. М. **114**, 263 ()

Хабарова К. Ю. **114**, 53(); Хабарова К. Ю. 114, 291 (); **114**, 553() Хайдуков З. В. **113**, 21 (18) Ханин Ю. Н. 113, 605 (586); **114**, 366 () Харинцев С. С. **113**, 152 (140) Харитонов А. В. **113**, 152 (140) Харлов Ю. В. **113**, 291 (289) Хисамеева А. Р. 113, 689 (657); **114**, 328() Ходжибагиян Г. Г. **113**, 784 (752) Хоник В. А. **113**, 341 (345); 113, 751 (723) Хорошилов А. Л. 113, 533 (526) Хохлов В. А. **113**, 84 (75); 113, 311 (308) Хохлов Д. Р. 113, 548 (542) Храпак А. Г. 114, 615 () Храпак С. А. 114, 615() Цзиао Ц. Ч. **113**, 751 (723) Цыганков П. А. 113, 311 (308) Цымбаленко В. Л. **113**, 33 (30) Цыпкин А. Н. 113, 237 (242) Чайка А. Н. 113, 189 (176) Чайков Л. Л. 113, 435 (423) Чаплик А. В. 114, 78(); **114**, 620() Чареев Д. А. 113, 450 (454) Чекалин С. В. 113, 365 (365);

Чекалин С. В. **113**, 723 (677); 113, 817 (787) Чен С. М. 114, 250 () Ченцов С. И. 114, 96 () Черетаева А. О. 114, 372() Чернышев Б. А. 113, 147 (135) Чернышов А. А. **114**, 18 (23) Чесноков М. Ю. **113**, 223 (226) Чесноков Ю. А. **113**, 223 (226) Чиглинцев Э. О. **114**, 291 () Чирвоный В. С. **114**, 515() Чирков П. Н. **113**, 223 (226) Чугунин Д. В. 114, 18 (23) Чукланов Д. А. **113**, 661 (631) Чулков Е. В. 114, 82() Чумаков А. И. 113, 175 (162) Чумаков Д. К. 113, 229 (231) Чупраков С. А. **114**, 24 (29) Шабдан Е. 114, 515() Шавров В. Г. **113**, 475 (477) Шакуров Г. С. **113**, 52 (47) Шамин С. Н. 114, 546 () Шангараев А. А. 113, 291 (289) Шандаров С. М. **113**, 797 (769) Шапочкина И. В. 113, 768 () Шарафуллин И. Ф. 114, 610() Шарыпов К. А. 113, 370 (370) Шашков Е. В. 114, 263() Шевелько В. П. 113, 784 (752) Шелыгина С. Н. 113, 365 (365)

Шергин А. П. **114**, 13(18) Ширделхавар А. **114**, 221 () Шицевалова Н. Ю. 113, 533 (526) Шишков В. Ю. **114**, 43 (51) Шкляев А. А. **113**, 58 (52) Шкляев В. А. **113**, 133 (129) Шорохов А. С. 114, 509() Шпак В. Г. **113**, 370 (370) Шубина Т. В. **113**, 248 (252); **113**, 507 (504) Шувалов Е. Н. 113, 229 (231) Шунайлов С. А. **113**, 370 (370) Шурыгина Н. А. **114**, 372 () Шустин М. С. **113**, 267 (279) Щапин Д. С. 113, 415 (418) **113**, Щепетильников Α. Β. 689 (657); 114, 328 () Якимов А. И. **113**, 501 (498) Яковлева В. В. **114**, 323() Яковлев И. А. 114, 192() Яковлев С. Л. **114**, 6 (11) Якунин В. Г. **114**, 515() Якушкин Е. Д. **113**, 348 (352) Яландин М. И. **113**, 370 (370) Янович А. А. **113**, 223 (226) Яревский Е. А. **114**, 6 (11) Ярошевич А. С. **113**, 328 (331) Ярошевич А. С. **114**, 114() Ясников И. С. 114, 333()

## 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 языках<sup>1)</sup>. 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 статьи<sup>2)</sup>, с использованием стилевого файла jetpl.cls (кодировка UTF-8<sup>3)</sup>, кодировка KOI8-R<sup>4)</sup>).

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.
- о 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.

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>http://www.jetpletters.ru/ru/info.shtml#sub1

 $<sup>^{2)}</sup> http://www.jetpletters.ru/tex/utf8/example.tex$ 

 $<sup>^{3)}</sup> http://www.jetpletters.ru/tex/utf8/jetpl.cls$ 

 $<sup>{}^{4)}</sup> http://www.jetpletters.ru/tex/koi/jetpl.cls$ 

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 возможность 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" распиренные 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<sub>opt</sub>, а не P<sub>ont</sub>.

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. Авторов, 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)<sup>5)</sup>.

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 опибочности и может послужить причиной отказа в его публикации. Редакция не рассматривает комментарии на ответ авторов.

<sup>&</sup>lt;sup>5)</sup>http://www.jetpletters.ru/ru/supp.shtml

# Миниобзоры

Журнал "Письма в ЖЭТФ" в течение последних 10 лет в порядке опыта публиковал "заказные" миниобзоры 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 9 <sub>Поля, частицы, ядра</sub>

Каптарь Л.П., Кэмпфер Б. Температурная зависимость пропагаторов глюонов и ду́хов в подходе Дайсона–Швингенра в приближении радуги	579
Оптика, лазерная физика	
Крафтмахер Г.А., Бутылкин В.С., Казанцев Ю.Н., Мальцев В.П., Фишер П.С. Транс- формация микроволновых резонансных свойств метаструктур с CdS и CdSe при одно- и двухфо- тонном возбуждении	586
Тарасов А.П., Задорожная Л.А., Муслимов А.Э., Брискина Ч.М., Каневский В.М. Вы- нужденное излучение и лазерная генерация в многогранных микрокристаллах ZnO	596
Бобров А.А., Саакян С.А., Саутенков В.А., Зеленер Б.Б. Диполь-дипольное уширение при селективном отражении мощного лазерного излучения от границы диэлектрика и плотного резонансного газа	604
Конденсированное состояние	
Savchenkov P.S., Sidorov V.A., Guo J., Sun L., Alekseev P.A. Evidence of homogeneous intermediate valence coexisting with long-range magnetic order in $EuCu_2(Si,Ge)_2$	608
Шарафуллин И.Ф., Диеп Х.Т. Магнитные скирмионы и фазовые переходы в антиферромаг- нитном/ферроэлектрическом бислое	610
<b>Храпак С.А., Храпак А.Г.</b> Корреляция между коэффициентами сдвиговой вязкости и теплопроводности в плотных простых жидкостях	615
Махмудиан М.М., Чаплик А.В. Кулоновский центр в монослое дихалькогенидов переходных металлов	620
$\label{eq:result} \mbox{Irkhin V.Yu., Skryabin Yu.N.} Topological phase transitions in strongly correlated systems: application to $Co_3Sn_2S_2$}$	625
Zhidkov I.S., Belik A.A., Kukharenko A.I., Cholakh S.O., Taran L.S., Fujimori A., Streltsov S.V., Kurmaev E.Z. Cu-site disorder in CuAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> as studied by XPS spectroscopy	627

# Содержание Том 114, выпуск 10

### Поля, частицы, ядра

Мильштейн А.И., Николаев Н.Н., Сальников С.Г. Нарушение четности в рассеянии протона на углероде и кислороде	631
Оптика, лазерная физика	
Леонтьев А.А., Кузнецов К.А., Прудковский П.А., Сафроненков Д.А., Китаева Г.Х. Прямое измерение корреляционной функции оптико-терагерцовых бифотонов	635
Плазма, гидро- и газодинамика	
Бронин С.Я., Вихров Е.В., Зеленер Б.Б., Зеленер Б.В. Физические процессы при формиро- вании стационарной ультрахолодной неидеальной плазмы	643
<b>Быченков В.Ю., Лобок М.Г.</b> Релятивистский самозахват экстремального лазерного света в неоднородной плазме	650
Конденсированное состояние	
Dickmann S., Kaysin B.D. Stochastization of long living spin-cyclotron excitations in a spin- unpolarised quantum Hall system	657
Kalenkov M.S., Zaikin A.D. Phase-coherent thermoelectricity in superconducting hybrids (Mini- review)	659
<b>Яржемский В.Г., Тетерин Ю.А., Маслаков К.И., Тетерин А.Ю., Иванов К.Е.</b> Влияние многоэлектронных эффектов на структуру рентгеновских фотоэлектронных спектров Th 5 <i>p</i> - и 5 <i>s</i> -электронов ThO <sub>2</sub>	661
Семенов Н.Д., Муравьев В.М., Андреев И.В., Кукушкин И.В. Обнаружение перенормировки циклотронной частоты в экранированной двумерной электронной системе с сильным запаздыванием	669
<b>Тихонов А.М., Асадчиков В.Е., Волков Ю.О., Рощин Б.С., Ермаков Ю.А.</b> О спектре межслойных шероховатостей в фосфолипидном мультислое	674
Морозов В.А., Зегря А.Г., Зегря Г.Г., Савенков Г.Г. Пьезоэлектрические свойства пористого кремния	680
<b>Кузьмичева Т.Е., Кузьмичев С.А.</b> Пниктиды семейства <i>A</i> FeAs ( <i>A</i> = Li, Na) на основе щелочных металлов: современное состояние исследований электронных и сверхпроводящих свойств (Миниобзор)	685

### Разное

Мамрашев А.А., Чаповский П.Л. Ускорение конверсии ядерных спиновых изомеров молекул	
воды при их колебательном возбуждении	699
Текущий авторский указатель томов 113–114	704
Информация для авторов	712